

谢祖欣, 韩志伟, 王格慧. 2014. 春季中国东部气溶胶化学组成及其分布的模拟研究 [J]. 大气科学, 38 (3): 399–409, doi:10.3878/j.issn.1006-9895.2013.13111. Xie Zuxin, Han Zhiwei, Wang Gehui. 2014. Model study on the distribution and evolution of major aerosol components in eastern China in the spring [J]. Chinese Journal of Atmospheric Sciences (in Chinese), 38 (3): 399–409.

# 春季中国东部气溶胶化学组成及其分布的模拟研究

谢祖欣<sup>1</sup> 韩志伟<sup>1</sup> 王格慧<sup>2</sup>

<sup>1</sup> 中国科学院大气物理研究所中国科学院东亚区域气候—环境重点实验室, 北京 100029

<sup>2</sup> 中国科学院地球环境研究所, 西安 710075

**摘 要** 本文利用区域空气质量模式 RAQMS (Regional Air Quality Model System), 对 2009 年春季中国东部气溶胶主要化学成分及其分布进行了模拟研究。与泰山站观测资料的对比结果显示, 模式能比较合理地反映气溶胶浓度的逐日变化特征。整体上, 模式对无机盐气溶胶的模拟好, 分别高估和低估黑碳和有机碳气溶胶浓度, 其原因与排放源、二次有机气溶胶化学机制和模式分辨率的不确定性有关。模拟结果显示, 春季气溶胶浓度高值主要集中于华北、四川东部、长江中下游等地区。受东南亚生物质燃烧和大气输送的影响, 中国的云南和广西等地区有机碳浓度高于中国其他地区。中国西北部沙尘浓度较高, 而且向东输送并影响到中国东部和南方部分地区。中国东部的华北、四川东部、长江中下游等地  $PM_{2.5}$  (空气动力学直径在 2.5 微米以下的颗粒物) 污染严重, 4 月平均  $PM_{2.5}$  浓度超过了我国日平均  $PM_{2.5}$  浓度限值。中国东部泰山站的观测和模拟结果都显示近地面硝酸盐浓度超过硫酸盐, 中国北部对流层中硝酸盐的柱含量也大于硫酸盐, 而在中国南部则相反, 这一方面与春季中国云量南多北少的分布特征以及云内液相化学反应有关, 另一方面也与南北温差对气溶胶形成的影响有关。就整个中国东部而言, 虽然硫酸盐的柱含量 (46 Gg) 仍大于硝酸盐 (42 Gg), 但比较接近, 反映出我国氮氧化物排放迅速增加的趋势。春季中国地区对流层中  $PM_{10}$  (空气动力学直径在 10 微米以下的颗粒物) 及其化学成分柱含量分别为: 990.8 Gg ( $PM_{10}$ ), 52.6 Gg (硫酸盐), 48.2 Gg (硝酸盐), 32.1 Gg (铵盐), 22.9 Gg (黑碳) 和 74.1 Gg (有机碳), 有机碳 (OC) 中一次有机碳 (POC) 和二次有机碳 (SOC) 分别占 60% 和 40%, 中国东部  $PM_{10}$  中人为气溶胶和沙尘分别占 30% 和 70%, 反映了春季沙尘对我国大气气溶胶的重要贡献。

**关键词** 数值模拟 气溶胶化学成分  $PM_{2.5}$  中国东部

**文章编号** 1006-9895(2014)03-0399-11

**中图分类号** P402

**文献标识码** A

**doi:**10.3878/j.issn.1006-9895.2013.13111

## Model Study on the Distribution and Evolution of Major Aerosol Components in Eastern China in the Spring

XIE Zuxin<sup>1</sup>, HAN Zhiwei<sup>1</sup>, and WANG Gehui<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Key Laboratory of Regional Climate-Environment Research for Temperate East Asia, Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029

<sup>2</sup> Institute of Earth Environment, Chinese Academy of Sciences, Xi'an 710075

**Abstract** A regional air quality model system (RAQMS) was applied to investigate the distribution of major aerosol chemical components in eastern China in spring 2009. The comparison of model results with observations at Taishan station indicates that the model system is able to represent the day-to-day variation of aerosol concentrations reasonably

**收稿日期** 2013-01-14, 2013-08-22 收修定稿

**资助项目** 国家自然科学基金资助项目 41075106

**作者简介** 谢祖欣, 女, 1987 年出生, 博士研究生, 主要从事气溶胶数值模拟研究。E-mail: xiezx@tea.ac.cn

**通讯作者** 韩志伟, E-mail: hzw@mail.iap.ac.cn

well. In general, the model simulates concentrations of inorganic aerosols well, but it tends to overpredict and underpredict black carbon and organic carbon aerosol concentrations, respectively, mainly due to the uncertainties in emission inventory, the chemical mechanism of secondary organic aerosol formation, and the model resolution. The model results show that near the surface, high aerosol concentrations mainly occurred in the Huabei Plain, the east of Sichuan Province, in the middle and lower reaches of the Yangtze River. The organic carbon aerosol concentrations in the southern parts of Yunnan and Guangxi provinces were larger than those in other regions of China, due to the transport effect of biomass burning emissions from Southeast Asia. Soil dust was rich in northwestern China and can be transported toward eastern China and portions of southern China. The  $PM_{2.5}$  (the particulate matter with aerodynamic diameter smaller than 2.5 micrometers) levels in the Huabei Plain, east of the Sichuan Province and the middle and lower reaches of the Yangtze River, were seriously high, exceeding the daily mean  $PM_{2.5}$  limit of the national standard. Both observations and model simulations showed that nitrate exceeded sulfate concentrations at Taishan station. The regional burden of nitrate within the troposphere in northern China was close to or in excess of that of sulfate, whereas in southern China, the opposite was the case; this was associated with the distribution of clouds in spring (there are more clouds in southern China at that time than that in northern China) and the relevant aqueous chemical mechanisms, as well as the different temperature effects on aerosol formation. For eastern China, although the burden of sulfate (46 Gg) still exceeded that of nitrate (42 Gg), they became very close, reflecting the rapid increase in emissions of nitrogen oxides in China. During the study period, the regional burden of  $PM_{10}$  (the particulate matter with aerodynamic diameter smaller than 10 micrometers) was 990.8 Gg, and the major chemical components of  $PM_{10}$  were 52.6 Gg (sulfate), 48.2 Gg (nitrite), 32.1 Gg (ammonium), 22.9 Gg (black carbon), and 74.1 Gg (organic carbon). Primary organic carbon (POC) and secondary organic carbon (SOC) accounted for 60% and 40% of the total organic carbon (OC) burden, respectively. In eastern China, anthropogenic aerosols and dust aerosols accounted for 30% and 70% of the total  $PM_{10}$  burden, respectively, indicating the important contribution of dust to airborne aerosol mass in China in the spring.

**Keywords** Numerical simulation, Aerosol components,  $PM_{2.5}$ , Eastern China

## 1 引言

气溶胶在许多大气化学过程中扮演着重要的角色, 对人体健康、大气环境及气候变化等有显著影响。在对人体健康的影响方面, 目前已有大量流行病学研究表明大气气溶胶可能对人体健康产生危害, 主要表现在对心血管疾病, 呼吸系统疾病, 过敏症状的发病率和死亡率的影响, 以及对疾病传播的影响等方面 (Harrison, 2000; Pöschl, 2005)。在大气环境方面, 气溶胶可以降低能见度, 同时, 它也是造成空气污染的主要原因和主要污染物, 尤其是在人类排放较强的大城市、工业区、生物质燃烧地区及周边地区 (Lelieveld et al., 2001)。气溶胶还可通过吸收、散射短波和长波辐射, 通过作为云凝结核改变云的光学性质和寿命来直接或间接地影响辐射收支平衡和气候系统, 在气候变化中扮演重要的角色 (Ramanathan et al., 2001; IPCC 2007; 石广玉等, 2008; 姜大膀和富元海, 2012)。由于经济的持续发展和能源的大量消耗, 近几十年来, 中国的气溶胶排放和大气中气溶胶的浓度都很高, 造成了一系列环境问题并可能对区域季风气候产生重要的影响, 因此, 气溶胶问题的研究具有重要的科

