

杨雨灵, 谭吉华, 孙家仁, 等. 2015. 华北地区一次强灰霾污染的天气学效应 [J]. 气候与环境研究, 20 (5): 555–570. Yang Yuling, Tan Jihua, Sun Jiaren, et al. 2015. Synoptic effect of a heavy haze episode over North China [J]. Climatic and Environmental Research (in Chinese), 20 (5): 555–570, doi:10.3878/j.issn.1006-9585.2015.15018.

华北地区一次强灰霾污染的天气学效应

杨雨灵^{1,2} 谭吉华¹ 孙家仁² 王莉莉³ 王学远⁴ 张元勋¹ 瞿群² 赵伟²

1 中国科学院大学中国科学院怀柔生态环境综合观测研究站, 北京 100049

2 环境保护部华南环境科学研究所城市生态环境研究中心, 广州 510655

3 中国科学院大气物理研究所, 北京 100029

4 南京大学大气科学学院, 南京 210093

摘 要 利用在线耦合的大气化学模式 WRF-ChemV3.6 (Weather Research Forecasting Model with Chemistry Version 3.6) 及环境、气象观测数据, 在完成大气化学方案优选的基础上, 研究了华北地区一次重霾污染过程 (2013 年 2 月 15~17 日) 对气象条件的反馈作用。重点关注一次颗粒物、无机气态成分和挥发性有机污染物的人为排放对 PM_{2.5} (空气动力学当量直径小于等于 2.5 μm 的颗粒物, 即细颗粒物) 生成的贡献, 探讨了由此引发的气象条件的变化。模拟结果显示, 上述 3 种人为源的综合排放对华北地区 PM_{2.5} 浓度的平均贡献率为 91.27%, 其中对北京、秦皇岛和沧州的贡献率分别达 96.9%、95.9% 和 97.2%。这使区域地面太阳向下短波辐射降低近 15.99%, 区域平均地面辐射强迫达 -26.51 W m^{-2} , 由此导致地面温度下降 $0.14 \text{ }^{\circ}\text{C}$ (3.68%), 逆温增强, 垂直温度梯度 ($\partial T/\partial z$) 升高 0.026 K km^{-1} , 边界层高度降低 18.92 m (8.77%), 平均风速减少约 0.014 m s^{-1} (0.35%), 相对湿度绝对值升高 0.51%, 地面平均气压降低 0.86 Pa。对于 15~17 日污染过程, 人为源综合排放的气溶胶对短波辐射的影响在天气过程中占主导地位, 对边界层高度的影响较大, 但不起主导作用, 对温度、风速、相对湿度、气压的作用则远小于天气系统本身。挥发性有机污染物 (Volatile Organic Compounds, VOCs) 作为二次有机气溶胶 (Secondary Organic Aerosol, SOA) 的前体物, 其人为排放对 SOA 浓度的贡献率约为 99.6%。同时, VOCs 通过调整大气反应活性促进无机气态成分向无机盐转化, 它对硫酸盐和硝酸盐浓度的贡献达 50% 以上。然而, VOCs 对整个 PM_{2.5} 浓度的贡献不及各种源综合贡献的 1/4。人为排放的 VOCs 对气象场的反馈与综合排放的作用基本一致, 但对地面气压的影响 VOCs 排放时以热力因子为主, 而人为源综合排放时以动力因子为主。上述结果暗示, 灰霾污染过程所引发的气象条件向不利于污染物扩散方向改变, 这可能促进污染物的局地累积、增强污染程度并延长区域内重污染的持续时间。因此, 在探讨区域性灰霾污染成因时, 灰霾自身通过辐射强迫作用对大气的调节是不可忽视的重要影响因素。

关键词 WRF-Chem 模式 华北地区 灰霾 挥发性有机污染物 (VOCs) 反馈作用

文章编号 1006-9585 (2015) 05-0555-16

中图分类号 P402

文献标识码 A

doi:10.3878/j.issn.1006-9585.2015.15018

Synoptic Effect of a Heavy Haze Episode over North China

YANG Yuling^{1,2}, TAN Jihua¹, SUN Jiaren², WANG Lili³, WANG Xueyuan⁴, ZHANG Yuanxun¹,
QU Qun², and ZHAO Wei²

1 Huairou Eco-Environmental Observatory, College of Resources and Environment, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049

收稿日期 2015-01-23; **网络预出版日期** 2015-05-16

资助项目 国家自然科学基金项目 41475140、41375092、41475116, 国家重点基础研究发展计划项目 2011CB403403, 中央级公益性科研院所基本科研业务费专项 PM-zx021-201311-024

