

吴兑, 廖碧婷, 陈慧忠, 等. 2014. 珠江三角洲地区的灰霾天气研究进展 [J]. 气候与环境研究, 19 (2): 248–264, doi: 10.3878/j.issn.1006-9585.2014.13110. Wu Dui, Liao Biting, Chen Huizhong, et al. 2014. Advances in studies of haze weather over Pearl River Delta [J]. Climatic and Environmental Research (in Chinese), 19 (2): 248–264.

珠江三角洲地区的灰霾天气研究进展

吴兑^{1,2,3} 廖碧婷² 陈慧忠² 吴晟⁴

¹ 暨南大学大气环境安全与污染控制研究所, 广州 510632

² 中国气象局广州热带海洋气象研究所, 广州 510080

³ 中山大学环境科学与工程学院大气科学系, 广州 510275

⁴ 香港科技大学环境研究所, 香港九龙清水湾

摘 要 珠江三角洲地区是我国气溶胶污染较严重的地区之一, 也是国内较早开展灰霾天气研究的地区, 从灰霾标准、科学概念、长期变化趋势、细粒子污染本质、水平输送和垂直扩散能力以及气溶胶的光学特性和物理化学特性方面进行了研究。结果表明, 近年来珠江三角洲地区的气溶胶污染日趋严重, 气溶胶云一年四季都出现, 且长期稳定存在, 重污染区位于珠江口以西的珠江三角洲西侧。灰霾天气主要出现在 10 月至次年 4 月。灰霾导致能见度恶化。自 20 世纪 80 年代初开始, 该地区的能见度急剧恶化, 灰霾天气显著增加, 其中有 3 次大的波动, 分别代表珠江三角洲经济发展相伴随的粗颗粒气溶胶污染、硫酸盐+粗颗粒气溶胶污染、光化学过程的细粒子+硫酸盐和粗颗粒气溶胶的复合污染时期。雾和轻雾造成的低能见度的长期变化趋势, 没有由于人类活动影响或经济发展影响带来的趋势性变化, 其波动主要反映了气候波动固有的年际和年代际变化。珠江三角洲能见度的恶化主要与细粒子关系比较大, PM₁₀ 有一半年份的年均值超过国家二级标准的年均值浓度限值 ($70 \mu\text{g m}^{-3}$), 而细颗粒物 (即 PM_{2.5}) 各年都超过国家二级标准的年均值限值 ($35 \mu\text{g m}^{-3}$), 尤其是有些年份年均值浓度超过标准限值的 2 倍, 细粒子浓度甚高。另外, 近年细颗粒物占 PM₁₀ 的比重非常高, 可达 57%~79%, 黑碳气溶胶浓度非常高, 月均值达到 $5.0\sim 9.1 \mu\text{g m}^{-3}$, 黑碳气溶胶污染严重。和 20 余年前的资料相比较, 细粒子在气溶胶中的比重有明显增加, 有机碳和硝酸盐、铵盐的占比增加, 而硫酸盐占比略有减少, 钙占比明显减少。区域气流停滞区的形成是发生严重灰霾天气的主要气象条件, 垂直输送能力不足也是加重灰霾天气的气象条件之一。

关键词 珠江三角洲 灰霾天气 细粒子污染 黑碳 能见度恶化 气流停滞区 垂直输送

文章编号 1006-9585 (2014) 02-0248-17

中图分类号 X513

文献标识码 A

doi:10.3878/j.issn.1006-9585.2014.13110

Advances in Studies of Haze Weather over Pearl River Delta

WU Dui^{1,2,3}, LIAO Biting², CHEN Huizhong², and WU Cheng⁴

¹ Institute of Atmospheric Environment Safety and Pollution Control, Jinan University, Guangzhou 510632

² Institute of Tropical and Marine Meteorology, China Meteorological Administration, Guangzhou 510080

³ Department of Atmospheric Science, School of Environmental Science and Engineering, Sun Yat-sen University, Guangzhou 510275

⁴ Division of Environment, Hong Kong University of Science and Technology, Hong Kong

Abstract Pearl River Delta (PRD) is a region in China with severe aerosol pollution and is the focus of early research on haze weather. These studies on haze weather include haze references, scientific concepts, long-term trends, fine-particle pollution, horizontal transfer and vertical diffusion ability, aerosol physical, chemical characteristics, and

收稿日期 2013-06-20 收到, 2013-12-03 收到修定稿

资助项目 国家重点基础研究发展计划项目 2011CB403403

作者简介 吴兑, 男, 1951 年出生, 研究员, 主要研究方向为大气物理化学与大气环境、环境气象学。E-mail: wuduigz@gmail.com

aerosol optical properties. The results of this research have indicated that the pollution by aerosols over the PRD has worsened in recent years. Aerosol clouds occur all year round, with an area of heavy pollution located at the western side of the Pearl River Estuary. The haze weather mainly occurs from October to the following April, resulting in visibility deterioration. Since the beginning of the 1980s, the frequency of haze weather over the PRD has obviously increased and visibility has deteriorated dramatically. Three major fluctuations in visibility deterioration have been accompanied by development of the economy, which has caused dust pollution, sulfate and dust pollution, and dust, sulfate, and automobile exhaust pollution caused by photochemical processes, respectively. No indication has been made that the long-term tendency of fog and light fog days is affected by human activities or economical development, and its fluctuation was governed by the intrinsic inter-annual and inter-decadal variations of climate. The deterioration of visibility over the PRD is strongly associated with fine-particle pollution. Half of the monthly mean PM₁₀ observations exceeded the mean critical value of the national second graded standard ($70 \mu\text{g m}^{-3}$), and all of the mean PM_{2.5} values exceeded the mean critical value of the U.S. national standard ($35 \mu\text{g m}^{-3}$). Some mean values of PM_{2.5} reached nearly twice the standard value, indicating high concentrations of fine particles. The ratio of PM_{2.5} to PM₁₀ was also very high at approximately 51%–79%. The monthly mean of black carbon concentration was $5.0 \mu\text{g m}^{-3}$ – $9.1 \mu\text{g m}^{-3}$. Compared with observations data recorded 20 years ago, the ratio of fine particles has obviously increased. The ratios of organic carbon, nitrate, and ammonium have increased, while that of sulfate slightly decreased and that of calcium obviously decreased. The formation of an airflow stagnation area is the main meteorological condition causing this severe haze weather, which is aggravated by weak vertical transport.

Keywords Pearl River Delta, Haze weather, Fine-particle pollution, Black carbon, Visibility deterioration, Airflow stagnation area, Vertical transport

1 引言

大气气溶胶因为其全球气候效应与环境效应近年来成为科学家们广泛关注的一个重要领域 (Lohmann and Lesins, 2002; Menon et al., 2002; Penner et al., 2004)。大气污染也是当前大多数发展中国家在城市化、工业化过程中普遍面临的难题。珠江三角洲作为近 30 年全球经济发展最快的地区之一,也是国内气溶胶导致大气污染相当严重的区域之一。在这个总面积只有 8000 多 km^2 的区域,聚集了广州、深圳、香港、东莞、佛山、澳门、珠海这样拥有数百万以上人口的国际化城市和几十个人口在几十万左右的中等城市,在大量土地被工业化利用、植被减少、交通工具迅猛增加、乡镇企业工厂蓬勃发展的情况下,这一地区频繁发生的能见度恶化事件引起政府和公众的广泛关注。高频多发的恶劣能见度事件有非常不利的影响,大气污染不仅对居民的身体健康构成威胁,而且导致能见度下降也给城市经济活动和市民生活带来显著影响,并使一个城市(区域)的景观给人以很负面的形象。

气溶胶粒子是悬浮在大气中的直径为 $10^{-3} \sim 10 \mu\text{m}$ 的固体或液体粒子,其质量仅占整个大气质量的 10 亿分之一,但其对大气辐射传输和水循环均有重要的影响 (罗云峰等, 1998)。大气中的气

溶胶粒子的自然来源主要是海洋、土壤和生物圈及火山等。气溶胶对气候变化、云的形成、能见度的改变、环境质量变化、大气微量成分的循环及人类健康有着重要影响。工业化以来,人类活动直接向大气排放大量粒子和污染气体,污染气体通过非均相化学与光化学反应亦可转化形成气溶胶粒子。

1999 年欧美科学家发现,在亚洲南部上空经常笼罩着一层 3 km 厚的棕色气溶胶云,并称其为亚洲棕色云 (Ramanathan et al., 2002),也将其称为灰霾天气 (吴兑等, 2006a, 2006b, 2007),其组成主要包括:黑碳、有机碳、粉尘、硫酸盐、铵盐、硝酸盐等,后来发现各大洲都存在类似现象,因而又将其称为大气棕色云。研究进而提出,原来假定的气溶胶辐射强迫的冷却效应要作一定的修正,尤其认为大气灰霾中的黑碳气溶胶是气候变暖的重要角色 (Ramanathan et al., 2002),这就使得气溶胶辐射强迫对气候变化影响的不确定性增加。珠江三角洲地区在国内较早开展了灰霾天气的研究,从灰霾标准、科学概念、长期变化趋势、细粒子污染本质、水平输送和垂直扩散能力以及气溶胶的光学特性和物理化学特性方面进行了研究,本文综合介绍这些结果。另外,其他研究者从大气复合污染等角度对珠江三角洲地区进行了研究,较有代表性的包括张远航课题组 (王伯光等, 2008; 陆克定等, 2010; 朱彤等, 2010; 沈劲等, 2011) 大气氧化性方面的

研究;王新明课题组(段青春等,2006;Xu et al., 2008;Wang et al., 2012)有机气溶胶及其前体物的研究;范绍佳课题组(陈训来等,2008;李明华等,2008;张人文和范绍佳,2011)污染气象条件的研究;王雪梅课题组(司徒淑娉等,2009;王茜等,2009)空气质量数值模拟的研究;陶俊课题组(陶俊等,2008,2010)气溶胶污染的研究等,由于本文从“灰霾天气”角度综合介绍,因而未包括上述从其他角度研究珠江三角洲大气复合污染的内容。

2 灰霾标准与科学概念

由于经济规模迅速扩大和城市化进程加快,大气气溶胶污染日趋严重,由气溶胶造成的能见度恶化事件越来越多,这些人类活动排放的污染物,包括直接排放的气溶胶和气态污染物通过化学转化与光化学转化形成的细粒子二次气溶胶,可致使能见度恶化形成灰霾。也有人将其称为烟尘雾、烟雾、干雾、烟霞、气溶胶云、大气棕色云(Ramanathan et al., 2002; Wu et al., 2005; 吴兑等, 2006a)。非常简洁地描述灰霾天气,就是“气溶胶细粒子在高湿度条件下引发的低能见度事件”。形成灰霾天气的气溶胶组成非常复杂。

广义来讲灰霾天气的本质是细粒子气溶胶污染(Wu et al., 2006, 2009),属于大气气溶胶的范畴,科学界的气溶胶定义是“气体介质中加入固态或液态粒子而形成的分散体系称为气溶胶”。但长期以来,到目前为止还没有一个统一的被大家接受的大气气溶胶分类和不同类型气溶胶的统一命名系统。排除降水粒子(雨滴、冰雹、霰、米雪、冰粒和雪晶)后,其中在近地面层气溶胶中的水滴和冰晶就是气象学的雾和轻雾,气溶胶中的其他非水成物就是气象学所称的霾(吴兑等, 2009)。

气溶胶是合成词,是气体介质和大气中的颗粒物的混合物,是一种胶体,在空气中漂浮着颗粒物就是气溶胶。最原始的气溶胶概念包括气体介质和空气中所有的颗粒物质,最大的是冰雹,其次是雨滴、冰雪晶,再次就是一些土壤尘、火山尘、海盐粒子,以及由于人类活动排放的硫酸盐、硝酸盐、铵盐、黑碳、有机碳(有机碳氢化合物),这些细微的粒子漂浮在大气中,通称气溶胶(吴兑和邓雪娇, 2001; 吴兑等, 2009)。