学意义和社会价值, 而了解气溶胶化学组成的时空分布和变化特征是气溶胶环境和气候效应研究的前提。

大气气溶胶模式的建立始于 20 世纪 70 年代, 如 Chun and Seinfeld (1975)、Peterson and Seinfeld (1977)、Gelbard and Seinfeld (1979) 等。早期的气溶胶模式中物理、化学过程非常简单, 发展至今已可以比较合理地反映气溶胶在大气中的输送、扩散、沉降和化学转化等过程, 通过与大气化学模式耦合, 在大气化学和环境研究领域得到广泛的应用 (颜鹏等, 2004)。目前, 具有代表性并应用较为广泛的大气化学模式有: WRF/CHEM (The Weather Research and Forecasting–Chemistry model) (Grell et al., 2005)、CMAQ (the three-dimensional models-3/Community Multiscale Air Quality model) (Lee et al., 2007)、CAMx (Comprehensive Air Quality Model with Extensions) (Gaydos et al., 2007) 等, 用于研究城市和区域尺度气溶胶的时空分布、演变过程和大气化学反应机理等。利用网格嵌套, 全球模式也可以用于区域性污染和大陆或区域之间的化学物质输送, 如 GEOS-Chem (the Goddard Earth Observing System–Chemistry) (Bey et al., 2001)。近

年来,国内学者在模式发展和模拟研究方面也开展了大量工作,如 An et al. (2013) 利用 WRF/Chem 模拟研究了 HONO 新增源和化学反应对气溶胶化学组分以及灰霾形成的影响; Jiang et al. (2008) 利用 WRF/CHEM 研究了台风影响下香港地区的光化学污染演变过程; 张美根和韩志伟 (2003) 以及 Zhang et al. (2007) 利用 CMAQ-RAMS (Community Multi-scale Air Quality Modeling System-Regional Atmospheric Modeling System), 结合 2001 年春季 TRACE-P (the NASA Transport and Chemical Evolution over the Pacific) 和 ACE-Asia (the Aerosol Characterization Experiments-Asia) 观测资料,对东亚地区主要气溶胶成分进行了模拟研究; Wang et al. (2006) 利用发展的嵌套网格空气质量预报模式系统 NAQPMS (Nested Air Quality Prediction Modeling System) 研究了中国东部高臭氧污染事件的产生和演变过程; Han et al. (2004, 2006, 2007) 利用空气质量模式 RAQMS 研究了东亚地区沙尘暴、酸沉降、污染物长距离输送等环境问题。吴润和符淙斌 (2005) 利用区域气候模式 RegCM3 分析了春季东亚地区黑碳气溶胶的分布、输送及其气候效应。尽管当前气溶胶模式能比较合理地反映气溶胶的输送和分布,但对气溶胶化学成分和化学反应机制的研究仍有不足。

目前中国气溶胶的观测虽然和以往相比已增加许多,但对气溶胶化学成分的观测仍然有限,而且气溶胶观测主要还是集中在城市地区,区域的代表性不够;对中国气溶胶来源、产生机制和及其主要化学成分时空分布仍需进一步研究和认识。本研究利用区域空气质量模式系统 RAQMS、INTEX-B 人为排放清单和泰山站的气溶胶化学成分观测资料,对春季中国东部地区气溶胶及其化学组成进行了模拟研究,对于了解目前我国气溶胶化学成分时空分布和演变机理具有重要的意义。

## 2 模式系统介绍

区域空气质量模式 RAQMS 是建立在地形追随球坐标上的三维欧拉模式 (An et al., 2002; Han et al., 2007)。该模式中包含了大气微量成分在大气中的物理和化学过程,如输送、扩散、干/湿沉降、气相/液相/非均相化学、云过程等。目前,该模式已用于一系列大气环境问题的研究,如:臭氧和氧化剂、酸沉降、沙尘暴、颗粒物污染等 (Han et al., 2004,

2006, 2008)。模式中,气相化学部分采用 CB-IV 方案 (the Carbon Bond Mechanism IV) (Gery, 1989), 包含了 37 种成分, 91 个化学反应。硫酸盐、硝酸盐、铵盐等无机盐气溶胶的热力学平衡过程的描述采用热力学平衡模式 ISORROPIA (Nenes et al., 1998)。二次有机气溶胶的产生是基于实验室数据的经验描述 (Odum et al., 1997; Griffin et al., 1999), 包含了 2 种人为源前体物和 12 种自然源前体物。气溶胶分为细粒子 (空气动力学直径  $< 2.5 \mu\text{m}$ ) 和粗粒子 ( $2.5 \sim 10 \mu\text{m}$ ) 两个粒径段,可以代表  $\text{PM}_{2.5}$  (空气动力学当量直径在 2.5 微米以下的颗粒物) 和  $\text{PM}_{10}$  (空气动力学当量直径在 10 微米以下的颗粒物)。硫酸盐的核化、凝结采用的是 McMurry and Friedlander (1979) 方案。气-粒质量传输采用 CIT 方案 (the California/ Carnegie-Mellon Institute of Technology) (Meng et al., 1998)。非均相化学采用 Jacob (2000) 提出的参数化方案,包括了  $\text{HO}_2$ 、 $\text{NO}_2$ 、 $\text{NO}_3$  和  $\text{N}_2\text{O}_5$  在水滴和云滴表面的反应。干沉降速率表示为总阻力的倒数与重力沉降速率之和 (Han et al., 2004)。黑碳和有机碳的干沉积速度采用 Uno et al. (2003) 的方案,即在陆地和海洋上分别取为  $10^{-3}$  和  $10^{-4} \text{ m s}^{-1}$ 。次网格云内混合、液相化学转化和湿清除过程与 RADM (Regional Acid Deposition Model) 内的云微物理子模块和液相化学模块相似 (Chang et al., 1987)。模式中人为排放源取自美国宇航局 NASA 的 INTEX-B (Intercontinental Chemical Transport Experiment-Phase B) 排放清单,基准年是 2006 年,分辨率为  $0.5^\circ$ ,主要包括二氧化硫 ( $\text{SO}_2$ )、氮氧化物 ( $\text{NO}_x$ )、一氧化碳 ( $\text{CO}$ )、 $\text{PM}_{10}$ 、 $\text{PM}_{2.5}$ 、黑碳 (BC)、有机碳 (OC) 和非甲烷挥发性有机物 (NMVOC) (Zhang et al., 2009)。氨 ( $\text{NH}_3$ ) 的人为排放源来自于以 2000 年为基准的 TRACE-P 排放清单。生物质燃烧源来自 GFEDv2 (Global Fire Emission Database version 2) (van der Werf et al., 2006), 物种包括  $\text{NO}_x$ 、NMVOC、 $\text{CO}$ 、BC、OC 等。植被排放的挥发性有机物 (VOC) 来自 GEIA 排放清单 (<http://www.geiacenter.org/> [2013-04-19])。其中, GFEDv2 与 GEIA 为月平均排放数据。Zhang et al. (2009) 通过分析能源消耗的变化趋势,得到人为源的月变化规律,本文根据上述规律和人为年排放总量得到研究时段 (3、4 月) 的月排放量。

模式采用  $1^\circ \times 1^\circ$  的 NCEP 再分析资料为中尺度

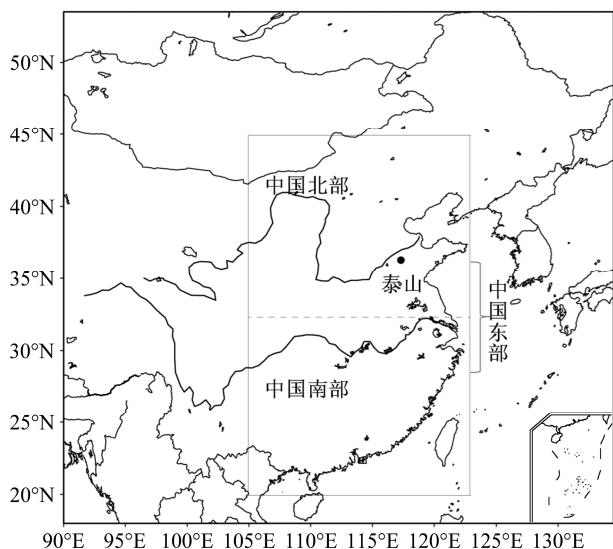


图1 研究区域、分区和泰山观测站的位置(实线方框所示为中国东部, 实心点为泰山位置)

Fig. 1 The model domain, sub-regions, and geographical locations of the Taishan monitoring site. Rectangle: eastern China; dot: Taishan station