作者简介 杨雨灵, 女, 1989 年出生, 硕士研究生, 主要研究方向为大气环境数值模拟。E-mail: sheyy11989@163.com

通讯作者 孙家仁, E-mail: sunjiaren@scies.org

2 South China Institute of Environmental Sciences, Ministry of Environmental Protection, Guangzhou 510655

3 Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029

4 School of Atmosphere Sciences, Nanjing University, Nanjing 210093

Abstract Version 3.6 of the online-coupled meteorology–chemistry model WRF-Chem (Weather Research Forecasting Model with Chemistry) was applied to simulate the feedback effect of a heavy haze episode (15–17 February 2013) on the synoptic conditions, based on optimization of the model scheme with observed data. We focus on the contribution of anthropogenic emissions, including primary particles, inorganic gas compositions, and volatile organic compounds (VOCs), to the formation of fine particulate matter (PM_{2.5}), and the feedback effect on meteorological variables. The model results show that the contribution rate of anthropogenic emissions to the regional average PM_{2.5} concentration is 91.27% over North China and 96.9%, 95.9%, and 97.2% in Beijing, Qinhuangdao, and Cangzhou, respectively, leading to a 15.99% decrease in regional downward shortwave radiation, with regional radiative forcing at the surface estimated to be -26.51 W m^{-2} . Consequently, the 2-m temperature decreases by $0.14 \text{ }^{\circ}\text{C}$ (3.68%), and the inversion intensifies so that the vertical temperature gradient ($\partial T/\partial z$) increases by 0.026 K km^{-1} , which leads to a boundary layer height reduction of 18.92 m (8.77%). The 10-m wind speed decreases by 0.014 m s^{-1} (0.35%), surface relative humidity increases by 0.51%, and surface pressure reduces by 0.86 Pa. For the haze episode during 15–17 February, the feedback effect of anthropogenic emissions on downward shortwave radiation plays a leading role in the weather process, which has a great influence—but not a leading role—on boundary layer height, and has little influence on temperature, wind speed, relative humidity, and surface pressure. As the precursors of secondary organic aerosol (SOA), volatile organic compounds (VOCs) contribute 99.6% to the concentration of SOA; moreover, VOCs transform inorganic gas into inorganic salt by adjusting the reactivity of the atmosphere, and they contribute greater than 50% of sulfates and nitrates. Even so, the contribution of VOCs to the PM_{2.5} concentration is less than 1/4 of the contribution of all anthropogenic emissions. The feedback effect of anthropogenic VOCs is about the same as anthropogenic emissions, but the effect of VOCs on surface pressure is led by thermal factors and all the anthropogenic emissions are led by dynamic factors. These results imply that the meteorological feedback effect induced by haze pollution was not conducive to the dispersal of air pollutants but contributed to local accumulation, which resulted in a more prolonged and serious pollution episode than might otherwise have been the case. Hence, the self-adjustment of air pollutants is an ineligible factor in analyzing the formation mechanism of regional haze.

Keywords WRF-Chem model, North China, Haze, Volatile organic compounds (VOCs), Feedback

1 引言

2013 年年初,我国多地遭遇了大范围持续灰霾污染。华北地区作为污染最严重的地区之一,污染持续时间长达两月之久,PM_{2.5} (空气动力学当量直径小于等于 $2.5 \mu\text{m}$ 的颗粒物,即细颗粒物)小时浓度最高达到 $680 \mu\text{g m}^{-3}$ (Wang Y S et al., 2014)。这种区域性大规模霾污染的成因、来源及各种来源的贡献水平等系列问题一度引发社会与科学界的关注 (张小曳等, 2013; Ding and Liu, 2014; 高怡和张美根, 2014; Mu and Zhang, 2014; Wang L L et al., 2014; Wang Y S et al., 2014; 王跃思等, 2014; Zhang et al., 2014)。已有研究表明,源排放、地形条件、气象因子及其与霾污染的相互作用 (张小曳等, 2013; 高怡和张美根, 2014; Mu and Zhang, 2014; 王跃思等, 2014; Wang Z F et al., 2014; Zhang

et al., 2014) 是诱发华北地区强霾污染形成的重要原因。综合考虑这三方面因素的共同作用对于全面认识灰霾的成因和科学制定防控策略具有重要的指导意义。其中,由于人为源排放及其与气象因子的双向反馈同时存在 (张小曳等, 2013; Wang Z F et al., 2014),使得削减人为源排放对于减缓或防范区域污染具有双重作用 (孙家仁等, 2011; 张小曳等, 2013)。因此,将人为源排放对霾生成的贡献及霾污染所引发的天气学效应结合起来研究,对于深入认识霾的形成具有重要的科学意义。

一次颗粒物 (Primary Particles, PPs)、无机气态成分 (Inorganic Gaseous Compositions, IGCs; 包括 SO_2 、 NO 、 NO_2 、 NH_3 、 CO) 和挥发性有机污染物 (Volatile Organic Compounds, VOCs) 的人为排放对灰霾生成具有重要的贡献,但它们对 2013 年 2 月强霾污染的贡献程度仍不十分清楚。最近的研究发现,二次有机气溶胶 (Secondary Organic Aerosol,

SOA) 对华北地区 2013 年 1 月重灰霾污染的形成起重要贡献作用, 其中对北京 PM_{2.5} 浓度的贡献率达到 25.8% (Huang et al., 2014)。那么作为 SOA 的重要前体物, VOCs 的人为排放对 SOA 和二次无机气溶胶 (Secondary Inorganic Aerosols, SIA) 的贡献水平如何? 值得深入研究。同时, 由这些人为排放引起的强霾污染对天气条件的影响也是值得探讨的科学问题。虽然关于气溶胶通过辐射强迫引起区域天气气候效应的研究已有较多 (Charlson et al., 1992; Fast et al., 2006; Civerolo et al., 2007; Jacob and Winner, 2009; Solazzo et al., 2012)。譬如 Jacobson and Kaufman (2006) 指出中国地区的气溶胶排放对该区域风速的减小有直接影响。也有学者认为气溶胶的排放与东亚夏季风的减弱关系密切 (Menon et al., 2002; Ming et al., 2005; Lau et al., 2006; Bollasina et al., 2008, 2011; Meehl et al., 2008; Liu et al., 2009; 王志立等, 2009; Ji et al., 2011; Mahmood and Li, 2013, 2014; 沈新勇等, 2013; 王勇等, 2013)。这些研究对于深入认识气溶胶的气候效应具有重要意义, 但它们多从气候学尺度进行探讨, 针对极端灰霾污染带来的天气系统变化方面的研究 (张小曳等, 2013; Wang Z F et al., 2014) 仍然偏少, 存在较大的不确定性。