学术界对气溶胶有3个认知的过程,最初在广义上是气体介质和其中漂浮的颗粒物的总称;然后将介质去掉,缩小到仅指大气中的颗粒物;第三是把大气中的降水物质(冰雹、雨滴、冰晶、雪晶)全部排除,仅包括土壤粒子、沙尘粒子、火山灰、海盐粒子、硫酸盐、硝酸盐、铵盐和一些元素碳粒子、有机碳粒子及具有生物活性的蛋白粒子(如病毒、病菌、花粉、孢子以及动植物尸体、排泄物形成的有机碎片),这就是最狭义的气溶胶概念。

大气气溶胶的概念有物理特征和化学特征之分。气溶胶有多种分类法,按来源,可分为自然源(又可分为大陆源、海洋源和生物源)与人类活动排放源;按产生方式,可分为机械粉碎、燃烧、气粒转化和凝并等;按组分,可分为无机成分[包括矿物粉尘(如土壤尘、沙尘、火山灰)、海盐、黑碳、硫酸盐、硝酸盐等]和有机成分[包括有机碳氢化合物、其他有机物(如PAHs、POPs等)和有生命的生物气溶胶(如花粉、孢子、病毒、细菌和动植物蛋白碎屑等)];按谱分布,可分为巨粒子(如降水粒子、云雾粒子、沙尘)、大粒子(如海盐、土壤尘、火山灰)、细粒子(如光化学烟雾形成的二次气溶胶)、超细粒子(如新粒子—气粒转化刚刚形成的分子团)等(图1);按辐射特性可分为辐射吸收性粒子和散射性粒子。而且,气溶胶中的非水成物主要以混合物的形式存在,极少以单质存在,除非是凝结核在不饱和大气中不能越过过饱和驼峰而在次微米尺度震荡的硫酸微滴和硝酸微滴。大气气溶胶中的非水成物是指,排除了大气中的降水粒子(雨滴、冰雹、霰、米雪、冰粒和雪晶)与云雾粒子(云滴、雾滴和冰晶)后,悬浮在大气中的其他气溶胶粒子,包括硫酸微滴和硝酸微滴、矿物粉尘(土壤尘、沙尘、火山灰)、海盐、黑碳、硫酸盐、硝酸盐、有机碳氢化合物、其他有机物[如PAHs(多环芳烃)、POPs(持久性有机污染物)等]和有生命的生物气溶胶(如花粉、孢子、病毒、细菌和动植物蛋白碎屑等)(吴兑等, 2009)。

从图1可以看出:将空气动力学等效直径 $\leq 100\ \mu\text{m}$ 的颗粒物称为总悬浮颗粒物(TSP),将空气动力学等效直径 $\leq 10\ \mu\text{m}$ 的颗粒物称为可吸入颗粒物(PM₁₀),将空气动力学等效直径 $\leq 2.5\ \mu\text{m}$ 的颗粒物称为细颗粒物(PM_{2.5}),将空气动力学等效直径 $\leq 1\ \mu\text{m}$ 的颗粒物称为PM₁,而这些称谓对应的气溶胶粒子的下限,与监测和采样方式有关,即

与仪器的测量原理有关，一般从几 nm 到几十 nm 不等。我们也注意到，云滴、雾滴的尺度在 3~100 μm。

利用长期气象资料优势以弥补环境监测资料太短的缺陷，可以得到气溶胶消光的长期变化趋势，常常以霾日的长期变化趋势来表达。但对于霾日确定标准以及相应的分析，长期以来颇多争议。对于使用长期气候资料进行霾的统计，需要统一的定量标准，不能直接使用天气现象记录，使用地面观测的天气现象资料分析霾日非常不客观，因为过去长期在全国气象系统的台站观测业务中，区分霾的判据比较混乱，缺乏可比性，全国没有统一的辅助判别标准，各省的辅助规定也是五花八门，南方往往使用相对湿度辅助判别而相对湿度又定得太低。需要说明的是，在历史上中央气象局、国家气象局、中国气象局的各版本的地面观测规范等技术文件中，对霾的界定一直是非常清晰的，从来没

有给出过相对湿度限值作为辅助标准。各省各站口口相传的所谓标准，均没有白纸黑字的任何依据，出自建国初期气象干部培训班师父带徒弟的口授，各地（不同观测员）识别霾太任意，所以在全国各省各站非常混乱，甚至在同一个站、不同观测员也不一样。直接使用这些天气现象资料进行的分析文章的科学性大大降低，因而需要使用能见度、天气现象、相对湿度来综合判断，而且要将其它视程障碍现象剔除，就是说要自己处理资料，不能直接使用报表的霾日资料（吴兑，2005，2006，2008a，2008b）。

需要说明的是，在不同历史时期，WMO 和其它国家气象机构曾经给出过区别霾与雾的建议（WMO，2001，2005，2008；UKMO，1982，1991，1994），其中使用相对湿度作为辅助判据的（见表 1），WMO 在 2001、2005、2008 年的报告中识别霾（haze）和轻雾（mist），需结合相对湿度限值；而

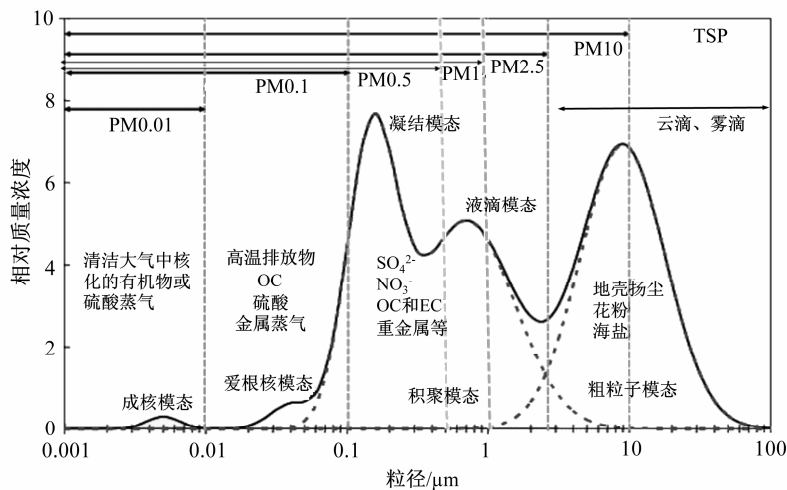


图 1 气溶胶的谱分布特征
Fig. 1 The spectral distribution of aerosol

表 1 不同机构的雾、轻雾、霾的标准
Table 1 The standards of fog, mist, and haze in different departments

	雾	轻雾	霾
世界气象组织，报告 782 号 (3 版)，2001 年	能见度<1000 m	能见度 1000~5000 m，相对湿度 >95%	能见度≤5000 m，与轻雾、沙尘、浮尘、冰晶、烟幕不能兼记
世界气象组织，报告 782 号 (4 版)，2005 年	能见度<1000 m	能见度 1000~5000 m，相对湿度 >95%	能见度≤5000 m，与轻雾、沙尘、浮尘、冰晶、烟幕不能兼记
世界气象组织，报告 782 号 (5 版)，2008 年	能见度<1000 m	能见度 1000~5000 m，相对湿度 >95%	能见度≤5000 m，与轻雾、沙尘、浮尘、冰晶、烟幕不能兼记
《观测人员手册》，英国气象局，1982 年	能见度<1000 m，相对湿度通常接近 100%	能见度 ≥1000 m，相对湿度 ≥95%，通常<100%	能见度没有限值
《气象术语》，英国气象局，1991 年	能见度<1000 m	能见度 ≥1000 m，相对湿度 >95% 左右	能见度没有限值
《航空气象手册》，英国气象局，1994 年	能见度<1000 m，相对湿度通常接近 100%	能见度 ≥1000 m，相对湿度 ≥95%，通常<100%	相对湿度<95%

对于轻雾, WMO 在 2001 年、2005 年和 2008 年的报告中建议相对湿度大于 95%; 而英国气象局在 1994 年规定出现霾时相对湿度低于 95%, 英国气象局分别在 1982、1991、1994 年规定出现轻雾时相对湿度低于 100% 但 $\geq 95\%$; 对于雾 (fog), 各个机构都描述为相对湿度通常接近 100%。这里都明确指出出现霾时相对湿度要小于 95%。而我们为什么将出现霾时的相对湿度定为 90% 呢? 这是因为, 目前自动气象站的湿度传感器在高湿度段有 5% 的误差 (张霭琛, 2000), 另外需要保证所有入围的资料确定是霾, 不能引起争议, 也需要将相对湿度限值降低 5%, 国际上也是这样处理的 (Schichtel et al., 2001; Doyle and Dorling, 2002; 吴兑, 2005, 2006, 2008a, 2008b)。

依据国际组织的有关规定和气溶胶物理化学特征分析, 吴兑等 (2010a) 提出区分霾与轻雾 (雾) 的概念模型 (图 2)。进而提出了霾的观测和预报等级标准。

3 区域灰霾的长期变化趋势

定义当日能见度 (mean observed range, MOR) 小于 10 km, 日均相对湿度 (RH) 小于 90%, 并排除降水等其它能导致低能见度事件的情况为一个出现霾的日子; 日均能见度小于 10 km, 日均相对湿度大于 90%, 并排除降水等其它能导致低能见度事件的情况为一个出现轻雾 (雾) 的日子 (Schichtel et al., 2001; Doyle and Dorling, 2002; 吴兑, 2005, 2006, 2008a, 2008b)。

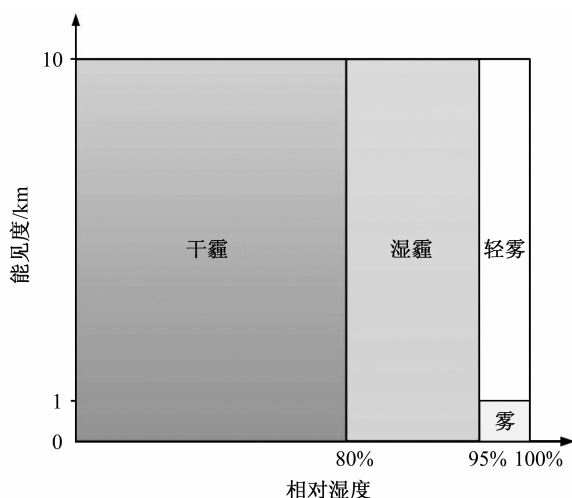


图 2 霾与轻雾 (雾) 区分的概念模型

Fig. 2 The conceptual model of distinguishing haze and mist (fog)

图 3 为珠江三角洲地区过去 50 余年灰霾天气 ($MOR < 10 \text{ km}$, $RH < 90\%$) 出现的天数。以广州为例, 自 20 世纪 80 年代初开始, 该地区的能见度急剧恶化导致灰霾天数增加, 其中有 3 次大的波动, 20 世纪 80 年代初至 80 年代中后期是第 1 次明显上升期, 一般认为与改革开放后珠江三角洲的第一次经济发展有关, 当时我国环境保护法规还不完善, 环境保护措施刚刚起步, 大气污染物直接排放, 气溶胶污染较为严重, 80 年代末出现了持续好转, 与我国当时的环境政策有关, 珠江三角洲地区开展的消除除尘措施有效地改善了能见度; 而后随着经济规模扩大, 二氧化硫污染日趋严重, 二氧化硫通过化学氧化形成的硫酸盐粒子与直接排放的气溶胶粒子叠加形成了第 2 次能见度恶化时段, 时间大体是在 1990~1997 年, 而后我国开展了以酸雨控制和二氧化硫控制为主的大气污染治理, 珠江三角洲地区是“两控”区, 因而 1998~2000 年能见度出现了明显好转; 目前进入自 2002 年开始的第 3 次能见度恶化周期, 近年来珠江三角洲运输业高度发展后, 人流、物流、交通流迅猛增加, 机动车尾气污染引发的光化学污染在珠江三角洲地区出现, 再叠加直接排放的气溶胶和化学氧化的硫酸盐粒子, 珠江三角洲进入了复合大气污染的时代。当然, 中长期天气气候背景的波动也会对能见度的变化产生影响, 但这个问题非常复杂, 研究难度很大 (吴兑等, 2006a, 2006b, 2007; 黄健等, 2008; 陈欢欢等, 2010; 陈静等, 2010; 吴兑等, 2010b, 2012)。