气象模式 MM5 提供初始和边界条件, 再由 MM5 (the Fifth-Generation Penn State/NCAR Mesoscale Model) 计算的气象场来驱动 RAQMS。RAQMS 模式采用经纬度网格, 分辨率为  $0.5^\circ$ ; 垂直方向采用  $\sigma$ - $z$  坐标, 由地表至 10 km, 分为 12 层, 其中 6 层在边界层内。模拟区域为 ( $18^\circ\text{N}\sim 53.5^\circ\text{N}$ ,  $90^\circ\text{E}\sim 134.5^\circ\text{E}$ ) (图 1) 涵盖了中国大部分地区及周边部分区域。模拟时间从 2009 年 3 月 20 日 00:00 (协调世界时) 开始至 2009 年 4 月 30 日 00:00 (协调世界时), 前 12 天为初始化阶段。为便于分析, 将中国东部定义为 ( $20^\circ\text{N}\sim 45^\circ\text{N}$ ,  $105^\circ\text{E}\sim 123^\circ\text{E}$ ), 将中国东部地区大致再划分为南部 ( $20^\circ\text{N}\sim 32.5^\circ\text{N}$ ,  $105^\circ\text{E}\sim 123^\circ\text{E}$ ) 与北部 ( $32.5^\circ\text{N}\sim 45^\circ\text{N}$ ,  $105^\circ\text{E}\sim 123^\circ\text{E}$ )。

### 3 观测资料

为检验模式结果, 将模式模拟的主要气溶胶化学成分的质量浓度与位于山东中部的泰山站点 ( $36.27^\circ\text{N}$ ,  $117.10^\circ\text{E}$ , 海拔高度 1545 m) 的观测资料 (Wang et al., 2011) 进行了对比。泰山站是中国东部重要的郊区监测站, 具有很好的区域代表性。PM<sub>10</sub> 样本由体积采样器采得 (KC-120H, Qingdao Laoshan Company, China), 9 阶式分段取样器 (Andersen, USA) 将粒子按不同粒径采集。采样时间从 2009 年 3 月 27 日持续至 4 月 29 日, 日均

值由前一日晚 18:00 (北京时间) 到当日晚 18:00 (北京时间) 的膜采样样本分析得到, 观测气溶胶化学成分有硫酸盐、硝酸盐、铵盐、黑碳、有机碳等, 其中, 3 月 30 日、3 月 19 日缺测, 4 月 24 日 BC 缺测。

## 4 结果与分析

### 4.1 排放源

图 2 所示为模拟区域内月均排放源的分布。SO<sub>x</sub> (图 2a)、NO<sub>x</sub> (图 2b)、NH<sub>3</sub> (图 2c) 三者的空间分布类似, 强排放源主要集中分布在华北地区、四川东部和重庆地区、长江中下游地区以及珠三角地区, 尤其是人为活动最为密集的大城市。其中 SO<sub>x</sub> 排放量最大, 在上述地区排放强度约为  $2.5\text{ mg m}^{-2}\text{ h}^{-1}$ , 城市地区高达  $7\text{ mg m}^{-2}\text{ h}^{-1}$ ; NO<sub>x</sub> 排放量次之, 高值区排放强度约  $1\sim 2\text{ mg m}^{-2}\text{ h}^{-1}$ , 部分地区高达  $7\text{ mg m}^{-2}\text{ h}^{-1}$ ; NH<sub>3</sub> 排放量在四川东部、重庆地区、长江中下游排放量约为  $1\sim 1.5\text{ mg m}^{-2}\text{ h}^{-1}$ 。BC (图 2d) 的强排放源主要集中于中国北部、四川东部及重庆地区, 排放量约为  $0.1\sim 0.3\text{ mg m}^{-2}\text{ h}^{-1}$ 。OC (图 2e) 与 BC 分布相似, 强排放源主要集中于华北地区、重庆地区、长江中下游、云南及珠江三角洲等地, 排放量约为  $0.3\sim 0.45\text{ mg m}^{-2}\text{ h}^{-1}$ 。NMVOC (图 2f) 的排放源高值主要在中国西南、东部和东北大部分地区, 排放量可高达  $8\text{ mg m}^{-2}\text{ h}^{-1}$ 。

表 1 所示为模拟区域中, 四月份中国地区主要排放源的月排放总量, 分别为: 2618 Gg/月 (SO<sub>x</sub>)、1777 Gg/月 (NO<sub>x</sub>)、763 Gg/月 (NH<sub>3</sub>)、174 Gg/月 (BC)、388 Gg/月 (POC) 和 2765 Gg/月 (NMVOC)。大部分排放源 (65%~90%) 集中于中国东部地区。其中以 SO<sub>x</sub> 的月排放总量最大, 比 NO<sub>x</sub> 高出约 50%。BC 的月排放总量最小, 约为 POC 排放量的 45%。就排放源的南北差异而言, SO<sub>x</sub>、NH<sub>3</sub> 和

表 1 四月中国地区主要大气成分月排放总量 (单位: Gg/月)  
Table 1 Emissions of major atmospheric components in China in Apr (units: Gg/month)

	中国地区	中国东部	中国北部	中国南部
SO <sub>x</sub>	2618	2320	1147	1173
NO <sub>x</sub>	1777	1485	748	737
NH <sub>3</sub>	763	644	321	323
BC	174	135	77	58
OC	388	246	121	125
VOC	2765	1838	810	1029

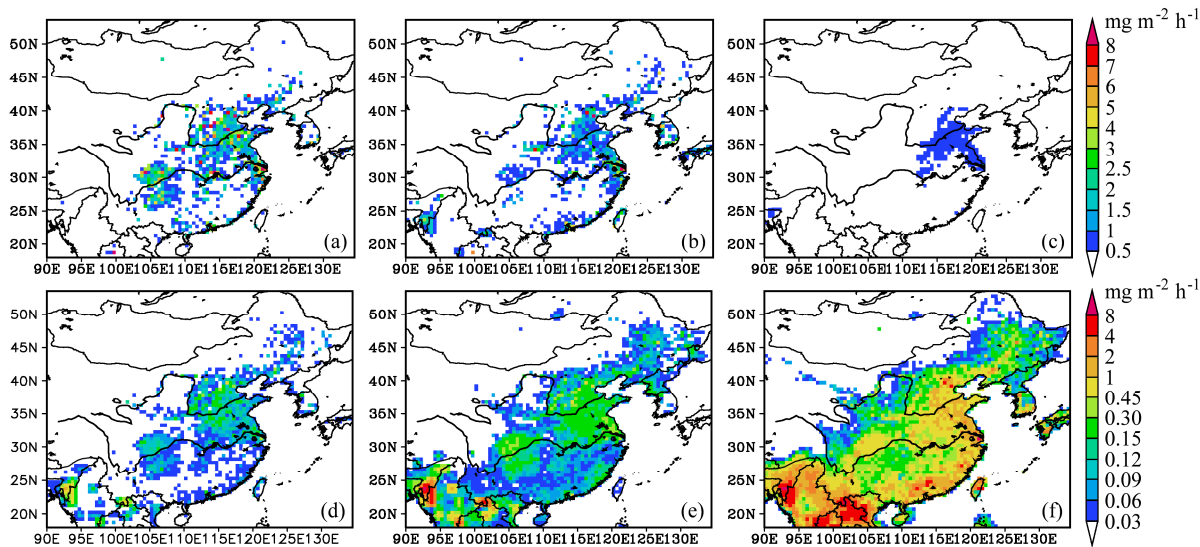


图2 中国地区主要大气成分排放源分布(排放强度单位:  $\text{mg m}^{-2} \text{h}^{-1}$ ): (a)  $\text{SO}_x$ ; (b)  $\text{NO}_x$ ; (c)  $\text{NH}_3$ ; (d) BC; (e) OC; (f) NMVOC  
Fig. 2 Distribution of emission intensity ( $\text{mg m}^{-2} \text{h}^{-1}$ ) of major atmospheric components in the study domain: (a)  $\text{SO}_x$ , (b)  $\text{NO}_x$ , (c)  $\text{NH}_3$ , (d) BC, (e) OC, (f) NMVOC

POC 在中国北部和中国南部的月排放总量相当;  
 $\text{NO}_x$  和 BC 在中国北部的含量比中国南部略高; 而  
NMVOC 在中国南部的月排放总量比在中国北部高  
出约 30%。