出于以上考虑, 本文引入在线耦合的大气化学模式 WRF-Chem (Weather Research Forecasting Model with chemistry), 并在对大气化学方案优选的基础上, 探讨了上述 3 种人为源的综合排放对华北地区 2013 年 2 月强霾污染的贡献, 并揭示了由此引发的一系列天气学效应。同时, 本文还专门研究了人为排放的 VOCs 对 SOA、SIA 和 PM_{2.5} 浓度的贡献情况及天气学效应。

2 模式介绍及数据说明

2.1 模式介绍

WRF-Chem 模式是由美国国家大气和海洋局 (NOAA) 研发的新一代在线耦合的空气质量模式, 它的特点在于实现了气象场和大气成分的双向反馈 (Grell and Baklanov, 2011), 更接近真实大气环境。模式系统主要包括前处理系统 WPS (WRF Pre-processing System)、同化系统 WRF-Var、包括化学反应机制在内的主程序运算系统 WRF-ARW (Advanced Research WRF)、以及后处理系统; 包含

输送 (包括平流、扩散和对流过程)、干湿沉降、气相化学、辐射和光解作用、气溶胶形成、生物源排放等多种过程; 包含 SAPRC99 (Statewide Air Pollution Research Center mechanism 99)、RADM2 (Regional Acid Deposition Model 2)、RACM (Regional Atmospheric Chemical Mechanism)、RACM-MIM (Mainz Isoprene Mechanism)、CB4 (Carbon Bond 4)、CBMZ (Carbon Bond Mechanism Zaveri) 和 MOZART (Model for Ozone And Related chemical Tracers) 等多种化学转化机制以及 GOCART (Goddard Chemistry Aerosol Radiation and Transport)、MADE/SORGAM (Modal Aerosol Dynamics Model for Europe/Secondary Organic Aerosol Model)、MOSAIC (Model for Simulating Aerosol Interactions and Chemistry) 等多种气溶胶方案。目前该模式已广泛用于模拟污染物的浓度分布和传输转化过程 (Jiang et al., 2008; Tie et al., 2009a, 2009b; Ying et al., 2009)。研究结果表明, WRF-Chem 可以较为准确模拟出气溶胶浓度的时空变化。由于其实现了气象和化学的双向耦合过程, WRF-Chem 可以用于研究气溶胶与气象条件的双向反馈作用 (Wang et al., 2009; Zhang et al., 2010; Forkel et al., 2012)。

本文采用的是 2014 年 4 月 18 日更新的 WRF-ChemV3.6 版本。研究区域采用双层嵌套, 模拟区域见图 1。外层区域网格数为 123 (东西) × 129 (南北), 分辨率为 27 km, 中心经纬度为

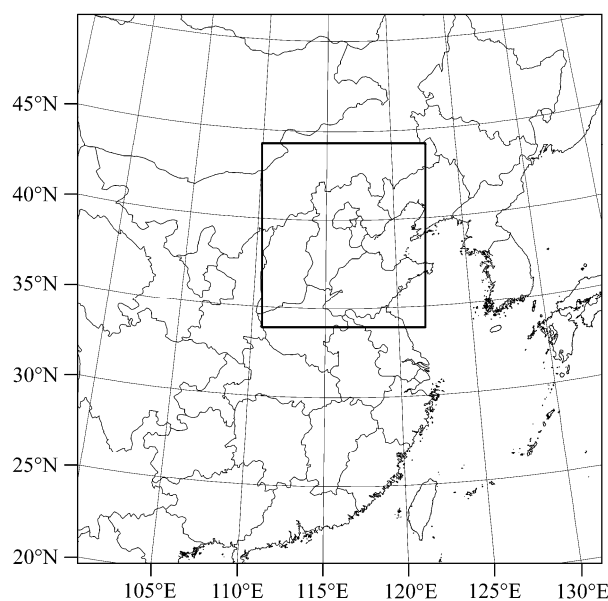


图 1 模拟区域
Fig. 1 Model domains

(36.139°N, 115.97°E)。包括华北、华中、华东、华南、东北、西北和西南东部地区,覆盖了京津冀、长三角、珠三角以及成渝等污染排放较高的区域;内层区域的网格数为 115 (东西)×130 (南北),水平分辨率为 9 km,主要包括华北地区。模式垂直方向设置 42 层,其中 1 km 以下层数为 11 层。模拟时段为 2013 年 2 月 1 日 00:00 (北京时间,下同)至 2 月 28 日 18:00,每次积分 4 d 12 h,考虑模式的初始化,去除每次积分的前 12 个小时值,取后 4 天结果进行分析,如此循环直至获取整个 2013 年 2 月模拟的小时值。

2.2 数据说明

模拟输入的气象数据来源于美国国家环境预测中心 (NCEP) 发布的再分析资料 (<http://rda.ucar.edu/datasets>[2014-09-01]), 网格分辨率为 1° (纬度)×1° (经度), 时间分辨率为 6 h。人为排放源清单采用清华大学中国多尺度排放清单模型 (Multi-resolution Emission Inventory for China, MEIC) 提供的 2010 年逐月排放清单 (<http://www.meicmodel.org> [2014-09-01]), 清单空间分辨率为 0.25° (纬度)×0.25° (经度), 按行业分为电力、工业、民用、交通、农业 5 类。并根据 Wang et al. (2010) 的研究结果, 使用不同行业不同污染物日变化的归一化权重系数对月平均资料进行时间上的分配。用于模拟效果评估的气象观测数据来源于中国气象科学数据共享服务网 (<http://cdc.nmic.cn> [2014-09-01]), 空气质量监测数据来源于中国环境