惠州地处珠江三角洲东部边缘, 在雨季, 珠江三角洲地区近地面盛行东南气流, 在旱季, 珠江三角洲地区盛行东北气流, 因而惠州大都情况下处在珠江三角洲地区的上风向。可作为对照点, 从图中可以看到, 惠州灰霾天气的日数没有由于人类活动或经济发展的影响发生趋势性变化, 其波动主要反映了气候波动固有的年际和年代际变化, 可以代表珠江三角洲地区能见度变化的本底水平。珠江三角洲地区不同方位观测站能见度的长期变化趋势不尽相同, 佛山、东莞、深圳的灰霾天气长期变化趋势类似但与广州不同 (图 3), 这些城市都处在珠江三角洲城市群的核心地带, 共同特点是第 2 次灰霾增长期在图中开始有所反映, 近期新型复合污染阶段灰霾天气增加明显; 值得注意的是第 3 次上升期, 东莞灰霾天气的出现日数超过了广州、佛山, 每月达 15~20 d, 灰霾天气非常严重; 而肇庆长年处于

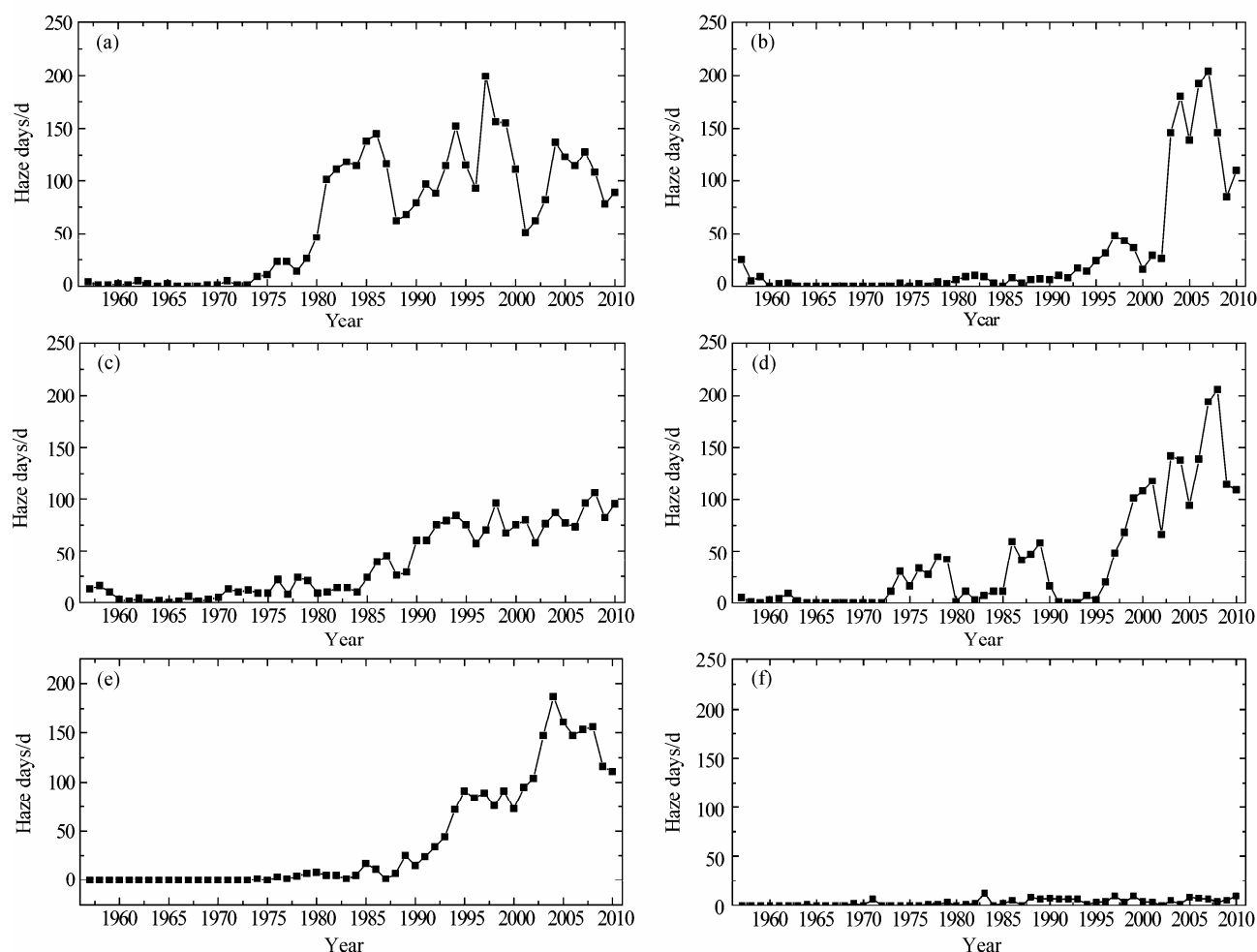


图3 典型城市 (a) 广州、(b) 东莞、(c) 肇庆、(d) 佛山、(e) 深圳、(f) 惠州年灰霾日长期变化

Fig. 3 The long-term trends of annual haze days in the typical cities (a) Guangzhou, (b) Dongguan, (c) Zhaoqing, (d) Foshan, (e) Shenzhen, and (f) Huizhou

珠江三角洲的下风向,也就是说,肇庆处在珠江三角洲气溶胶云的尾羽内,本地没有重要的气溶胶污染源,表现出灰霾天气波动较小缓慢增加的趋势。另外,佛山在1991~1995年间出现的灰霾天数低值,是受气候波动的影响,还是经济活动的作用,需要进一步深入分析研究。

图4为典型城市月灰霾日长期变化,前述分析在图4中也有所体现,而且还发现珠江三角洲地区各个城市在旱季的灰霾日明显多于雨季,且表现有准10年的气候震荡特征,以广州的特征明显,大致10年左右出现相对较多的灰霾天气(吴兑等,2006a,2006b,2007;黄健等,2008;陈欢欢等,2010;陈静等,2010;吴兑等,2010b,2012)。

珠江三角洲区域能见度恶化与该地区经济容量的快速增长密切相关,吴兑等(2006a)曾给出了珠江三角洲地区7个城市的能源消耗、GDP、人

口、机动车增长的情况,发现自1980年以来,珠江三角洲地区的能源消耗与经济规模呈现快速增长趋势,其中,20世纪80年代中后期、90年代中期和21世纪初增长率较快,与前述的能见度恶化趋势有对应关系。

4 气溶胶细粒子的污染本质

能见度与粒子的散射、吸收能力和气体分子的散射、吸收能力有关,但主要与气溶胶的散射能力关系最密切,如果入射光波长确定,忽略化学成分和气体的作用,影响散射光强的因子就是粒子尺度和浓度。图5为使用德国气溶胶粒子谱仪(Model 1.180, Grimm Technologies, Inc. Germany)在广州观测得到的气溶胶谱资料,巨粒子与次微米粒子数量相差 10^7 倍,气溶胶粒子谱峰值直径是 $0.28\text{ }\mu\text{m}$,

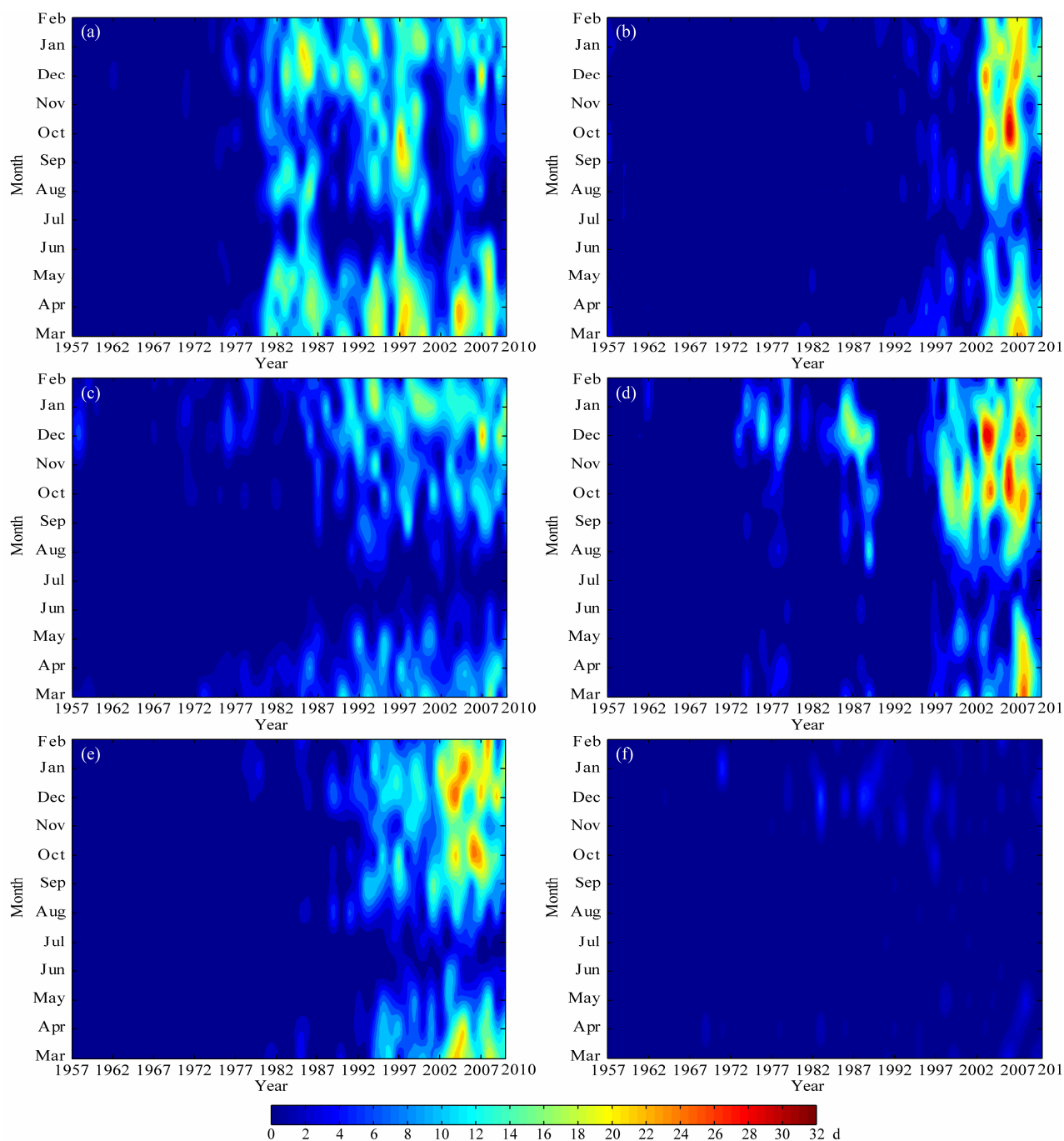


图4 同图3, 但为月灰霾日

Fig. 4 Same as Fig. 3, but for monthly haze days

平均直径是 $0.31 \mu\text{m}$ 。因而能见度的恶化主要与细粒子关系比较大, 尤其是出现较重气溶胶污染导致低能见度事件出现时, 细粒子的比重会更大 (图 5a)。从图 5c 中也可以看到, 在 3 个时间段, 随着湿度的增加, 气溶胶粒子谱向大粒子一侧拓宽, 使得能见度更加恶化。

将观测到的 PM₁₀ 和细颗粒物质量浓度年均值

列于表 2, 可以看到, PM₁₀ 有一半年份的年均值超过 GB3095-2012 国家二级标准 (中华人民共和国环境保护部, 2012) 年均值限值 ($70 \mu\text{g m}^{-3}$), 而细颗粒物全部年份的年均值都超过国家二级标准的年均值限值 ($35 \mu\text{g m}^{-3}$), 尤其是有些年份的年均值浓度超过标准限值的 2 倍, 细粒子浓度甚高。另外, 近年来细颗粒物占 PM₁₀ 的比重非常高, 可达 57%~