4.2 模式结果与观测数据对比

模式模拟结果与观测资料进行了对比。图 3 给出的是 2009 年 4 月 1 日至 4 月 26 日在泰山站模拟和观测的  $\text{PM}_{10}$  中主要气溶胶化学成分日均浓度随时间变化。人为气溶胶浓度为硫酸盐、硝酸盐、铵盐、黑碳和有机碳浓度之和。从图 3 可以看出, 模式能合理地反映气溶胶浓度的逐日变化趋势。总体上, 模式对无机盐(硫酸盐、硝酸盐和铵盐)的模拟较好, 与观测值很接近。模拟的 BC 浓度值比观测偏高约 30%, 其原因一方面可能与排放源的不确定有关, 另一方面模式网格分辨率相对较粗, 对于局地排放源、地形和下垫面以及中小尺度输送和扩散过程的代表性不够, 这都会使模拟产生偏差。有机碳模拟值比观测偏低约 50%, 这可能与模式中 SOA(二次有机气溶胶)化学机制不尽合理有关, 目前大气化学模式通常都会低估有机碳浓度, 因为一些潜在重要的 SOA 前体物及其化学反应过程和参数仍不清楚, SOA 是目前大气化学研究中的难点。值得注意的是, 在 4 月 24 日, 泰山站 OC 浓度的观测值骤升至 39.7, 而模拟值只有小的增加, 远低于观测值。由于这天伴随着一次明显的沙尘过程, 因此 OC 浓度的升高可能与北边排放的 OC 南传以及输送过程中 SOA 的化学产生有关; Wang et al. (2012) 指

出, 通常情况下, 泰山站的 OC 主要源于局地排放, 以细粒子居多。而沙尘期间, OC 主要是粗粒子, POC 所占比重较高。模拟结果的偏差可能与 OC 一次排放源以及沙尘期间 SOA 产生机制(如气-粒转化)的不确定有关, 需要今后进一步研究。另外, 4 月 11 至 13 日, 气溶胶浓度有积累增加的趋势, 这主要受天气形势的影响, 将在后面详述。表 2 给出的是 4 月 1 日至 4 月 26 日观测和模拟的  $\text{PM}_{10}$  中气溶胶主要化学成分的平均浓度。模式模拟和观测的人为气溶胶浓度分别为  $54.1 \mu\text{g m}^{-3}$  和  $62.0 \mu\text{g m}^{-3}$ , 日均值相关系数约为 0.7, 说明模式可以比较准确地反映中国东部人为气溶胶的日变化规律和区域平均值。

表 2 4 月 1~26 日泰山气溶胶平均浓度观测值与模拟值比较(单位:  $\mu\text{g m}^{-3}$ )

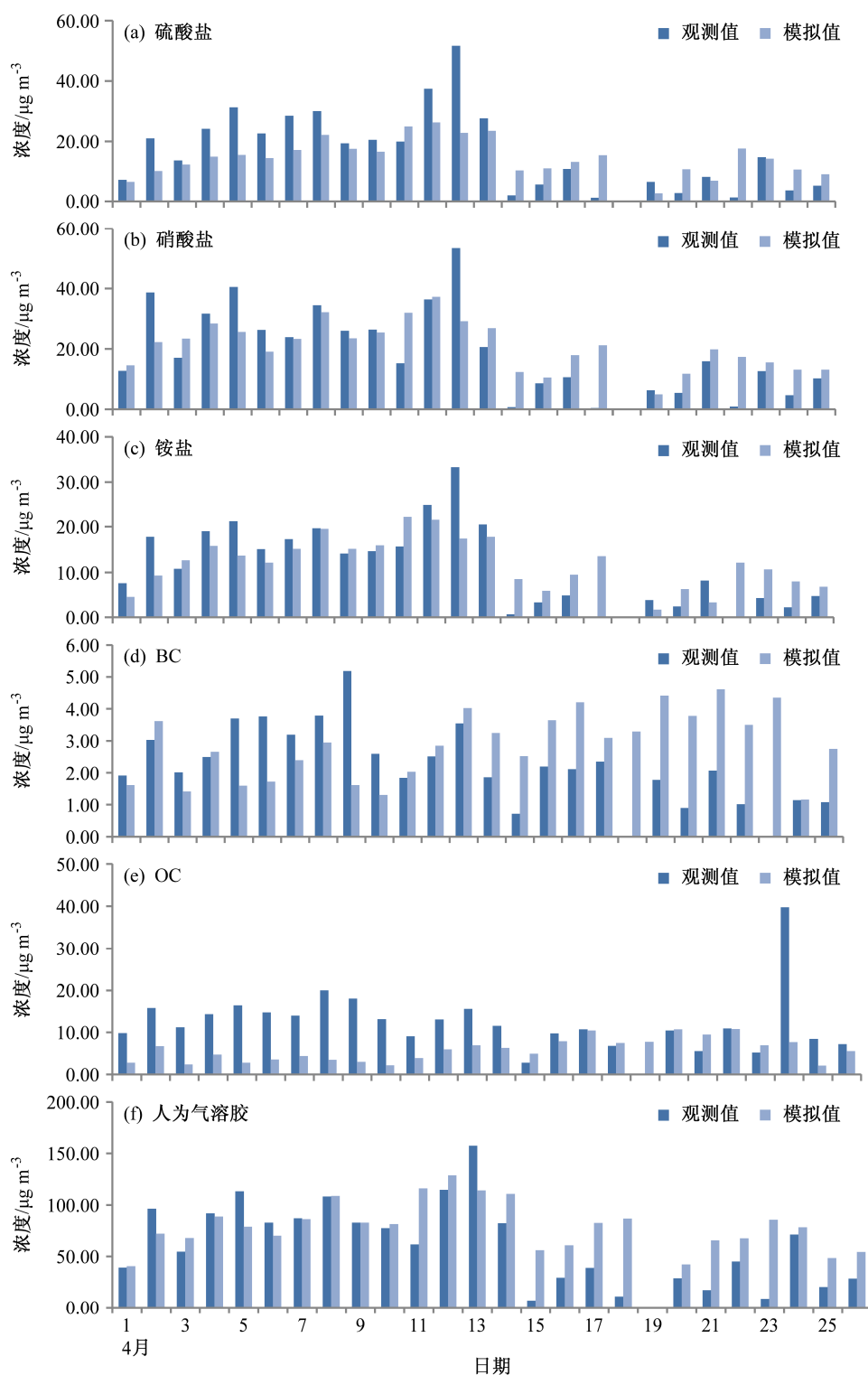
Table 2 Model predicted and observed average concentrations of aerosol components during 1–26 April 2009 at Taishan station (units:  $\mu\text{g m}^{-3}$ )

	硫酸盐	硝酸盐	铵盐	BC	OC	人为气溶胶
观测值	16.6	19.2	11.4	2.3	12.6	62.0
模拟值	14.5	20.8	11.9	2.9	5.8	54.1

4.3 气溶胶浓度分布

4.3.1 近地面  $\text{PM}_{10}$  主要化学成分和  $\text{PM}_{2.5}$  浓度

图 4a 至图 4f 显示的是  $\text{PM}_{10}$  中化学组分的浓度及其空间分布。图 4a 至图 4c 分别给出了  $\text{PM}_{10}$  中硫酸盐、硝酸盐和铵盐的近地面浓度分布。可以看到, 无机盐气溶胶中, 与硫酸盐相比, 硝酸盐浓度空间分布更均匀, 但城市附近硫酸盐浓度大于硝酸

图3 泰山站  $PM_{10}$  中气溶胶化学成分日平均浓度模拟与观测对比Fig. 3 Model predicted and observed daily mean concentrations of aerosol components in  $PM_{10}$  at Taishan station

盐, 铵盐浓度相对较低。硫酸盐在华北、四川东部和重庆地区、长江中下游地区浓度值在  $15 \sim 25 \mu g m^{-3}$  左右, 城市附近能达到  $60 \mu g m^{-3}$ 。硝酸盐的浓度高值区主要在华北和长江中下游地区, 浓度约

为  $25 \sim 40 \mu g m^{-3}$ , 四川东部、重庆地区和珠江三角洲次之, 浓度约为  $15 \sim 25 \mu g m^{-3}$ 。铵盐的分布与硫酸盐、硝酸盐相似, 而浓度相对较低, 在上述地区约为  $15 \sim 20 \mu g m^{-3}$ 。图 4d 至图 4f 分别给出了 BC、POC