监测总站的城市空气质量发布平台 (<http://113.108.142.147:20035/emcpublish> [2014-09-01])。

3 模拟方案的优选与评估

3.1 方案的优选

WRF-Chem 模式不同大气化学方案对污染物浓度的模拟效果存在一定的差异 (郭晓霜等, 2014), 这种差异性同时受研究区域和时间段的影响。为了再现本次华北地区重灰霾污染过程, 选取以下 4 种化学方案并利用北京怀柔站的监测数据对各方案的模拟效果进行检验:

(1) RADM2-MADE/SORGAM 方案 (简称 Chem01): 气相化学反应使用 RADM2 机制, 气溶胶方案选用 MADE/SORGAM 机制;

(2) RADM2-MADE/SORGAM_aq 方案 (简称 Chem02): 气相化学同样使用 RADM2 机制, 气溶胶方案选取 MADE/SORGAM_aq, 即在 Chem01 的基础上考虑了气溶胶液相化学过程;

(3) CBMZ-MOSAIC-8bins 方案 (简称 Chem03): 选取 CBMZ 气相化学机制和 8 粒径档 MOSAIC 气溶胶方案;

(4) CBMZ-MADE/SORGAM 方案 (简称 Chem04): 选取 CBMZ 气相化学机制以及 MADE/SORGAM 气溶胶方案。

从对北京怀柔站 PM_{2.5} 浓度的模拟值与监测值的对比 (图 2) 可见, 当选择 Chem01 方案时,

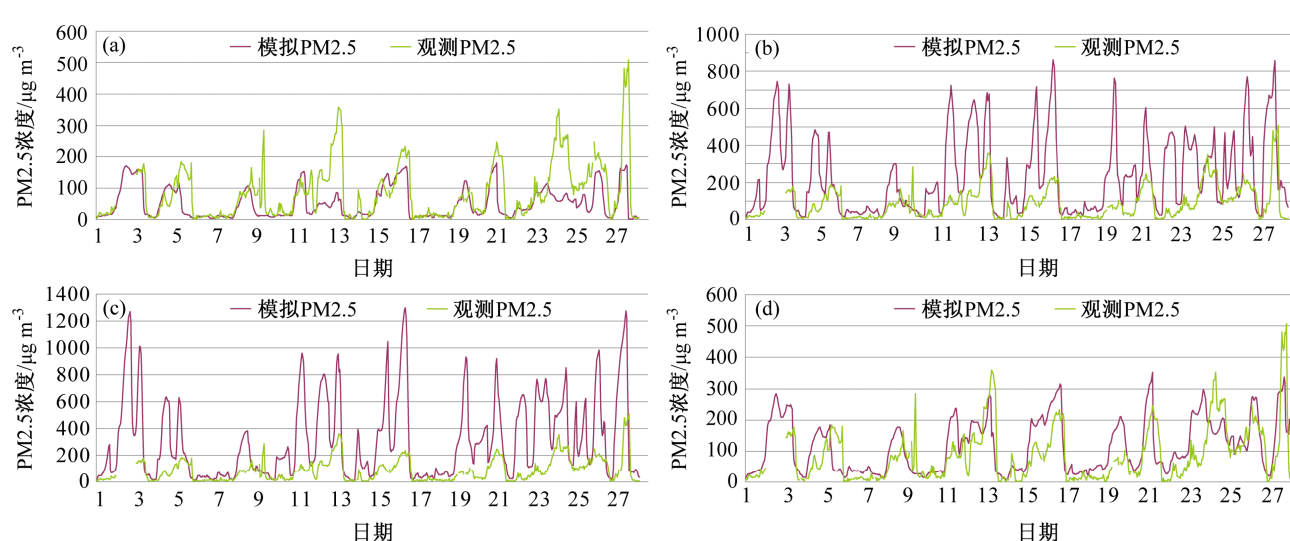


图 2 2013 年 2 月 WRF-Chem 不同方案模拟结果与北京怀柔站监测值的对比: (a) Chem01; (b) Chem02; (c) Chem03; (d) Chem04

Fig. 2 Comparison of PM_{2.5} concentrations between the simulated results with different schemes and the observed data at Huairou of Beijing in February 2013: (a) Chem01 (RADM2-MADE/SORGAM); (b) Chem02 (RADM2-MADE/SORGAM_aq); (c) Chem03 (CBMZ-MOSAIC-8bins); (d) Chem04 (CBMZ-MADE/SORGAM)

模式虽然对 PM_{2.5} 浓度低值模拟效果较好,但是对峰值模拟效果不佳,模拟结果显著偏低,比监测结果偏低 3~6 倍(图 2a);当选择 Chem02 方案时,模式对低值浓度模拟得较好,但对峰值的模拟远高于监测结果,也无法再现重污染过程(图 2b);当选择 Chem03 方案时,即参考高怡和张美根(2014)的模拟方法,模拟结果随时间变化呈现大幅度的波动,且普遍高于观测值(图 2c)。虽然高怡和张美根(2014)使用该方案成功再现了京、津、冀 2013 年 1 月的重污染过程,但对于 2013 年 2 月重污染模拟效果不佳。由此,这两次污染过程可能适用于不同的化学反应机制;当选择 Chem04 方案时,由图 2d 可见,模拟结果有效捕捉了 PM_{2.5} 的浓度波动特征,无论是峰值还是低值浓度都得以较好地再现。与其它方案相比,该方案的模拟效果最优,因此最终选取该方案开展后续研究,具体模式参数设置详见表 1。