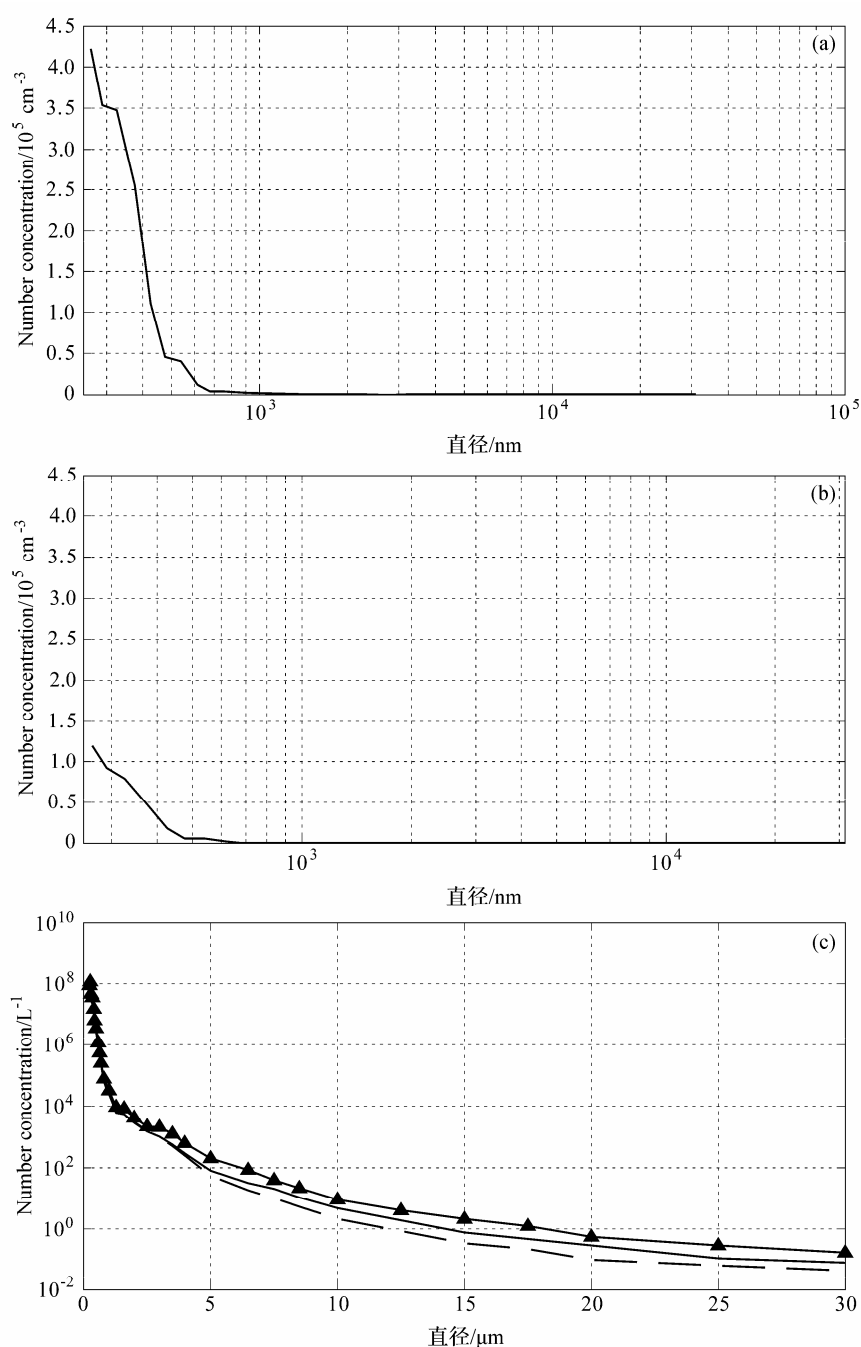


图5 广州2006年4月(a)19日灰霾天气、(b)14日清洁天气气溶胶粒子谱和(c)19日分段平均气溶胶粒子谱

Fig. 5 Spectrum distributions of aerosol in Guangzhou of (a) haze weather on 19 Apr and (b) clear day on 14 Apr and (c) the subsection average spectrum distribution of aerosol on 19 Apr 2006

79%，比20余年前的观测比值大得多(吴兑等，1994，2001；吴兑和陈位超，1994；吴兑，1995)。

吴兑等(1994，2001)、吴兑和陈位超(1994)、吴兑(1995)曾使用美国安德森气溶胶分级采样器在华南广大地区进行气溶胶质量浓度谱分析，虽然粗细粒子的区分是 $2.1 \mu\text{m}$ ，但可以大致与表2的细颗粒物相比较，和20余年前的资料相比，细粒子

的增加远较PM10的增加大得多，20余年来细粒子在气溶胶中的比重有明显增加。

5 水平输送特征与垂直交换能力

大气中的污染物主要来源于自然排放和人类活动的排放。而在一段时期内，自然排放和人类活

动排放的污染物总量是大致稳定的,但有时出现严重的灾害性灰霾天气,有时却又是蓝天白云,其中决定性的控制因素就是气象条件。在不同气象条件下,同一污染源排放所造成的地面污染物浓度可相差几十倍乃至几百倍,这是由于大气对污染物的稀释扩散能力随着气象条件的不同会发生巨大变化。因此,研究气象因子对细颗粒物造成的灰霾天气的影响,进而科学、有效地预测和控制灾害性灰霾天气,是十分重要和紧迫的研究课题。

表 2 广州多年来年平均气溶胶粗细粒子浓度和细粒子所占比例的变化

Table 2 The mass concentration of coarse particles and fine particles and the ratio of fine to coarse particles in Guangzhou

年份	细颗粒物浓度/ $\mu\text{g m}^{-3}$	PM10 浓度/ $\mu\text{g m}^{-3}$	细颗粒物 所占比例
1989	54.8	117.0	46.8%
2004	88.8	143.6	61.8%
2005	75.2	129.8	57.9%
2006	65.2	88.9	73.3%
2007	48.9	61.7	79.3%
2008	49.2	61.9	79.5%
2009	42.0	52.9	79.4%
2010	39.4	51.9	75.9%
2011	42.2	62.5	67.5%
2012	44.7	59.9	74.6%
2013	39.9	52.7	75.7%

国内外已有很多学者从天气形势、逆温层、混合层以及各种气象因子的角度对空气质量进行了大量的研究,但针对灾害性灰霾天气的研究相对不多。Wu et al. (2005) 曾对珠江三角洲地区的灾害性灰霾天气作过一些研究,而且重点分析了 2003 年 11 月初广州发生的一次严重灾害性灰霾天气过程,指出当时珠江三角洲地区处在台风外围,受下沉气流控制,混合层被压低,地面风速很小,细粒子气溶胶不易扩散,从而导致能见度很低,出现了严重的灾害性灰霾天气。

近地层输送条件即地面风场对大气污染物的传输和扩散影响显著,其作用表现在两个方面:一是水平搬运作用,排入大气中的细颗粒物等污染物在风的作用下,被输送到其他地区,风速越大,污染物移动也越快;二是稀释作用,污染物在随风运移时不断与周围干净的空气发生混合,使污染物得以稀释。珠江三角洲属于亚热带季风气候区,受季风影响显著,旱季盛行东北风,雨季盛行偏南风。在大尺度季风背景下,它还会受到海陆风、城市热

岛环流、翻越南岭下沉气流等的复合影响。

气流停滞区的形成反映了区域平流输送条件,是珠江三角洲形成区域性灾害性灰霾天气的主要宏观动力原因,使用我们自主开发的矢量和等工具研究区域平流输送条件,是研制珠江三角洲区域灾害性灰霾天气预测预报预警系统的主要基础(吴兑等, 2008; 廖碧婷等, 2012)。

图 6a 是灾害性灰霾天气个例,整个珠江三角洲甚至其周围地区风的 120 h 风的矢量和非常小,污染物的水平扩散条件很差,气流停滞区造成细颗粒物等污染物的停滞、积累。而图 6b 是典型清洁对照个例,整个珠江三角洲甚至其周围地区风的矢量和比较大,污染物的水平输送条件很好(吴兑等, 2008)。

利用 Micaps 3.0 系统的 K 指数、 L 指数和沙氏指数资料得出垂直交换系数,对空气污染物的垂直输送能力进行评估,从而尝试对灰霾天气和无视程障碍天气进行预报,为政府部门空气质量整治及气象业务部门灰霾天气预报提供依据。 K 指数、沙氏指数、 L 指数较多的应用于强对流天气,但三者存在高度相关,因而可以由三者组合得到垂直交换系数,应用于静稳天气或者弱天气影响。研究结果表明灰霾过程和清洁过程的垂直交换系数阈值为 15000,即当垂直交换系数小于 15000 时,城市区域容易发生灰霾天气,反之则城市区域空气质量较为良好(廖碧婷等, 2012)。

灰霾天气出现时,一般都伴随着静小风、强日照和合适的相对湿度(60%~85%)。严重的灰霾天气常出现在边界层存在强逆温的情况下,逆温层顶如同一个锅盖,限制其内污染物质的扩散和稀释;此外,城市化、工业化的发展造成下垫面属性改变,也使得城市大气边界层的物理结构发生变化。总体来说,扩散条件不好,空气流动性不强,风速不大,使城市中各种污染物无法得到及时扩散,并在近地面积聚,若再加上日照强烈,湿度合适,污染物之间就容易发生各种光化学反应,最终导致灰霾(吴兑等, 2011a, 2011b, 2011c; Wu M et al., 2013)。

6 气溶胶的光学特性

近年来,珠江三角洲地区的气溶胶污染日趋严重,大气透明度越来越差,表现为与人类活动及其经济发展水平密切相关,以及明显的区域特征(吴兑等, 2006a)。图 7 是珠江三角洲地区 2000~2011

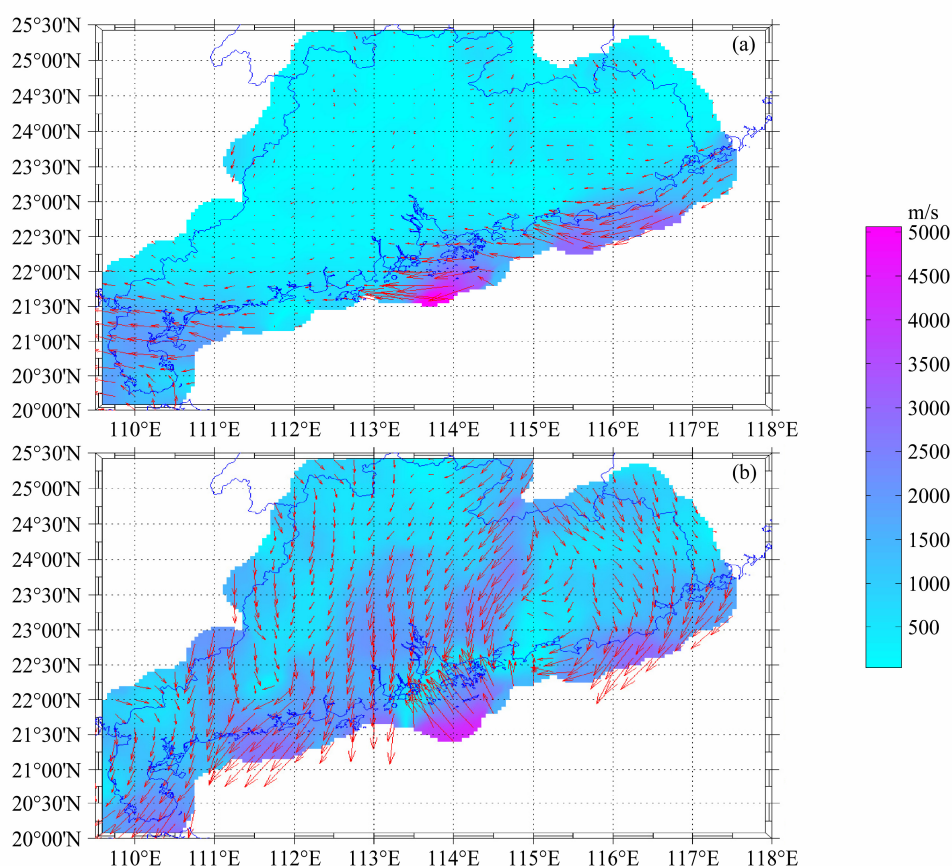


图6 (a) 2004年1月5日00:00至9日23:00(霾天气过程)和(b)2005年11月15日00:00至20日23:00(清洁对照过程)近地层风的120 h 矢量和