和 SOC 的近地面浓度分布。BC 在华北、四川东部和重庆地区浓度高, 最大可达  $10 \mu\text{g m}^{-3}$ 。POC 浓度的高值区主要位于华北地区、四川东部和重庆地区、云南南部及广西西南部, 浓度约为  $15\sim 20 \mu\text{g m}^{-3}$ 。特别是云南南部, 受东南亚生物质燃烧源和输送的影响, POC 浓度可高达  $50 \mu\text{g m}^{-3}$ 。SOC 浓度低于 POC, 其高值区主要在中国东部的黄河以南地区和中国南部, 其中云南南部浓度最高, 可达  $10\sim 15 \mu\text{g m}^{-3}$ , 其次是长江中游和中国东南部部分地区, 浓度约为  $2\sim 3 \mu\text{g m}^{-3}$ 。

由于  $\text{PM}_{2.5}$  对于空气质量、能见度和人体健康影响的重要性, 图 4g 至图 4i 给出了近地面  $\text{PM}_{2.5}$ 、 $\text{PM}_{2.5}$  中沙尘浓度和  $\text{PM}_{2.5}$  中人为气溶胶浓度的分布图。可以看到, 中国东部  $\text{PM}_{2.5}$  质量浓度主要是人为气溶胶的贡献, 而中西部主要受沙尘影响。人为  $\text{PM}_{2.5}$  高值主要分布于华北、四川东部、长江中下游及珠三角地区, 浓度值约为  $50\sim 100 \mu\text{g m}^{-3}$ 。沙尘浓度在中国西北部的戈壁、沙漠地区约为  $40\sim 60 \mu\text{g m}^{-3}$ 。春季, 中国东部大部分地区  $\text{PM}_{2.5}$  浓度 (图 4g) 高于  $30 \mu\text{g m}^{-3}$ , 在华北、四川东部、长江中下游等地高于  $80 \mu\text{g m}^{-3}$ 。根据环境保护部和国家质量监督检验检疫局于 2012 年联合发布的《环境空气质量标准》(GB 3095-2012), 我国二类区 (居住区、工业区和农村地区等) 年平均和日平均  $\text{PM}_{2.5}$  浓度限值分别为  $35 \mu\text{g m}^{-3}$  和  $75 \mu\text{g m}^{-3}$ 。图 4g 显示中国华北、四川东部和长江中下游等地区  $\text{PM}_{2.5}$  污染较为严重, 4 月平均  $\text{PM}_{2.5}$  浓度都超过了日平均浓度限值。

泰山站 (图 3) 的对比显示 4 月 11 日至 4 月 13 日泰山地区气溶胶浓度明显增加, 其中 4 月 13 日观测的  $\text{PM}_{10}$  的日均浓度超过  $150 \mu\text{g m}^{-3}$ 。图 5 给出了 4 月 11 日、12 日 08 时 (北京时间) 的近地面天气图, 从图中可以看到, 4 月 12 日 (图 5b) 泰山附近受高压控制, 天气形势稳定, 风速小, 导致湍流扩散弱, 有利于污染物的累积。图 6 给出了 4 月 11 日和 12 日 08 时 (北京时间) 近地面硫酸盐气溶胶的浓度分布。从图中可以看到, 4 月 11 日泰山附近硫酸盐浓度较小。4 月 12 日泰山地区风速明显减小, 而硫酸盐气溶胶浓度增加。这是一次在静稳天气条件下, 污染物堆积造成的污染事件。

#### 4.3.2 气溶胶柱浓度分布和区域含量

图 7 所示为春季中国地区  $\text{PM}_{10}$  中气溶胶主要化学成分在对流层的柱浓度分布。图 8 为模拟期间

850 hPa 的平均风场, 主要特征为  $35^\circ\text{N}$  以北的西北气流和  $30^\circ\text{N}$  以南的西南气流, 以及中国东部  $30^\circ\text{N}\sim 35^\circ\text{N}$  附近的辐合带和小风区。在此环流形势的影响下, 中国北方的沙尘和人为污染物向南输送, 而东南亚地区生物质燃烧产生的污染物向中国南部和东部输送, 来自于中国北方和东南亚的污染物在长江流域上空辐合并继续向西太平洋输送。大气环流形势的差异导致了地面与高空气溶胶浓度分布形式有所不同。图 7a 至图 7c 所示分别为硫酸盐、硝酸盐和铵盐的柱浓度。硫酸盐高值区 ( $25\sim 30 \text{ mg m}^{-2}$ ) 主要在四川东部、重庆、黄河下游和长江中下游地区, 重庆及其附近地区最大值超过  $35 \text{ mg m}^{-2}$ 。硝酸盐在中国东部的长江以北地区浓度较高, 约  $30\sim 35 \text{ mg m}^{-2}$ 。铵盐的分布与硫酸盐、硝酸盐相似, 但浓度相对较低, 在上述地区浓度约为  $15\sim 25 \text{ mg m}^{-2}$ 。图 7d 至图 7f 所示分别为 BC、POC 和 SOC 的柱浓度分布。BC 在四川东部到长江中游一带以及华北部分地区柱浓度较高, 约为  $9\sim 15 \text{ mg m}^{-2}$ , 重庆地区高达  $20 \text{ mg m}^{-2}$ 。OC 在中国南部的柱浓度明显高于北部, 尤其是云南和广西西南部, 受东南亚生物质燃烧源和西南气流输送的影响, POC 的柱浓度约为  $20\sim 40 \text{ mg m}^{-2}$ , 而 SOC 在这一地区的柱浓度约为  $15\sim 30 \text{ mg m}^{-2}$ , POC 在四川地区的柱浓度也较高, 最大可达  $30 \text{ mg m}^{-2}$ 。中国长江以南 SOC 的柱浓度在  $7\sim 20 \text{ mg m}^{-2}$ , 明显高于北方 (约  $7 \text{ mg m}^{-2}$ ), 这一方面是受东南亚生物质燃烧的影响, 另一方面春季南方植被排放 VOC 更强, 产生的 SOC 更多。本文就模拟的气溶胶柱浓度与别人文献中东亚地区柱浓度的模拟结果进行了对比。而由于模式机制不同、所采用的排放源不同, 模拟时段不同等因素, 不同模式间的模拟结果会存在一定差异。图 7a 中的硫酸盐柱浓度、图 7e、f 中的 POC 和 SOC 柱浓度与张美根和韩志伟 (2003)、Zhang (2004) 中模拟的柱浓度在分布上基本一致, 但绝对值要高一些。

表 3 给出了研究区域内, 中国不同区域 (图 1) 对流层中主要气溶胶化学成分的含量。春季中国地区  $\text{PM}_{10}$  含量为 991 Gg, 其中人为气溶胶和沙尘的含量分别为 221 Gg 和 769 Gg, 人为气溶胶约占  $\text{PM}_{10}$  含量的 22%, 反映了春季沙尘对  $\text{PM}_{10}$  的重要贡献。其中中国东部人为  $\text{PM}_{10}$  含量为 185 Gg, 约占  $\text{PM}_{10}$  的 30%, 而中国南部人为  $\text{PM}_{10}$  含量 (106 Gg) 明显大于北部 (79 Gg), 约占总  $\text{PM}_{10}$  的 40%。