表 1 本研究中 WRF-Chem 模式的方案选择

Table 1 Model configurations used in this study

模式方案选择	
微物理方案	Lin 方案 (Lin et al., 1983)
长波辐射参数化方案	RRTM (Rapid Radiative Transfer Model) 方案 (Mlawer et al., 1997)
短波辐射参数化方案	Goddard 方案 (Chou and Suarez, 1994)
近地面层方案	Monin-Obukhov 方案
陆面过程	Noah 陆面过程方案 (Chen and Dudhia, 2001)
边界层参数化方案	YSU (Yonsei University) 方案 (Noh et al., 2003)
积云参数化方案	Grell 积云参数化方案 (Grell and Dévényi, 2002)
气相化学机制	CBMZ (Zaveri and Peters, 1999)
气溶胶参数化方案	MADE/SORGAM 方案 (Schell et al., 2001)

3.2 方案的评估

为进一步评估 Chem04 方案对 2013 年 2 月华北地区灰霾重污染天气过程的模拟效果,选择北京、沧州市泊头和秦皇岛市气象站(站点编号分别为:54511、54618 和 54449)的海平面气压、10 m 风速、2 m 气温、露点温度以及相对湿度作为对比的气象要素,选取北京怀柔镇(40.32°N, 116.65°E)、沧州市环保局(38.05°N, 116.71°E)、秦皇岛市政府(39.93°N, 119.60°E) 3 个监测站的 PM_{2.5}、SO₂ 和 NO₂ 作为对比的污染指标,并引入平均偏差(MB)、正态平均偏差(NMB)、正态平均误差(NME)、均方根误差(RMSE)及相关系数(r)等参数(Zhang et al., 2006):

$$MB = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (S_i - O_i), \quad (1)$$

$$NMB = \frac{\sum_{i=1}^N (S_i - O_i)}{\sum_{i=1}^N O_i}, \quad (2)$$

$$NME = \frac{\sum_{i=1}^N |S_i - O_i|}{\sum_{i=1}^N O_i}, \quad (3)$$

$$RMSE = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (S_i - O_i)^2}, \quad (4)$$

$$r = \frac{\sum_{i=1}^N (S_i - \bar{S})(O_i - \bar{O})}{\sqrt{\sum_{i=1}^N (S_i - \bar{S})^2 \sum_{i=1}^N (O_i - \bar{O})^2}}, \quad (5)$$

其中, S 为模拟值, O 为观测值, N 为样本数。将模拟值与实际观测值进行对比分析(表 2)。

由表 2 可见,海平面气压、2 m 温度、露点温度的模拟值与观测值的相关系数较高,都在 0.80 以上。模式模拟的北京站和沧州站的风速和相对湿度的相关系数也比较高,这两个要素对北京站的模拟值与监测值的相关系数分别达到 0.85 和 0.71,对沧州站的相关系数分别为 0.63 和 0.78,但它们与秦皇岛站监测值的相关系数相对较低,不足 0.5;海平面气压、风速和温度的 MB 和 RMSE 较小,MB 在 1.0 以下, RMSE 小于 2.0;除了温度,其他 4 个气象要素模拟值和监测值的 NMB、NME 都在 45% 以下。模式对 3 个环境监测站的 PM_{2.5} 及 SO₂、NO₂ 浓度的模拟值与监测值的相关系数都在 0.64 以上,除了秦皇岛站的 SO₂ 浓度的模拟值与监测值的 NMB、NME 为 66.27% 和 -66.27%,其余都在 45% 左右及以下,说明模式对秦皇岛站 SO₂ 浓度的模拟整体偏低,但二者的相关性较高($r=0.76$),可以反映重污染过程的演变特征。以上相关统计参数皆通过了 95% 置信度的显著性检验。由模拟和监测的时间序列对比情况(图 3)亦可看出,气温、相对湿度和风速 3 个气象要素的模拟结果与观测值拟合较好。温度的模拟值与监测值的相关性较好,模拟和监测的日平均温度的变化趋势基本一致。模式对 3 个城市 7~12 日的日均相对湿度的模拟略有偏高,对沧州的模拟呈整体偏高趋势,但能较好地捕捉到其峰值与低值的出现时间。从风速上来看,模式对北京的模拟优于其它两个城市,虽然沧州和秦皇岛的风速模拟普遍高于观测结果,但二者的波动趋势比较一致。3 个站点 PM_{2.5} 的模拟值与监测值拟合得较好,可再现整个 2 月灰霾重污染过程。

3.3 污染过程分析与案例筛选

2013 年 2 月 15~17 日为一次强霾污染过程。

表 2 2013 年 2 月北京、沧州、秦皇岛 3 个站点各要素的模拟值与观测值的统计分析 (样本量 N=28)

Table 2 Statistical analysis of simulations and observations at Beijing, Cangzhou, and Qinhuangdao in February 2013