Fig. 6 Sums of wind vectors for 120 hours during (a) 0000 LST 5 Jan to 2300 LST 9 Jan 2004 (haze process) and (b) 0000 LST 15 Nov to 2300 LST 20 Nov 2005 (clean process)

年的 EOS/MODIS 卫星遥感气溶胶光学厚度分布图, 可以看到, 珠江三角洲城市群上空的大气气溶胶污染明显比周边地区严重, 550 nm 的平均气溶胶光学厚度在 0.7~1.2 之间, 较周边地区几乎大 1 倍; 长期稳定存在气溶胶云, 而且重污染区偏于珠江口以西的珠江三角洲西侧, 而香港处于气溶胶云的边缘, 气溶胶光学厚度明显小于珠江三角洲核心区, 这与广州、佛山及南海、番禺、顺德等地大量分散的加工工业排放源和密集的区域交通网有关。谭浩波等(2006, 2009)曾利用在华南地区长期的太阳光度计观测得到气溶胶光学厚度并与 NASA 的气溶胶产品进行详细对比, 认为这一产品具有比较高的精度描述我国象华南这样常年植被密集、地表可见光反射率比较低的地区的气溶胶特征。但这与近地层的水平能见度还不是一回事, 表明卫星观测的光学厚度不能完全表示地面气溶胶污染状况, 需要进一步开发处理。

表 3 给出了广州地区多年逐月的黑碳气溶胶浓

度, 9 年的资料显示, 该地黑碳气溶胶浓度甚高, 平均月均值为 $4.8 \sim 8.6 \mu\text{g m}^{-3}$; 5~8 月浓度相对较低, 月均值为 $4.8 \sim 6.1 \mu\text{g m}^{-3}$; 11 月至次年 1 月和 3 月的浓度较高, 月均值达到 $7.3 \sim 8.6 \mu\text{g m}^{-3}$ 。9 年平均年均值高达 $6.5 \mu\text{g m}^{-3}$, 说明黑碳气溶胶污染严重, 值得警惕 (Wu et al., 2009, 2013)。

2003~2008 年使用德国气溶胶粒子谱仪 (Model 1.180, Grimm Technologies, Inc. Germany) 在广州观测的气溶胶谱资料 (Wu et al., 2005, 2006, 2009) 显示, $10 \mu\text{m}$ 粒子有 25 个, $2.5 \mu\text{m}$ 的粒子有 2500 个, $1 \mu\text{m}$ 的粒子有 17000 个, $0.25 \mu\text{m}$ 的粒子有 9×10^6 个, 巨粒子与次微米粒子数量相差 10^6 倍, 气溶胶粒子谱峰值直径是 $0.28 \mu\text{m}$, 平均直径是 $0.31 \mu\text{m}$, 因而能见度的恶化主要与细粒子关系比较大, 尤其是出现较重气溶胶污染导致低能见度事件出现时, 细粒子的比重会更大。从图 8 (Deng et al., 2008) 可以发现, $0.25 \sim 1.0 \mu\text{m}$ 的粒子对能见度恶化的贡献是 69%, 黑碳粒子对能见度恶化的贡献是

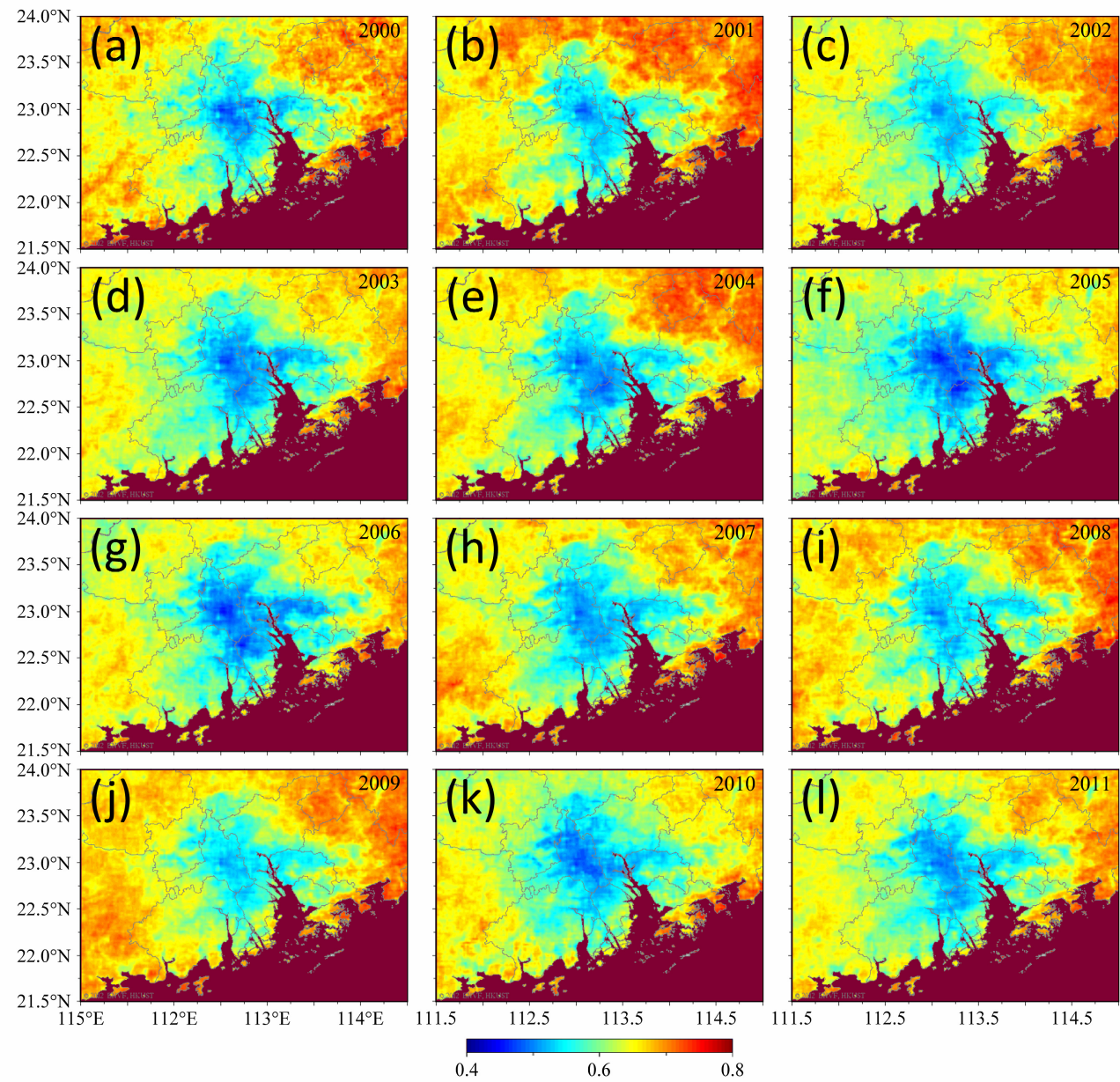


图 7 珠江三角洲 (a-l) 2000~2011 年 MODIS 卫星年平均气溶胶光学厚度

Fig. 7 Aerosol optical depths from MODIS on annual average (a-l) from 2000 to 2011

表 3 2004~2012 年广州多年逐月黑碳浓度变化

Table 3 The monthly concentration variation of black carbon in Guangzhou during 2004-2012

年份	黑碳浓度/ $\mu\text{g m}^{-3}$												平均
	1 月	2 月	3 月	4 月	5 月	6 月	7 月	8 月	9 月	10 月	11 月	12 月	
2004	11.1	10.7	12.5	10.6	9.5	10.6	8.2	8.3	10.8	10.7	13.0	14.8	10.9
2005	7.5	5.3	10.7	10.7	7.3	6.6	7.6	8.2	11.8	8.5	11.7	10.9	9.5
2006	9.2	9.2	10.8	6.9	5.4	9.3	6.9	9.3	6.0	7.0	6.0	6.0	7.6
2007	6.1	5.6	5.7	5.4	7.2	5.7	3.1	4.5	5.2	7.3	7.3	11.5	6.2
2008	7.4	6.9	8.2	7.0	6.9	4.8	5.2	4.2	5.3	5.3	5.3	7.9	6.2
2009	5.6	4.4	4.5	5.3	4.1	4.8	3.1	4.7	5.0	7.3	7.0	8.0	5.3
2010	10.3	5.4	6.4	4.6	2.9	3.2	2.2	2.9	3.3	2.9	5.6	6.6	4.7
2011	4.1	4.6	5.3	4.7	4.1	3.0	3.5	3.1	4.2	3.8	5.4	6.1	4.3
2012	4.4	5.5	6.3	4.2	3.7	3.0	2.8	3.7	3.3	4.6	4.4	4.8	4.2
平均	7.3	6.4	7.9	6.7	5.7	5.7	4.8	5.5	6.1	6.5	7.3	8.6	6.5

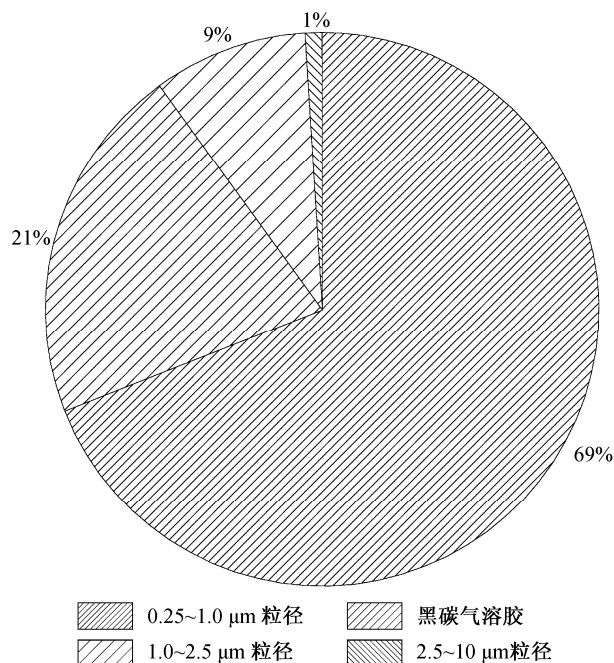


图 8 不同粒径气溶胶对能见度恶化的贡献率

Fig. 8 Contribution rates of different size particles to visibility deterioration

21%，两者相加已经贡献了 90%，而 2.5~10 μm 粒子对能见度恶化的贡献只有 9%，PM₁₀ 对质量浓度的贡献占 90%，而细颗粒物对数量浓度的贡献占 90%，能见度恶化是大量细颗粒物贡献的。这就是为什么公众肉眼感到空气污染严重，而监测的 PM₁₀ 质量浓度达标的原因。