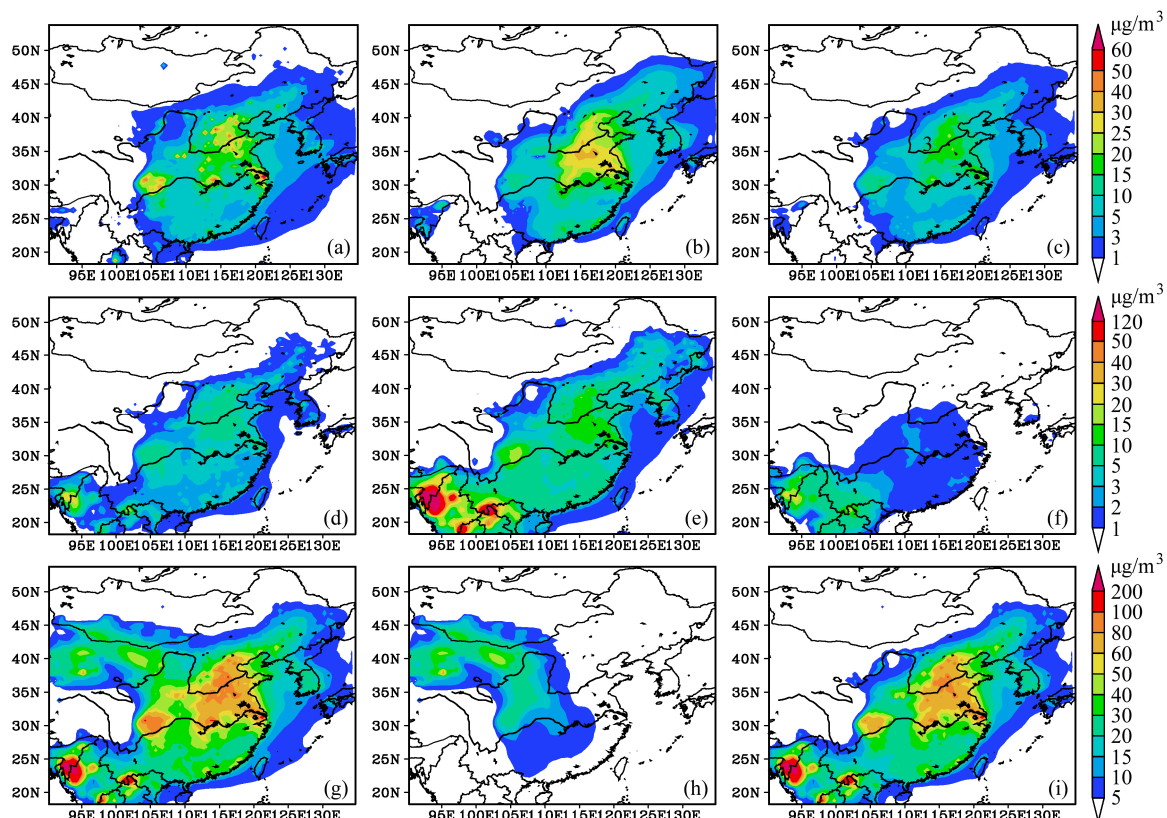


图4 春季中国地区近地面  $PM_{10}$  中气溶胶主要化学成分浓度 ( $\mu g m^{-3}$ ): (a) 硫酸盐; (b) 硝酸盐; (c) 铵盐; (d) BC; (e) POC; (f) SOC; (g)  $PM_{2.5}$ ; (h) 沙尘  $PM_{2.5}$ ; (i) 人为  $PM_{2.5}$

Fig. 4 Major aerosol components concentration in  $PM_{10}$  for near surface in China during spring ( $\mu g m^{-3}$ ): (a) Sulfate, (b) nitrate, (c) ammonium, (d) BC, (e) POC, (f) SOC, (g)  $PM_{2.5}$ , (h) dust  $PM_{2.5}$ , (i) anthropogenic  $PM_{2.5}$

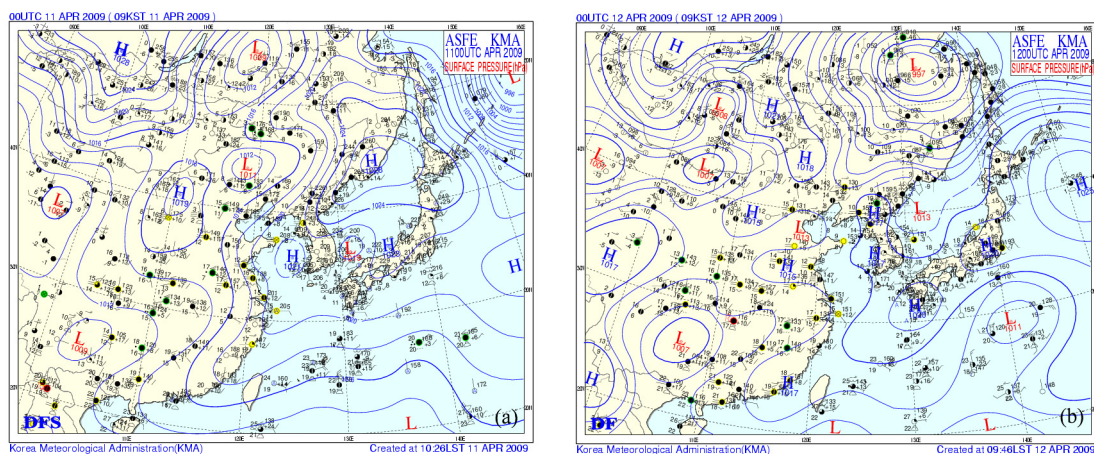


图5 4月 (a) 11日、(b) 12日 08:00 (北京时间) 近地面天气图

Fig. 5 Near-surface weather map at 0800 LST on (a) 11 April and (b) 12 April

在人为气溶胶中 OC 含量最高, 中国地区为 74 Gg, 其中 POC 和 SOC 分别占 60%和 40%, 中国南部 POC 和 SOC 含量明显大于北部, 这主要是东南亚生物质燃烧排放和输送的影响。中国地区黑碳的含量为 23 Gg, 约为 OC 含量的 1/3, 中国南部黑碳的

含量约为北部的两倍。研究发现春季东南亚排放源 (主要是生物质燃烧源) 对中国东部碳气溶胶浓度有重要的影响, 对黑碳和有机碳的贡献分别可达 30%和 50%, 其对中国南部的影响明显大于中国北部。中国地区硫酸盐、硝酸盐和铵盐的含量分别为



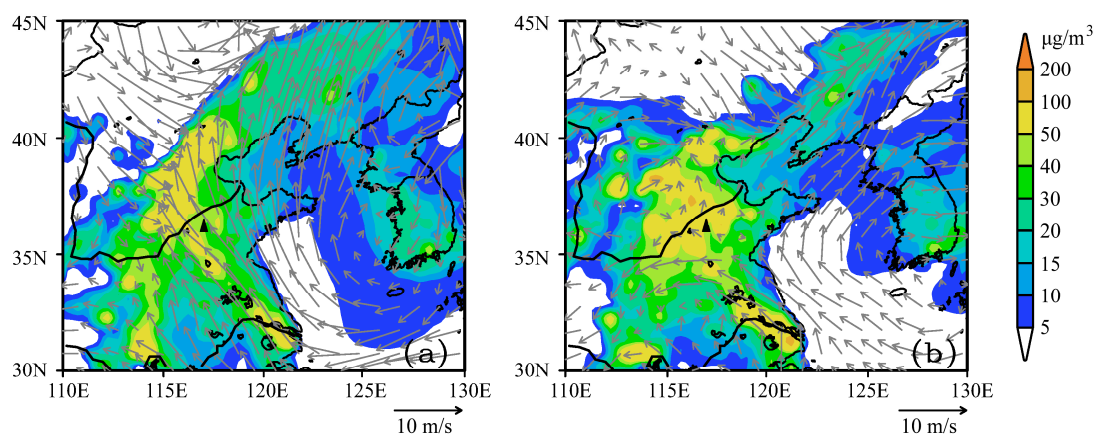


图6 模式模拟的2009年(a)4月11日、(b)4月12日08:00(北京时间)近地面硫酸盐浓度( $\mu\text{g m}^{-3}$ )分布(三角所示为泰山位置;箭头代表风矢量)  
Fig. 6 The model simulated near-surface sulfate concentration ( $\mu\text{g m}^{-3}$ ) at 0800 LST on (a) 11 and (b) 12 April 2009 (Triangles denote the location of Taishan station; the arrows represent wind vectors)