		平均值		平均偏差	正态平均 偏差	正态平均 误差	均方根 误差	相关 系数
		观测	模拟					
海平面气压	北京	1026.87 hPa	1026.99 hPa	0.19 hPa	0.02%	0.13%	1.67 hPa	0.95
	沧州	1027.52 hPa	1026.77 hPa	-0.70 hPa	-0.07%	0.13%	1.80 hPa	0.95
	秦皇岛	1027.04 hPa	1026.90 hPa	-0.10 hPa	-0.01%	0.13%	1.60 hPa	0.95
10 m 风速	北京	2.32 m s ⁻¹	1.98 m s ⁻¹	-0.33 m s ⁻¹	-14.40%	20.36%	0.62 m s ⁻¹	0.85
	沧州	1.58 m s ⁻¹	2.15 m s ⁻¹	0.58 m s ⁻¹	36.90%	42.58%	0.80 m s ⁻¹	0.63
	秦皇岛	2.17 m s ⁻¹	2.64 m s ⁻¹	0.48 m s ⁻¹	22.32%	28.67%	0.80 m s ⁻¹	0.48
2 m 温度	北京	-1.22 °C	-1.39 °C	-0.17 °C	14.07%	-68.94%	1.10 °C	0.95
	沧州	-0.67 °C	-0.96 °C	-0.30 °C	44.93%	-56.70%	1.23 °C	0.93
	秦皇岛	-3.04 °C	-2.41 °C	0.63 °C	-20.85%	-48.52%	1.82 °C	0.88
露点温度	北京	-12.24 °C	-9.91 °C	2.31 °C	-18.86%	-24.47%	3.89 °C	0.84
	沧州	-6.36 °C	-4.35 °C	2.00 °C	-31.49%	-37.47%	3.09 °C	0.89
	秦皇岛	-9.79 °C	-8.77 °C	1.02 °C	-10.40%	-23.23%	2.93 °C	0.80
相对湿度	北京	48.96%	56.21%	7.14%	14.58%	23.93%	14.25%	0.71
	沧州	68.64%	79.12%	10.48%	15.27%	16.56%	13.92%	0.78
	秦皇岛	64.47%	64.28%	-0.19%	-0.30%	17.09%	13.59%	0.41
PM2.5 浓度	北京	86.32 µg m ⁻³	115.12 µg m ⁻³	27.87 µg m ⁻³	32.82%	44.99%	46.07 µg m ⁻³	0.83
	沧州	141.70 µg m ⁻³	129.02 µg m ⁻³	-9.05 µg m ⁻³	-6.62%	29.55%	53.28 µg m ⁻³	0.73
	秦皇岛	88.29 µg m ⁻³	76.70 µg m ⁻³	-9.42 µg m ⁻³	-11.11%	37.28%	43.34 µg m ⁻³	0.74
SO ₂ 体积浓度	北京	16.00 ppb	17.01 ppb	0.47 ppb	2.91%	39.42%	7.57 ppb	0.64
	沧州	20.78 ppb	16.41 ppb	-4.50 ppb	-21.55%	34.26%	10.35 ppb	0.73
	秦皇岛	32.80 ppb	10.89 ppb	-21.02 ppb	-66.27%	66.27%	23.68 ppb	0.76
NO ₂ 体积浓度	北京	23.76 ppb	19.04 ppb	-5.16 ppb	-21.61%	26.67%	7.84 ppb	0.85
	沧州	17.84 ppb	21.41 ppb	3.61 ppb	20.16%	27.16%	6.06 ppb	0.72
	秦皇岛	28.70 ppb	17.04 ppb	-11.28 ppb	-40.19%	43.38%	13.68 ppb	0.77

注: ppb 表示 10⁻⁹。

从污染时空演变看 (图 4a、4b、4c), 15 日 PM_{2.5} 重污染主要集中在河南北部、山东南部及河北南部等部分地区, 多呈斑点状分布。到了 16 日, PM_{2.5} 高浓度区延伸至北京、天津及河北南部等区域, 华北地区在该日污染强度最强, 污染范围也最广。其中北京 PM_{2.5} 日均浓度值达 214.3 µg m⁻³, PM_{2.5} 浓度在 80 µg m⁻³ 以上的区域几乎覆盖整个华北。17 日的污染较 16 日有所缓解, PM_{2.5} 高浓度区的范围缩小为华北南部和东南部区域, 华北北部和西北部 PM_{2.5} 日均浓度多低于 80 µg m⁻³, 但与 15 日相比, 重污染区仍然集中在北京、天津和河北南部区域。结合相对湿度和风场的空间演变形势 (图 4d、4e、4f) 可知, 此次强霾污染的形成主要是受来自南方的暖湿气流影响, 近地面的弱偏南风将细颗粒物连同暖湿水汽缓慢向华北地区输送, 当输送到具有“马蹄形”地形结构的京津冀地区时, 外来污染与本地污染交汇并逐渐蓄积, 同时受气团变性的影响, 大气相对湿度进一步增强, 由此促使京津冀地区颗粒物浓度和相对湿度同时升高, 霾污染得以形

成。为了研究极端灰霾污染引起的天气系统变化, 选取污染最为严重的 2 月 16 日作为典型案例设计数值试验。

4 试验设计

为了探讨人为源排放对强霾污染生成的贡献以及由此引发的天气学反馈, 基于方案 Chem04 设计以下 3 组数值试验:

(1) 参考试验 (简记 BASE): 考虑所有排放源情景时的模拟, 排放源包括人为源 (PPs、IGCs 和 VOCs 排放) 和 VOCs 天然源, 自然源生物质排放源采用 Guenther (2006) 方案计算得到;

(2) 敏感性试验一 (简记 NONEMS): 去除 BASE 试验中的各种人为排放源, 其他保持不变;