如前所述，我们观测 PM₁₀ 和细颗粒物的质量浓度结果显示，PM₁₀ 有接近一半年均值超过国家二级标准（70 μg m⁻³），而细颗粒物年均值全部超过国家二级标准（35 μg m⁻³），细粒子浓度甚高。另外，细颗粒物占 PM₁₀ 的比重非常高，可达 57%~79%（表 2），比 20 余年前的观测比值大得多。可以看到，导致能见度恶化时细粒子的比重比较大，珠江三角洲地区灰霾的细粒子污染特征明显，表 2 表明珠江三角洲地区细粒子比重是逐年增加的，从 20 世纪 80 年代的 46% 增加到近年的接近 80%。这就说明，在广州地区的气溶胶污染中，主要是细粒子的污染。细粒子一般与气粒转化相关联，相对于 SO₂ 气体通过化学氧化形成硫酸盐粒子的慢过程，气粒转化的快速过程是主要由机动车尾气排放的光化学反应前体物（氮氧化物、一氧化碳、挥发性有机化合物）通过紫外线驱动光化学氧化过程，经过烯烃、烷烃、芳烃等参与的复杂反应，使标识物臭氧浓度升高，形成过氧乙酰硝酸酯（PAN），最终

形成了有机硝酸细粒子，这正是能见度迅速恶化的原因。

7 气溶胶的化学特征

对比华南地区的气溶胶组分，20 余年来发生了重大变化，从 20 世纪 80 年代末以硫酸根、钙为主，演变为近年以有机碳、铵、硫酸根和硝酸根为主（图 9），体现了新型复合大气污染特征。图 10 也表明，以标志性离子成分来看，代表地表扬尘、建筑尘的钙离子大幅减少说明了广州市的粉尘污染已经受到控制，而代表新型复合污染的铵离子迅速升高则值得我们注意（夏冬等，2010；吴兑，2012）。

结合前面的讨论可以发现，导致能见度恶化时细粒子的比重比较大，这说明在珠江三角洲地区的气溶胶污染中，主要是细粒子的污染。细粒子一般与气粒转化相关联，虽然自然界也存在一些如 NO_x 和 VOCs 等光化学反应前体物，但高度城市化、工业化以后主要以人类活动排放为主。相对于 SO₂ 气体通过化学氧化形成硫酸盐粒子的慢过程，气粒转化的快速过程是主要由机动车尾气排放的光化学反应前体物通过紫外线驱动的光化学氧化过程，最终形成有机硝酸细粒子（Twomey, 1984；秦瑜和赵春生，2003）。从图 10 中还可以发现，早期的气溶胶组分中以 SO₄²⁻、Ca²⁺ 等为主，而近年来二次有机碳和 NO₃⁻、NH₄⁺ 等二次粒子的比例大幅增加，这正是珠江三角洲地区近年来能见度迅速恶化的原因。

另外，沿海工业城市如深圳、汕头、湛江，虽然其污染物排放总量小于广州等中心城市，传统的空气质量指标也优于广州，但其灰霾天气明显比广州偏多，即沿海工业城市的能见度恶化趋势更加明显。使用高时间分辨率的气溶胶细粒子谱仪、各种气溶胶成分仪器等，研究气溶胶粒子谱、海盐气溶胶谱、细粒子气溶胶成分分布，分析沿海清洁大气与污染大气中气溶胶基本特征的差异，探讨海盐气溶胶巨粒子在清洁海洋大气中与污染大气中的不同作用，探讨海盐巨粒子在华南沿海工业城市污染大气中的氯损耗机制，及生成大量二次气溶胶细粒子导致能见度恶化的过程，重点分析了海岸地带与远离海岸地区海盐气溶胶的分布特征与差异，为华南沿海工业城市治理灰霾天气提供决策依据（吴兑等，2011d；陈慧忠等，2013）。

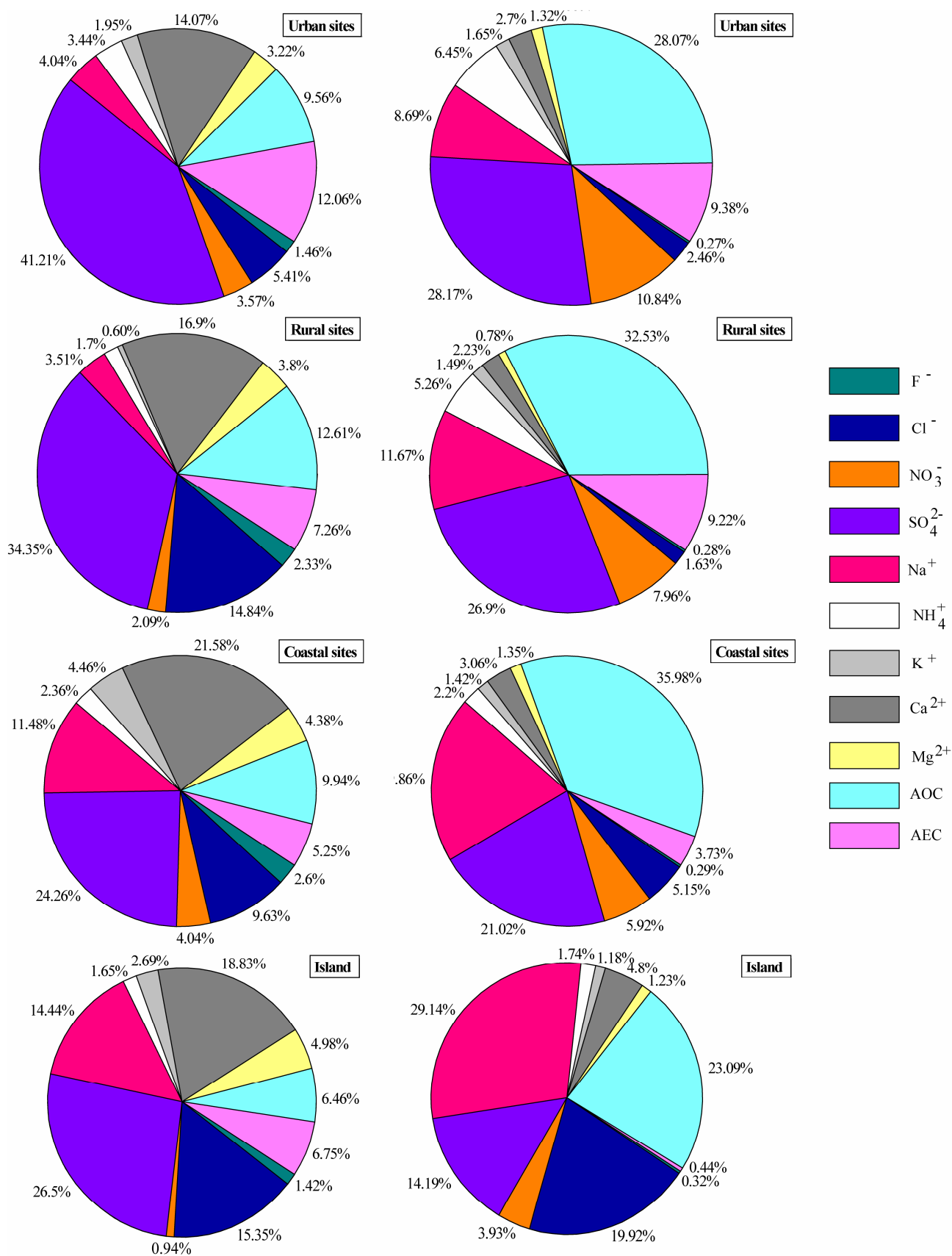


图9 早期(1988~1990年,左列)和近期(2008~2010年,右列)华南气溶胶PM10组分

Fig. 9 Chemical components of aerosol particle in Pearl River Delta in 1988–1990 (left panel) and 2008–2010 (right panel)

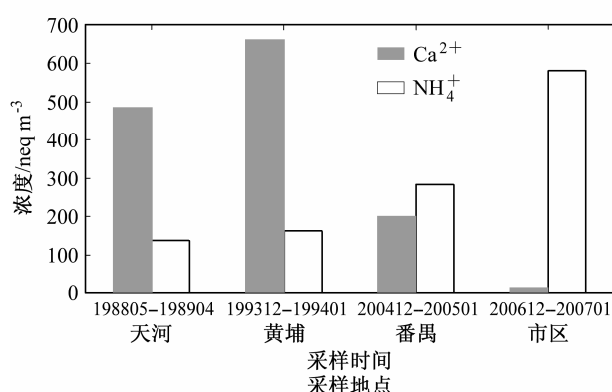


图 10 广州气溶胶中钙离子与铵离子的变化

Fig. 10 Variations of the calcium and ammonium in aerosol in Guangzhou

在综合灰霾标准、科学概念、珠江三角洲灰霾的长期变化趋势、细粒子污染本质、水平输送和垂直扩散能力以及气溶胶的光学特性和物理化学特性认识的基础上,基于中尺度气象模式(MM5)、排放源模式(SMOKE)和大气化学模式(CMAQ),耦合本地排放源清单,在2008年建立了珠江三角洲区域空气质量数值模式预报系统。该套模式系统对清洁、污染过程的一次、二次污染物都有较好的预报能力。使用2009~2011年的实测数据对预报结果进行了检验,能见度和细颗粒物的预报值和观测值的相关系数最高达0.76和0.78。 O_3 和 NO_x 的预报值和观测值的相关系数为0.64和0.61。随着预报时效的增加,预报效果没有明显降低。尤其在夏季的2个典型光化学过程中, O_3 的预报值和观测值的相关系数分别为0.68和0.81, NO_x 分别为0.57和0.64。在相关的边界层气象因子中,地表通风系数和能见度相关度最高,相关系数达0.71。混合层高度、地面风速、比湿和能见度的相关系数分别为0.55、0.50、和-0.37。在灰霾过程中,细颗粒物占PM10的质量浓度为78%。在气溶胶质量权重中,硫酸盐所占的比重最高,占细颗粒物权重达到33%,元素碳为18%,有机碳为14%,铵盐为5%,硝酸盐仅为1%。灰霾过程的二次气溶胶的质量权重比清洁过程的大(邓涛等,2012,2013)。该模式系统在广州亚运会和深圳大运会期间均发挥了重要作用。

8 结论

(1) 珠江三角洲地区在1954~1978年期间能见度非常好,每年能见度小于10 km的灰霾天气不

足40 d。自20世纪80年代初开始,该地区的能见度急剧恶化,灰霾天气显著增加,最多1年超过200 d(1997年),其中有3次大的波动,分别代表广州地区经济发展相伴随的粉尘污染、硫酸盐+粉尘污染、光化学过程的细粒子+硫酸盐+粉尘的复合污染时期,这与珠江三角洲经济容量的增加密切相关。雾和轻雾造成的能见度长期变化趋势没有因为人类活动或经济发展的影响发生趋势性变化,其波动主要反映了气候波动固有的年际和年代际变化。

(2) 近地层输送与垂直交换能力分析表明,气流停滞区的形成反映了区域平流输送条件,是珠江三角洲形成区域性、灾害性灰霾天气的主要宏观动力原因,矢量和与垂直交换系数等工具能够研究区域平流与垂直输送条件,是研制珠江三角洲区域灾害性灰霾天气预测、预报、预警系统的重要工具。

(3) 从卫星资料来看,近年来珠江三角洲地区的气溶胶污染日趋严重,大气透明度越来越差,表现为与人类活动及其经济发展水平密切相关,以及明显的区域特征。该地区长期稳定存在着气溶胶云,而且高浓度区偏于珠江口以西的珠江三角洲西侧,灰霾天气主要出现在10月至次年4月。

(4) 珠江三角洲地区能见度的恶化主要与细粒子关系比较大,PM10年均值有一半年份超过国家二级标准的年均值限值($70 \mu\text{g m}^{-3}$),而细颗粒物全部年份的年均值都超过国家二级标准的年均值限值($35 \mu\text{g m}^{-3}$),尤其是有些年份年均值超过标准限值的2倍,细粒子浓度更高。另外,近年来细颗粒物占PM10的比重非常高,可达57%~79%,因而在珠江三角洲地区的气溶胶污染中,主要是细粒子污染。

(5) 与20余年前的资料相比,细粒子的增加远较PM10的增加大得多,细粒子在气溶胶中的比重有明显增加,细颗粒物/PM10比20余年前的观测比值大得多。

(6) 黑碳气溶胶浓度很高,5~8月浓度相对较低,月均值为 $4.8\sim6.1 \mu\text{g m}^{-3}$,11月至次年1月和3月浓度较高,月均值达到 $7.3\sim8.6 \mu\text{g m}^{-3}$ 。8年平均年均值高达 $6.5 \mu\text{g m}^{-3}$,说明黑碳气溶胶污染严重,值得警惕。