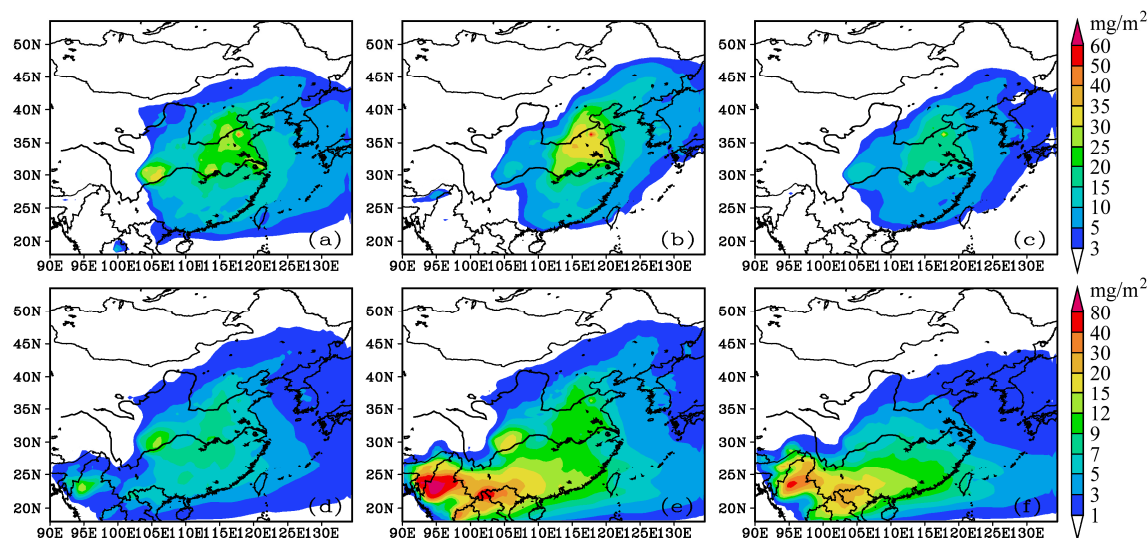


图7 模式模拟的 $\text{PM}_{10}$ 中气溶胶主要化学成分的柱浓度( $\text{mg m}^{-2}$ ): (a) 硫酸盐; (b) 硝酸盐; (c) 铵盐; (d) BC; (e) POC; (f) SOC  
Fig. 7 The model simulated column burdens of aerosol components (unit:  $\text{mg m}^{-2}$ ): (a) Sulfate, (b) nitrite, (c) ammonium, (d) BC, (e) POC, (f) SOC

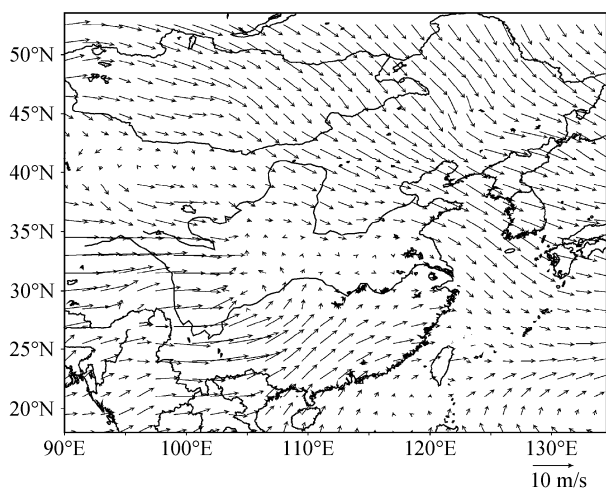


图8 模式模拟的研究时段平均850 hPa平均风场  
Fig. 8 The model simulated wind vectors at 850 hPa in the study period

53 Gg、48 Gg 和 32 Gg, 其中约 90%集中于中国东部地区, 无机气溶胶在中国南部(59 Gg)和北部(57 Gg)的含量是相当的; 虽然在近地面泰山站观测和模拟都显示硝酸盐浓度已超过硫酸盐, 但整个对流层, 中国地区和中国东部硫酸盐含量(53 Gg, 46 Gg)仍大于硝酸盐(48 Gg, 42 Gg), 这是因为在高空, 除了 $\text{SO}_2$ 的气相转化反应, 硫酸盐还可通过云内液相化学反应产生, 从而增加整层硫酸盐的浓度。值得注意的是在中国北部硝酸盐含量(22 Gg)接近甚至超过硫酸盐(21 Gg), 与泰山站的对比结果一致, 但在中国南部, 硫酸盐含量(25 Gg)明显大于硝酸盐(20 Gg), 这与春季中国云量南多北少的分布特征(吴蓬萍和韩志伟, 2011)以及上述硫酸盐云内液相反应有关, 此外, 中国南部气温高于北部, 可能不利于颗粒态硝酸盐的形成。值得注

意的是,不同于泰山站的观测结果,我国仍有许多城市和地区地面观测的硫酸盐浓度仍大于硝酸盐,这与局地能源结构、气象和环境条件有关,但和本研究得到的中国东部对流层中硫酸盐柱含量仍大于硝酸盐的结果是一致的。

表3 春季中国地区对流层中PM<sub>10</sub>及其主要化学成分的含量(单位: Gg)

Table 3 Burdens of PM<sub>10</sub> and major chemical components in the troposphere of China in spring (units: Gg)

	中国地区	中国东部	中国北部	中国南部
硫酸盐	52.57	45.78	21.18	24.59
硝酸盐	48.18	42.19	22.44	19.75
铵盐	32.11	28.12	13.91	14.21
BC	22.87	18.64	6.79	11.85
OC	74.14	50.60	12.74	37.86
POC	43.57	30.56	9.01	21.55
SOC	30.57	20.04	3.73	16.31
人为 PM <sub>10</sub>	221.46	185.11	78.70	106.39
沙尘 PM <sub>10</sub>	769.29	481.87	299.00	182.87
PM <sub>10</sub>	990.75	666.98	377.70	289.26

## 5 结论

本文利用区域空气质量模式 RAQMS 对春季中国东部气溶胶化学组成及其分布和演变特征进行了模拟研究,主要结论如下:

(1) 与泰山的观测结果比对显示,模式模拟和观测的 PM<sub>10</sub> 中人为气溶胶浓度分别为 54.1  $\mu\text{g m}^{-3}$  和 62.4  $\mu\text{g m}^{-3}$ ,日均值相关系数为 0.7,说明模式能较好地反映中国东部人为气溶胶的区域平均值和日变化规律。

(2) 在近地面,春季气溶胶浓度高值主要集中在华北、四川东部、长江中下游等地区。受东南亚生物质燃烧和输送的影响,云南和广西南部有机碳浓度高。中国华北、四川东部和长江中下游等地区 PM<sub>2.5</sub> 污染较为严重,4 月平均 PM<sub>2.5</sub> 浓度都超过了日平均浓度限值。

(3) 中国北部对流层内硝酸盐柱含量超过硫酸盐,与泰山站观测和模拟结果一致,而中国南部硫酸盐含量高于硝酸盐。虽然中国东部硫酸盐含量(46 Gg)仍大于硝酸盐(42 Gg),但二者比较接近,反映了中国东部氮氧化物排放的迅速增加。

(4) 中国地区 PM<sub>10</sub> 及其化学成分的对流层柱含量分别为: 990.8 (PM<sub>10</sub>), 52.6 Gg (硫酸盐), 48.2 Gg (硝酸盐), 32.1 Gg (铵盐), 22.9 Gg (BC) 和 74.1 Gg (OC) (其中 POC 和 SOC 各占 60%和

40%)。2009 年春季中国东部 PM<sub>10</sub> 中人为和沙尘气溶胶分别占 30%和 70%,反映了沙尘的重要贡献。

## 参考文献 (References)

- An J L, Ueda H, Wang Z F, et al. 2002. Simulations of monthly mean nitrate concentrations in precipitation over East Asia [J]. *Atmos. Environ.*, 36 (26): 4159–4171.
- An J L, Li Y, Chen Y, et al. 2013. Enhancements of major aerosol components due to additional HONO sources in the North China Plain and implications for visibility and haze [J]. *Advances in Atmospheric Sciences*, 30 (1): 57–66.
- Bey I, Jacob D J, Yantosca R M, et al. 2001. Global modeling of tropospheric chemistry with assimilated meteorology: Model description and evaluation [J]. *J. Geophys. Res.*, 106 (D19): 23073–23095.
- Chang J S, Brost R A, Isaksen I S A, et al. 1987. A three-dimensional Eulerian acid deposition model: Physical concepts and formulation [J]. *J. Geophys. Res.*, 92 (D12): 14681–14700.
- Chun K J, Seinfeld J H. 1975. Formulation and initial application of a dynamic model for urban aerosols [J]. *Atmos. Environ.*, 9 (4): 375–402.
- Gaydos T M, Pinder R, Koo B, et al. 2007. Development and application of a three-dimensional aerosol chemical transport model, PMCAMx [J]. *Atmos. Environ.*, 41 (12): 2594–2611.
- Gelbard F, Seinfeld J H. 1979. The general dynamic equation for aerosols: Theory and application to aerosol formation and growth [J]. *Journal of Colloid and Interface Science*, 68 (2): 363–382.
- Gery M W, Whitter G Z, Kllus J P, et al. 1989. A photochemical kinetics mechanism for urban and regional scale computer modeling [J]. *J. Geophys. Res.*, 94 (D10): 12925–12956.
- Grell G A, Peckham S E, Schmitz R, et al. 2005. Fully coupled “online” chemistry within the WRF model[J]. *Atmos. Environ.*, 39 (37): 6957–6975.
- Griffin R J, Cocker D R, Flagan R C, et al. 1999. Organic aerosol formation from the oxidation of biogenic hydrocarbons [J]. *J. Geophys. Res.*, 104 (D3): 3555–3567.
- Han Z W, Ueda H, Sakurai T. 2006. Model study on acidifying wet deposition in East Asia during wintertime [J]. *Atmos. Environ.*, 40 (13): 2360–2373.
- Han Z W, Ueda H, Hozumi Y, et al. 2004. Model study on particle size segregation and deposition during Asian dust events in March [J]. *J. Geophys. Res.*, 109 (D19), doi:10.1029/2004JD004920.
- Han Z W, Ueda H, Hozumi Y, et al. 2007. Modeling study of long-range transport of SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub> and O<sub>3</sub> over Northeast Asia in March 2002 [J]. *Water, Air, and Soil Pollution*, 178 (1–4): 195–205.
- Han Z W, Sakurai T, Ueda H, et al. 2008. MICS-Asia II: Model intercomparison and evaluation of ozone and relevant species [J]. *Atmos. Environ.*, 42 (15): 3491–3509.
- Harrison R M, Yin J X. 2000. Particulate matter in the atmosphere: Which particle properties are important for its effects on health? [J]. *Sci. Total Environ.*, 249 (1–3): 85–101.
- Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC). 2007. The Physical Science Basis of Climate Change: Changes in Atmospheric Constituents