(3) 敏感性试验二 (简记 NONVOCs): 去除 BASE 试验中的人为 VOCs 排放源, 其他保持不变。

试图通过对比 NONEMS 与 BASE 试验的差异, 揭示人为源综合排放对强灰霾污染的贡献及天气

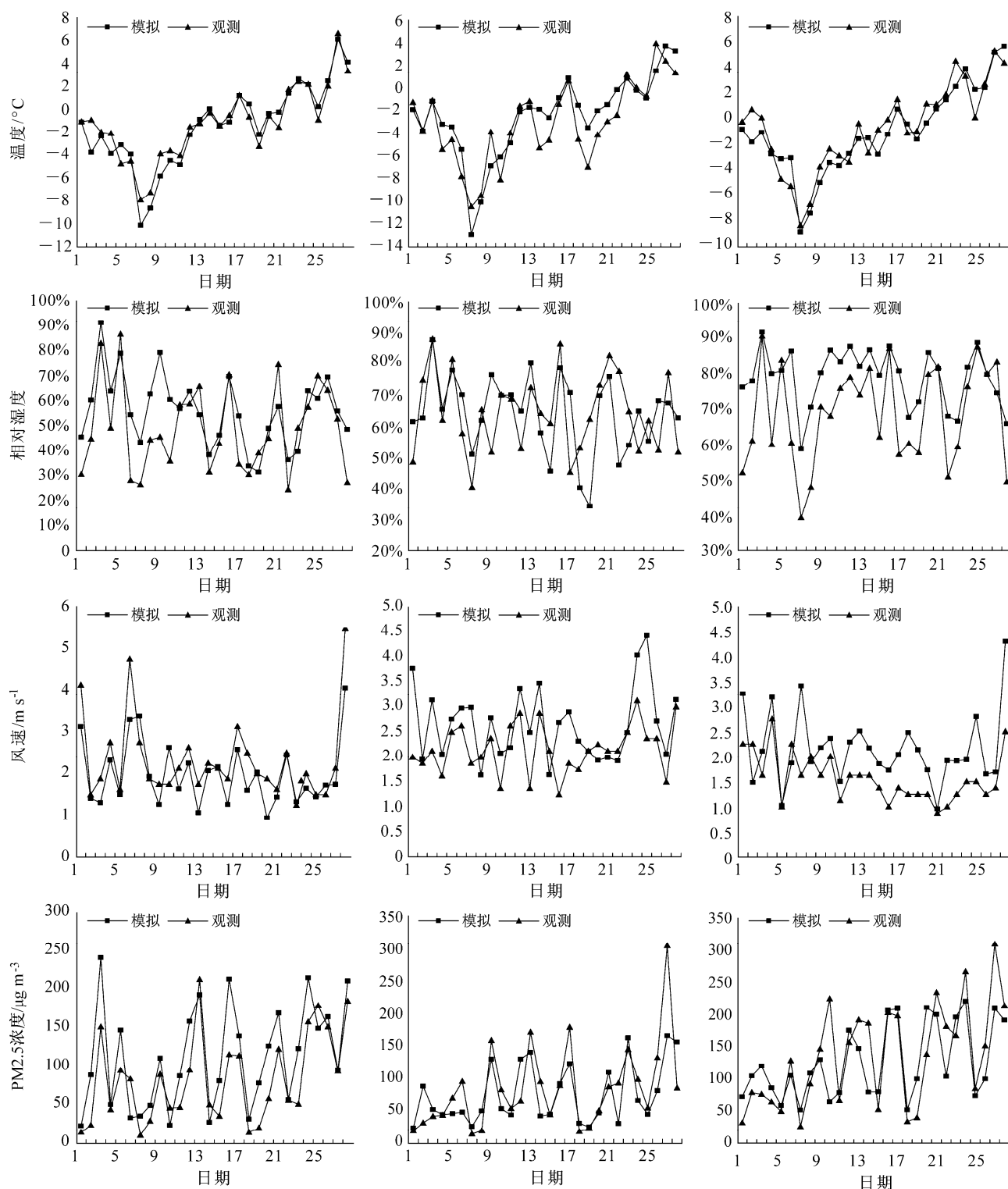


图3 观测和模拟的2013年2月北京(左)、秦皇岛(中)、沧州(右)的日均温度(第一行)、相对湿度(第二行)、风速(第三行)及PM_{2.5}浓度(第四行)的时间序列

Fig. 3 Time series of the observed and simulated daily averaged temperature (the first line), relative humidity (the second line), wind speed (the third line), and PM_{2.5} concentration (the fourth line) at Beijing (left), Cangzhou (middle), and Qinhuangdao (right) in February 2013