(7) 早期(1988~1990年)的气溶胶组分中以 SO_4^{2-} 、 Ca^{2+} 等为主,而近年(2008~2010年)来二次有机碳和 NO_3^- 、 NH_4^+ 等二次粒子的比例大幅增

加,这正是珠江三角洲地区近年来能见度迅速恶化的主要原因之一。

参考文献 (References)

- 陈欢欢, 吴兑, 谭浩波, 等. 2010. 珠江三角洲 2001~2008 年灰霾天气过程特征分析 [J]. 热带气象学报, 26 (2): 147-155. Chen Huanhuan, Wu Dui, Tan Haobo, et al. 2010. Study on the character of haze weather process from the year 2001 to 2008 over the Pearl River Delta [J]. Journal of Tropical Meteorology (in Chinese), 26 (2): 147-155.
- 陈慧忠, 吴兑, 廖碧婷, 等. 2013. 不同酸性气体及相对湿度对海盐氯损耗过程的影响 [J]. 环境科学学报, 33 (4): 1141-1149. Chen Huizhong, Wu Dui, Liao Biting, et al. 2013. Influence of different acidic gases and relative humidity on the chlorine loss of marine aerosols [J]. Acta Scientiae Circumstantiae (in Chinese), 33 (4): 1141-1149.
- 陈静, 吴兑, 刘启汉. 2010. 广州地区低能见度事件变化特征分析 [J]. 热带气象学报, 26 (2): 156-164. Chen Jing, Wu Dui, Liu Qihan. 2010. Study of the variation trends of low visibility events in Guangzhou [J]. Journal of Tropical Meteorology (in Chinese), 26 (2): 156-164.
- 陈训来, 冯业荣, 范绍佳, 等. 2008. 离岸型背景风和海陆风对珠江三角洲地区灰霾天气的影响 [J]. 大气科学, 32 (3): 530-542. Chen Xunlai, Feng Yerong, Fan Shaojia, et al. 2008. Effect of the off-shore background flow and sea-land breezes on haze weather over the Pearl River Delta region [J]. Chinese Journal of Atmospheric Sciences (in Chinese), 32 (3): 530-542.
- 邓涛, 吴兑, 邓雪娇, 等. 2012. 珠江三角洲一次典型复合型污染过程的模拟研究 [J]. 中国环境科学, 32 (2): 193-199. Deng Tao, Wu Dui, Deng Xuejiao, et al. 2012. Simulation of a typical complex pollution process over Pearl River Delta area [J]. China Environmental Science (in Chinese), 31 (2): 193-199.
- 邓涛, 吴兑, 邓雪娇, 等. 2013. 珠三角空气质量暨光化学烟雾数值预报系统 [J]. 环境科学与技术, 36 (4): 62-68. Deng Tao, Wu Dui, Deng Xuejiao, et al. 2013. Numerical forecast system of air quality photochemical smog over Pearl River Delta region [J]. Environmental Science and Technology (in Chinese), 36 (4): 62-68.
- Deng Xuejiao, Tie Xuexi, Wu Dui, et al. 2008. Long-term trend of visibility and its characterizations in the Pearl River Delta region (PRD) China [J]. Atmospheric Environment, 42 (7): 1424-1435.
- Doyle M, Dorling S. 2002. Visibility trends in the UK 1950-1997 [J]. Atmospheric Environment, 36 (19): 3161-3172.
- 段菁春, 毕新慧, 谭吉华, 等. 2006. 广州灰霾期大气颗粒物中多环芳烃粒径的分布 [J]. 中国环境科学, 26 (1): 6-10. Duan Jingchun, Bi Xinhui, Tan Jihua, et al. 2006. The particle diameter distribution of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in atmospheric particle during haze period in Guangzhou [J]. China Environmental Science (in Chinese), 26 (1): 6-10.
- 黄健, 吴兑, 黄敏辉, 等. 2008. 1954~2004 年珠江三角洲大气能见度变化趋势 [J]. 应用气象学报, 19 (1): 61-70. Huang Jian, Wu Dui, Huang Minhui, et al. 2008. Visibility variations in the Pearl River Delta of China during the period of 1954-2004 [J]. Journal of Applied Meteorological Science (in Chinese), 19 (1): 61-70.
- 廖碧婷, 吴兑, 陈静, 等. 2012. 灰霾天气变化特征及垂直交换系数的预报应用 [J]. 热带气象学报, 28 (3): 417-424. Liao Biting, Wu Dui, Chen Jing, et al. 2012. Study of the variation trends of haze and application of the vertical exchange coefficient [J]. Journal of Tropical Meteorology (in Chinese), 28 (3): 417-424.
- 李明华, 范绍佳, 王宝民, 等. 2008. 秋季珠江口地区海风对城市群空气污染的影响 [J]. 中山大学学报 (自然科学版), 47 (4): 114-121. Li Minghua, Fan Shaojia, Wang Baomin, et al. 2008. Effect of sea breeze on air pollution of city clusters in the Pearl River Delta in autumn [J]. Acta Scientiarum Naturalium Universitatis Sunyatseni (in Chinese), 47 (4): 114-121.
- Lohmann U, Lesins G. 2002. Stronger constraints on the anthropogenic indirect aerosol effect [J]. Science, 298 (5595): 1012-1015.
- 罗云峰, 周秀骥, 李维亮. 1998. 大气气溶胶辐射强迫及气候效应的研究现状 [J]. 地球科学进展, 13 (6): 572-581. Luo Yunfeng, Zhou Xiuji, Li Weiliang. 1998. Advances in the study of atmospheric aerosol radiative forcing and climate change [J]. Advance in Earth Sciences (in Chinese), 13 (6): 572-581.
- 陆克定, 张远航, 苏杭, 等. 2010. 珠江三角洲夏季臭氧区域污染及其控制因素分析 [J]. 中国科学 (化学), 40 (4): 407-420. Lu Keding, Zhang Yuanhang, Su Hang, et al. 2010. Regional ozone pollution and key controlling factors of photochemical ozone production in Pearl River Delta during summer time [J]. Scientia Sinica (Chimica) (in Chinese), 40 (4): 407-420.
- Menon S, Hansen J, Nazarenko L, et al. 2002. Climate effects of black carbon aerosols in China and India [J]. Science, 297 (5590): 2250-2253.
- Penner J E, Dong X Q, Chen Y. 2004. Observational evidence of a change in radiative forcing due to the indirect aerosol effect [J]. Nature, 427 (6971): 231-234.
- 秦瑜, 赵春生. 2003. 大气化学基础 [M]. 北京: 气象出版社, 81-91. Qin Yu, Zhao Chunsheng. 2003. The Basis of the Atmospheric Chemistry (in Chinese) [M]. Beijing: China Meteorological Press, 81-91.
- Ramanathan V, Crutzen P J, Mitra A P, et al. 2002. The Indian Ocean experiment and the Asian brown cloud [J]. Current Science, 83 (8): 947-955.
- Schichtel B A, Husar R B, Falke S R, et al. 2001. Haze trends over the United States 1980-1995 [J]. Atmos. Environ., 35 (30): 5205-5210.
- 沈劲, 王雪松, 李金凤, 等. 2011. Models-3/CMAQ 和 CAMx 对珠江三角洲臭氧污染模拟的比较分析 [J]. 中国科学 (化学), 41 (11): 1750-1762. Shen Jin, Wang Xuesong, Li Jinfeng, et al. 2011. Evaluation and intercomparison of ozone simulations by Models-3/CMAQ and CAMx over Pearl River Delta [J]. Scientia Sinica (Chimica) (in Chinese), 41 (11): 1750-1762.
- 司徒淑婷, 王雪梅, Guenther A, 等. 2009. 典型夏季珠江三角洲地区植被的异戊二烯排放 [J]. 环境科学学报, 29 (4): 822-829. Situ Shupin, Wang Xuemei, Guenther A, et al. 2009. Typical summertime isoprene emission from vegetation in the Pearl River Delta region, China [J]. Acta Scientiae Circumstantiae (in Chinese), 29 (4): 822-829.
- 谭浩波, 吴兑, 毕雪岩. 2006. 南海北部气溶胶光学厚度观测研究 [J]. 热带海洋学报, 25 (5): 21-25. Tan Haobo, Wu Dui, Bi Xueyan. 2006. Measurement and study of aerosol optical depth over northern South