- and in Radiative Forcing [M]. New York: Cambridge University Press, 26–27.
- Jacob D J. 2000. Heterogeneous chemistry and tropospheric ozone [J]. *Atmos. Environ.*, 34 (12–14): 2131–2159.
- 姜大膀, 富元海. 2012. 2°C 全球变暖背景下中国未来气候变化预估 [J]. *大气科学*, 36 (2): 234–246. Jiang D B, Fu Y H. 2012. Climate change over China with a 2°C global warming [J]. *Chinese Journal of Atmospheric Sciences (in Chinese)*, 36 (2): 234–246.
- Jiang F, Wang T J, Wang T T, et al. 2008. Numerical modeling of a continuous photochemical pollution episode in Hong Kong using WRF-chem [J]. *Atmos. Environ.*, 42 (38): 8717–8727.
- Lee S M, Fernando H J S, Grossman-Clarke S. 2007. MM5-SMOKE-CMAQ as a modeling tool for 8-h ozone regulatory enforcement: application to the state of Arizona [J]. *Environmental Modeling & Assessment*, 12 (1): 63–74.
- Lelieveld J, Crutzen P J, Ramanathan V, et al. 2001. The Indian Ocean Experiment: Widespread air pollution from South and Southeast Asia [J]. *Science*, 291 (5506): 1031–1036.
- McMurry P H, Friedlander S K. 1979. New particle formation in the presence of an aerosol [J]. *Atmos. Environ.*, 13 (12): 1635–1651.
- Meng Z Y, Dabdub D, Seinfeld J H. 1998. Size-resolved and chemically resolved model of atmospheric aerosol dynamics [J]. *J. Geophys. Res.*, 103 (D3): 3419–3435.
- Nenes A, Pandis S N, Pilinis C. 1998. ISORROPIA: A new thermodynamic equilibrium model for multiphase multicomponent inorganic aerosols [J]. *Aquatic Geochemistry*, 4 (1): 123–152.
- Odum J R, Jungkamp T P W, Griffin R J, et al. 1997. Aromatics, reformulated gasoline, and atmospheric organic aerosol formation [J]. *Environ. Sci. Technol.*, 31 (7): 1890–1897.
- Peterson T W, Seinfeld J H. 1977. Mathematical model for transport, interconversion, and removal of gaseous and particulate air pollutants—Application to the urban plume [J]. *Atmos. Environ.*, 11 (12): 1171–1184.
- Pöschl U. 2005. Atmospheric aerosols: Composition, transformation, climate and health effects [J]. *Angewandte Chemie International Edition*, 44 (46): 7520–7540.
- Ramanathan V, Crutzen R J, Kiehl J T, et al. 2001. Atmosphere-aerosols, climate, and the hydrological cycle [J]. *Science*, 294 (5549): 2119–2124.
- 石广玉, 王标, 张华, 等. 2008. 大气气溶胶的辐射与气候效应 [J]. *大气科学*, 32 (4): 826–840. Shi G Y, Wang B, Zhang H, et al. 2008. The radiative and climatic effects of atmospheric aerosols [J]. *Chinese Journal of Atmospheric Sciences (in Chinese)*, 2008, 32 (4): 829–840.
- Uno I, Carmichael G R, Streets D, et al. 2003. Analysis of surface black carbon distributions during ACE-Asia using a regional-scale aerosol model [J]. *J. Geophys. Res.*, 108 (D23), doi:10.1029/2002JD003252.
- van der Werf G R, Randerson J T, Giglio L, et al. 2006. Interannual variability in global biomass burning emissions from 1997 to 2004 [J]. *Atmos. Chem. Phys.*, 6 (11): 3423–3441.
- Wang G, Li G, Cheng C, et al. 2011. Observation of atmospheric aerosols at Mt. Hua and Mt. Tai in central and east China during spring 2009—Part 1: EC, OC and inorganic ions [J]. *Atmos. Chem. Phys.*, 11 (9): 4221–4235.
- Wang G H, Li J J, Cheng C L, et al. 2012. Observation of atmospheric aerosols at Mt. Hua and Mt. Tai in central and east China during spring 2009—Part 2: Impact of dust storm on organic aerosol composition and size distribution [J]. *Atmos. Chem. Phys.*, 12 (9): 4065–4080.
- Wang Z F, Li J, Wang X Q, et al. 2006. Modeling of regional high ozone episode observed at two mountain sites (Mt. Tai and Huang) in East China [J]. *J. Atmos. Chem.*, 55 (3): 253–272.
- 吴润, 符淙斌. 2005. 近五年来东亚春季黑炭气溶胶分布输送和辐射效应的模拟研究 [J]. *大气科学*, 29 (1): 111–119. Wu J, Fu C B. 2005. Simulation research of distribution transportation and radiative effects of black carbon aerosol in recent five spring seasons over East Asia region [J]. *Chinese Journal of Atmospheric Science (in Chinese)*, 29 (1): 111–119.
- 吴蓬萍, 韩志伟. 2011. 东亚地区硫酸盐气溶胶间接辐射和气候效应的数值模拟研究 [J]. *大气科学*, 35 (3): 547–559. Wu P P, Han Z W. 2011. A modeling study of indirect radiative and climatic effects of sulfate over East Asia [J]. *Chinese Journal of Atmospheric Science (in Chinese)*, 35 (3): 547–559.
- 颜鹏, 李维亮, 秦瑜. 2004. 近年来大气气溶胶模式研究综述 [J]. *应用气象学报*, 15 (5): 629–640. Yan P, Li W L, Qin Y. 2004. A review of the current development of atmospheric aerosol models [J]. *J. Appl. Meteor. Sci. (in Chinese)*, 15 (5): 629–640.
- Zhang M G. 2004. Modeling of organic carbon aerosol distributions over East Asia in the springtime [J]. *China Particuology*, 2 (5): 192–195.
- 张美根, 韩志伟. 2003. TRACE-P 期间硫酸盐、硝酸盐和铵盐气溶胶的模拟研究 [J]. *高原气象*, 22 (1): 1–6. Zhang M G, Han Z W. 2003. A numerical study on distribution of sulfate, nitrate and ammonium aerosols over East Asia during the TRACE-P campaign [J]. *Plateau Meteorology (in Chinese)*, 22 (1): 1–6.
- Zhang M G, Han Z W, Zhu L Y. 2007. Simulation of atmospheric aerosols in East Asia using modeling system RAMS-CMAQ: Model evaluation [J]. *China Particuology*, 5 (5): 321–327.
- Zhang M G, Uno I, Carmichael G R, et al. 2002. Large-scale structure of trace gas and aerosol distributions over the western Pacific Ocean during the Transport and Chemical Evolution Over the Pacific (TRACE-P) experiment [J]. *J. Geophys. Res.*, 108 (D21), doi:10.1029/2002JD002946.
- Zhang Q, Streets D G, Carmichael G R, et al. 2009. Asian emissions in 2006 for the NASA INTEX-B mission [J]. *Atmos. Chem. Phys.*, 9 (14): 5131–5153.