- China Sea [J]. Journal of Tropical Oceanography (in Chinese), 25 (5): 21–25.
- 谭浩波, 吴兑, 邓雪娇, 等. 2009. 珠江三角洲气溶胶光学厚度的观测研究 [J]. 环境科学学报, 29 (6): 1146–1155. Tan Haobo, Wu Dui, Deng Xuejiao, et al. 2009. Observation of aerosol optical depth over the Pearl River Delta [J]. Acta Scientiae Circumstantiae (in Chinese), 29 (6): 1146–1155.
- 陶俊, 朱李华, 韩静磊, 等. 2008. 2007 年春季广州城区黑碳气溶胶污染特征的初步研究 [J]. 气候与环境研究, 13 (5): 658–662. Tao Jun, Zhu Lihua, Han Jinglei, et al. 2008. Preliminary study on characteristics of black carbon aerosol pollution in Guangzhou during the spring of 2007 [J]. Climatic and Environmental Research (in Chinese), 13 (5): 658–662.
- 陶俊, 张仁健, 董林, 等. 2010. 夏季广州城区细颗粒物 PM_{2.5} 和 PM_{1.0} 中水溶性无机离子特征 [J]. 环境科学, 31 (7): 1417–1424. Tao Jun, Zhang Renjian, Dong Lin, et al. 2010. Characterization of water-soluble inorganic ions in PM_{2.5} and PM_{1.0} in summer in Guangzhou [J]. Environmental Science (in Chinese), 31 (7): 1417–1424.
- Twomey S. 1984. 大气气溶胶 [M]. 王明星等, 译. 北京: 科学出版社, 21–28. Twomey S. 1984. Atmospheric Aerosol (in Chinese) [M]. Wang M X, et al. translated. Beijing: Science Press, 21–28.
- UK Meteorological Office. 1982 Observer's Handbook (4th ed.) [S]. London: HMSO. 60, 61, 64, 78.
- UK Meteorological Office. 1991 Meteorological Glossary (6th ed.) [S]. London: HMSO. 116, 145, 189.
- UK Meteorological Office. 1994 Handbook of Aviation Meteorology (3rd ed.) [S]. London: HMSO. 144, 200.
- 王伯光, 张远航, 邵敏, 等. 2008. 广州地区大气中 C₂~C₉ 非甲烷碳氢化合物的人为来源 [J]. 环境科学学报, 28 (7): 1430–1440. Wang Boguang, Zhang Yuanhang, Shao Min, et al. 2008. Sources apportionment of anthropogenic C₂–C₉ non-methane hydrocarbons in the atmosphere of Guangzhou, China [J]. Acta Scientiae Circumstantiae (in Chinese), 28 (7): 1430–1440.
- 王茜, 王雪梅, 钟流举, 等. 2009. 珠江口无机氮湿沉降规律及大气输送的研究 [J]. 环境科学学报, 29 (6): 1156–1163. Wang Qian, Wang Xuemei, Zhong Liuju, et al. 2009. Wet deposition of inorganic nitrogen and atmospheric transport at the estuary of the Pearl River [J]. Acta Scientiae Circumstantiae (in Chinese), 29 (6): 1156–1163.
- Wang X M, Xiang D, Xiao X F, et al. 2012. Aerosol scattering coefficients and major chemical compositions of fine particles observed at a rural site in the central Pearl River Delta, South China [J]. Journal of Environmental Sciences, 24 (1): 72–77.
- World Meteorological Organization. 2001. WMO–No. 782–Aerodrome Reports and Forecasts: A User's Handbook to the Codes (3rd ed.) [S]. 67–68.
- World Meteorological Organization. 2005. WMO–No. 782–Aerodrome Reports and Forecasts: A User's Handbook to the Codes (4th ed.) [S]. 18, 71–72.
- World Meteorological Organization. 2008. WMO–No. 782–Aerodrome Reports and Forecasts: A User's Handbook to the Codes (5th ed.) [S]. 21, 77–78.
- 吴兑. 1995. 南海北部大气气溶胶水溶性成分谱分布特征 [J]. 大气科学, 19 (5): 615–622. Wu Dui. 1995. The distribution characteristics of water-soluble composition of atmospheric aerosol over north of the South China Sea [J]. Chinese Journal of Atmospheric Sciences (in Chinese), 19 (5): 615–622.
- 吴兑. 2005. 关于霾与雾的区别和灰霾天气预警的讨论 [J]. 气象, 31 (4): 3–7. Wu Dui. 2005. A discussion on difference between haze and fog and warning of ash haze weather [J]. Meteorological Monthly (in Chinese), 31 (4): 3–7.
- 吴兑. 2006. 再论都市霾与雾的区别 [J]. 气象, 32 (4): 9–15. Wu Dui. 2006. More discussions on the differences between haze and fog in city [J]. Meteorological Monthly (in Chinese), 32 (4): 9–15.
- 吴兑. 2008a. 霾与雾的识别和资料分析处理 [J]. 环境化学, 27 (3): 327–330. Wu Dui. 2008a. Discussion on the distinction between haze and fog and analysis and processing of data [J]. Environmental Chemistry (in Chinese), 27 (3): 327–330.
- 吴兑. 2008b. 大城市区域霾与雾的区别和灰霾天气预警信号发布 [J]. 环境科学与技术, 31 (9): 1–7. Wu Dui. 2008b. Distinction between haze and fog in urban metropolitans and hazy weather warnings [J]. Environmental Science and Technology (in Chinese), 31 (9): 1–7.
- 吴兑. 2012. 新版《环境空气质量标准》热点污染物 PM_{2.5} 监控策略的思考与建议 [J]. 环境监控与预警, 4 (4): 1–7. Wu Dui. 2012. Thinking and advice on the controlling strategy of PM_{2.5}—The hot pollutant in the new Ambient Air Quality Standard of China [J]. Environmental Monitoring and Forewarning (in Chinese), 4 (4): 1–7.
- 吴兑, 陈位超. 1994. 广州气溶胶质量谱与水溶性成分谱的年变化特征 [J]. 气象学报, 52 (4): 499–505. Wu Dui, Cheng Weichao. 1994. Intra-annual variation features of mass distribution and water soluble composition distribution of atmospheric aerosol over Guangzhou [J]. Acta Meteorologica Sinica (in Chinese), 52 (4): 499–505.
- 吴兑, 邓雪娇. 2001. 环境气象学与特种气象预报 [M]. 北京: 气象出版社. Wu Dui, Deng Xuejiao. 2001. Environmental Meteorology and Special Weather Forecast (in Chinese) [M]. Beijing: China Meteorological Press.
- 吴兑, 黄浩辉, 邓雪娇. 2001. 广州黄埔工业区近地层气溶胶分级水溶性成分的物理化学特征 [J]. 气象学报, 59 (2): 213–219. Wu Dui, Huang Haohui, Deng Xuejiao. 2001. The physical and chemical features of water-soluble composition of graded aerosols in the surface-layer over Huangpu industrial area in Guangzhou [J]. Acta Meteorologica Sinica (in Chinese), 59 (2): 213–219.
- Wu Dui, Tie X X, Deng X J. 2006. Chemical characterizations of soluble aerosols in southern China [J]. Chemosphere, 64 (5): 749–757.
- 吴兑, 常业谛, 毛节泰, 等. 1994. 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 [J]. 热带气象学报, 10 (1): 85–96. Wu Dui, Chang Yedi, Mao Jietai, et al. 1994. A primary study of the size-distribution and water soluble composition distribution of atmospheric aerosols over South China [J]. Journal of Tropical Meteorology (in Chinese), 10 (1): 85–96.
- Wu Dui, Tie X X, Li C C, et al. 2005. An extremely low visibility event over the Guangzhou region: A case study [J]. Atmospheric Environment, 39 (35): 6568–6577.
- 吴兑, 吴晓京, 朱小祥. 2009. 雾和霾 [M]. 北京: 气象出版社, 198. Wu Dui, Wu Xiaojing, Zhu Xiaoxiang. 2009. Fog and Haze (in Chinese)

- [M]. Beijing: China Meteorological Press, 198.
- 吴兑, 毕雪岩, 邓雪娇, 等. 2006a. 珠江三角洲大气灰霾导致能见度下降问题研究 [J]. 气象学报, 64 (4): 510–517. Wu Dui, Bi Xueyan, Deng Xuejiao, et al. 2006a. Effect of atmospheric haze on the deterioration of visibility over the Pearl River Delta [J]. Acta Meteorologica Sinica (in Chinese), 64 (4): 510–517.
- 吴兑, 毕雪岩, 邓雪娇, 等. 2006b. 珠江三角洲气溶胶云造成的严重灰霾天气 [J]. 自然灾害学报, 15 (6): 77–83. Wu Dui, Bi Xueyan, Deng Xuejiao, et al. 2006b. Heavy haze weather resulting from aerosol cloud over Pearl River Delta [J]. Journal of Natural Disasters (in Chinese), 15 (6): 77–83.
- 吴兑, 邓雪娇, 毕雪岩, 等. 2007. 细粒子污染形成灰霾天气导致广州地区能见度下降 [J]. 热带气象学报, 23 (1): 1–6. Wu Dui, Deng Xuejiao, Bi Xueyan, et al. 2007. Study on the visibility reduction caused by atmospheric haze in Guangzhou area [J]. Journal of Tropical Meteorology (in Chinese), 23 (1): 1–6.
- 吴兑, 廖国莲, 邓雪娇, 等. 2008. 珠江三角洲霾天气的近地层输送条件研究 [J]. 应用气象学报, 19 (1): 1–9. Wu Dui, Liao Guolian, Deng Xuejiao, et al. 2008. Transport condition of surface layer under haze weather over the Pearl River Delta [J]. Journal of Applied Meteorological Science (in Chinese), 19 (1): 1–9.
- Wu D, Mao J T, Deng X J, et al. 2009. Black carbon aerosols and their radiative properties in the Pearl River Delta region [J]. Science China Earth Sciences, 52 (8): 1152–1163.
- 吴兑, 汤仕文, 邓雪娇, 等. 2010a. 霾的观测和预报等级, QX/T113–2010, 中华人民共和国气象行业标准 [S]. 北京: 气象出版社. Wu Dui, Tang Shiwen, Deng Xuejiao, et al. 2010a. Meteorological standard of the People's Republic of China, QX/T 113–2010, Observation and forecast levels of haze (in Chinese) [S]. Beijing: China Meteorological Press.
- 吴兑, 吴晓京, 李菲, 等. 2010b. 1951~2005 年中国大陆霾的时空变化 [J]. 气象学报, 68 (5): 680–688. Wu Dui, Wu Xiaojing, Li Fei, et al. 2010. Temporal and spatial variation of haze during 1951–2005 in mainland China [J]. Acta Meteorologica Sinica (in Chinese), 68 (5): 680–688.
- 吴兑, 吴晟, 李海燕, 等. 2011a. 穗港晴沙两重天—2010 年 3 月 17~23 日珠三角典型灰霾过程分析 [J]. 环境科学学报, 31 (4): 695–703. Wu Dui, Wu Cheng, Li Haiyan, et al. 2011a. Dusty sky in Hong Kong and clear sky in the inland of the Pearl River Delta: Analysis of a typical haze episode during 17–23 March 2010 [J]. Acta Scientiae Circumstantiae (in Chinese), 31 (4): 695–703.
- 吴兑, 吴晟, 李菲, 等. 2011b. 粗粒子气溶胶远距离输送造成华南严重空气污染的分析 [J]. 中国环境科学, 31 (4): 540–545. Wu Dui, Wu Cheng, Li Fei, et al. 2011b. Air pollution episode in southern China due to the long-range transport of coarse particle aerosol [J]. China Environmental Science (in Chinese), 31 (4): 540–545.
- 吴兑, 吴晟, 陈欢欢, 等. 2011c. 珠三角 2009 年 11 月严重灰霾天气过程分析 [J]. 中山大学学报, 50 (5): 40–47. Wu Dui, Wu Cheng, Chen Huanhuan, et al. 2011c. The analysis on severe haze in November 2009 over Pearl River Delta [J]. Acta Scientiarum Universitatis Sunyatseni (in Chinese), 50 (5): 40–47.
- 吴兑, 吴晟, 毛夏, 等. 2011d. 沿海城市灰霾天气与海盐氯损耗机制的关系 [J]. 环境科学与技术, 34 (6G): 38–43. Wu Dui, Wu Cheng, Mao Xia, et al. 2011d. The relationships between haze weather in coastal cities and chlorine loss of sea salt aerosol [J]. Environmental Science and Technology (in Chinese), 34 (6G): 38–43.
- 吴兑, 刘敬汉, 梁延刚, 等. 2012. 粤港细粒子 (PM_{2.5}) 污染导致能见度下降与灰霾天气形成的研究 [J]. 环境科学学报, 32 (11): 2660–2669. Wu Dui, Alexis Kai-Hon Lau, Leung Yinkong, et al. 2012. Hazy weather formation and visibility deterioration resulted from fine particulate (PM_{2.5}) pollutions in Guangdong and Hong Kong [J]. Acta Scientiae Circumstantiae (in Chinese), 32 (11): 2660–2669.
- Wu D, Wu C, Liao B, et al. 2013. Black carbon over the South China Sea and in various continental locations in South China [J]. Atmos. Chem. Phys., 13: 12257–12270.
- Wu M, Wu D, Fan Q, et al. 2013. Observational studies of the meteorological characteristics associated with poor air quality over the Pearl River Delta in China [J]. Atmos. Chem. Phys., 13: 10755–10766.
- 夏冬, 杨少杰, 吴兑, 等. 2010. 广州市气溶胶质量谱和水溶性成分谱分析 [J]. 热带气象学报, 25 (6): 675–680. Xia Dong, Yang Shaojie, Wu Dui, et al. 2010. Analysis of the mass spectrum and water dissoluble components of atmospheric aerosols over Guangzhou [J]. Journal of Tropical Meteorology (in Chinese), 25 (6): 675–680.
- Xu H J, Wang X M, Pöschl U, et al. 2008. Genotoxicity of total and fractionated extractable organic matter in fine air particulate matter from urban Guangzhou: Comparison between haze and non-haze episode days [J]. Environmental Toxicology and Chemistry, 27 (1): 206–212.
- 张霭琛. 2000. 现代气象观测 [M]. 北京: 北京大学出版社, 53. Zhang Aichen. 2000. The Modern Weather Observation (in Chinese) [M]. Beijing: Peking University Press, 53.
- 张人文, 范绍佳. 2011. 珠江三角洲风场对空气质量的影响 [J]. 中山大学学报 (自然科学版), 50 (6): 130–134. Zhang Renwen, Fan Shaojia. 2011. Study of the influence of wind field on air quality over the Pearl River Delta [J]. Acta Scientiarum Naturalium Universitatis Sunyatseni (in Chinese), 50 (6): 130–134.
- 中华人民共和国环境保护部. 2012. 中华人民共和国国家标准, GB3095–2012 环境空气质量标准 [S]. 北京: 中国环境科学出版社. Ministry of Environmental Protection of the People's Republic of China. 2012. National standard of the People's Republic of China, Ambient air quality standard (in Chinese) [S]. Beijing: China Environmental Science Press.
- 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 [J]. 中国科学 (化学), 40 (12): 1731–1740. Zhu Tong, Shang Jing, Zhao Defeng. 2010. The roles of heterogeneous chemical processes in the formation of an air pollution complex and gray haze [J]. Scientia Sinica (Chimica) (in Chinese), 40 (12): 1731–1740.