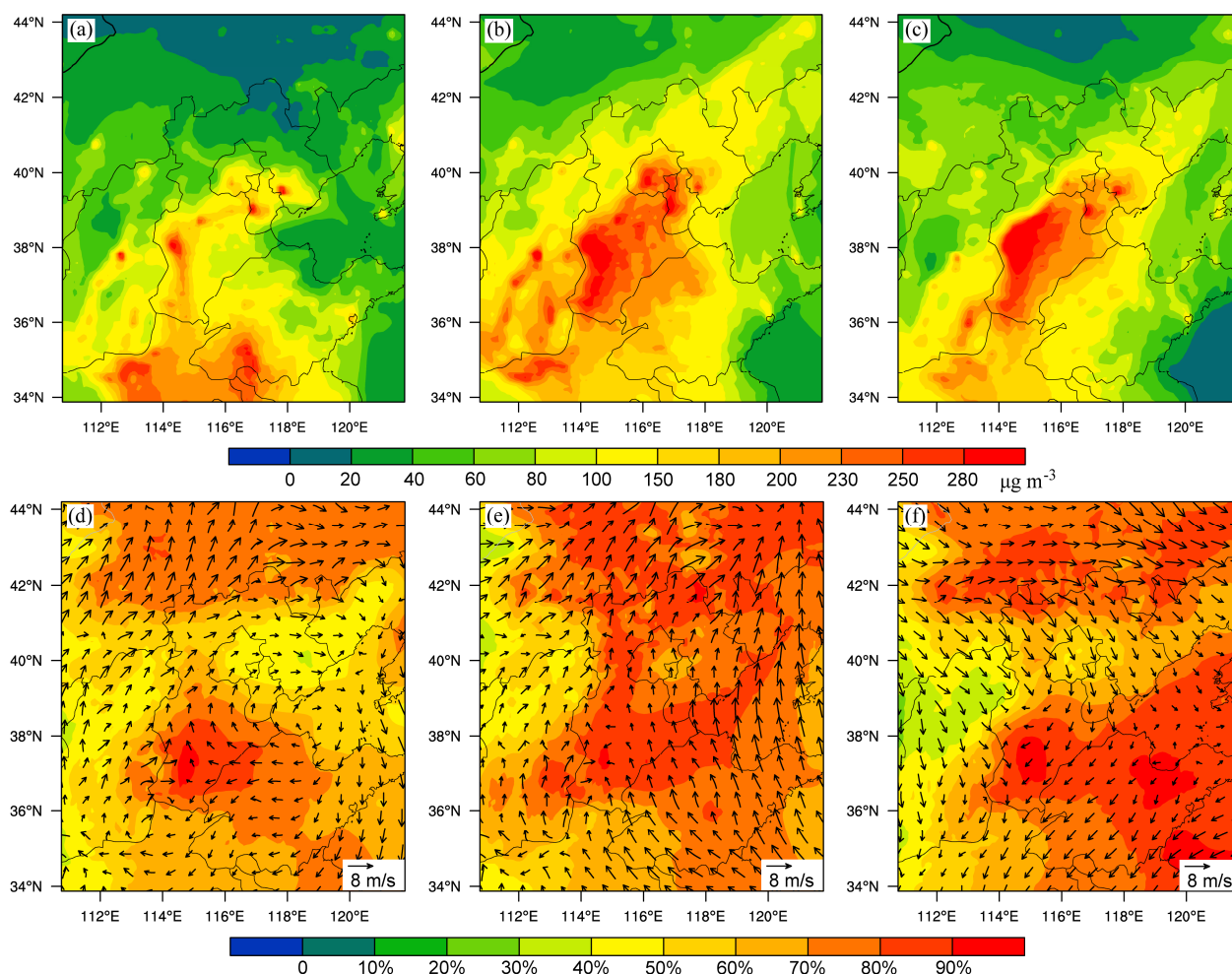


图4 2013年2月15~17日的(a、b、c)PM_{2.5}日均浓度及(d、e、f)日均相对湿度与风场的分布:(a、d)15日;(b、e)16日;(c、f)17日
Fig. 4 Spatial distributions of daily (a, b, c) averaged PM_{2.5} surface concentration, (d, e, f) relative humidity and wind vector: (a, b) 15 Feb 2013; (c, d) 16 Feb 2013; (e, f) 17 Feb 2013

学反馈;通过对NONVOCs与BASE试验差异性的分析,探讨人为排放VOCs对强灰霾天气的影响。

5 人为源对强灰霾生成的贡献

图5是人为源综合排放及人为源中的VOCs排放对2013年2月16日硫酸盐、硝酸盐、SOA、PM_{2.5}日均浓度的贡献情况。由图可见,对各种污染物浓度贡献较高的区域分布在河南西北部——山西东南部——河北南部——北京南部一带,呈西南东北走向的带状分布。统计发现,人为源综合排放使区域平均硫酸盐、硝酸盐、SOA、PM_{2.5}浓度分别增加了 $3.99 \mu\text{g m}^{-3}$ (99.1%)、 $27.33 \mu\text{g m}^{-3}$ (92.2%)、 $1.26 \mu\text{g m}^{-3}$ (99.4%)、 $103.2 \mu\text{g m}^{-3}$ (91.3%),人为源中的VOCs对四者的贡献分别为 $2.41 \mu\text{g m}^{-3}$ (59.6%)、 $16.08 \mu\text{g m}^{-3}$ (54.2%)、 $1.26 \mu\text{g m}^{-3}$

(99.6%)和 $22.84 \mu\text{g m}^{-3}$ (20.2%),约占人为源综合贡献的60.2%(硫酸盐)、58.8%(硝酸盐)、100.2%(SOA)和22.1%(PM_{2.5})。人为源综合排放对四者的贡献都在90%以上,VOCs为SOA的前体物,基本贡献了全部的SOA,其对硫酸盐和硝酸盐浓度的贡献达到50%以上,可见,虽然VOCs本身不能直接生成无机盐气溶胶,但它可通过调整大气反应活性而对无机盐气溶胶的生成起促进作用。尽管如此,VOCs的人为排放对整个PM_{2.5}浓度的贡献仍不及各种源综合贡献的1/4。

6 强霾污染的天气学反馈

6.1 人为源综合排放的反馈

6.1.1 人为源综合排放对气象场的反馈

为讨论人为源综合排放所引起的气象要素的

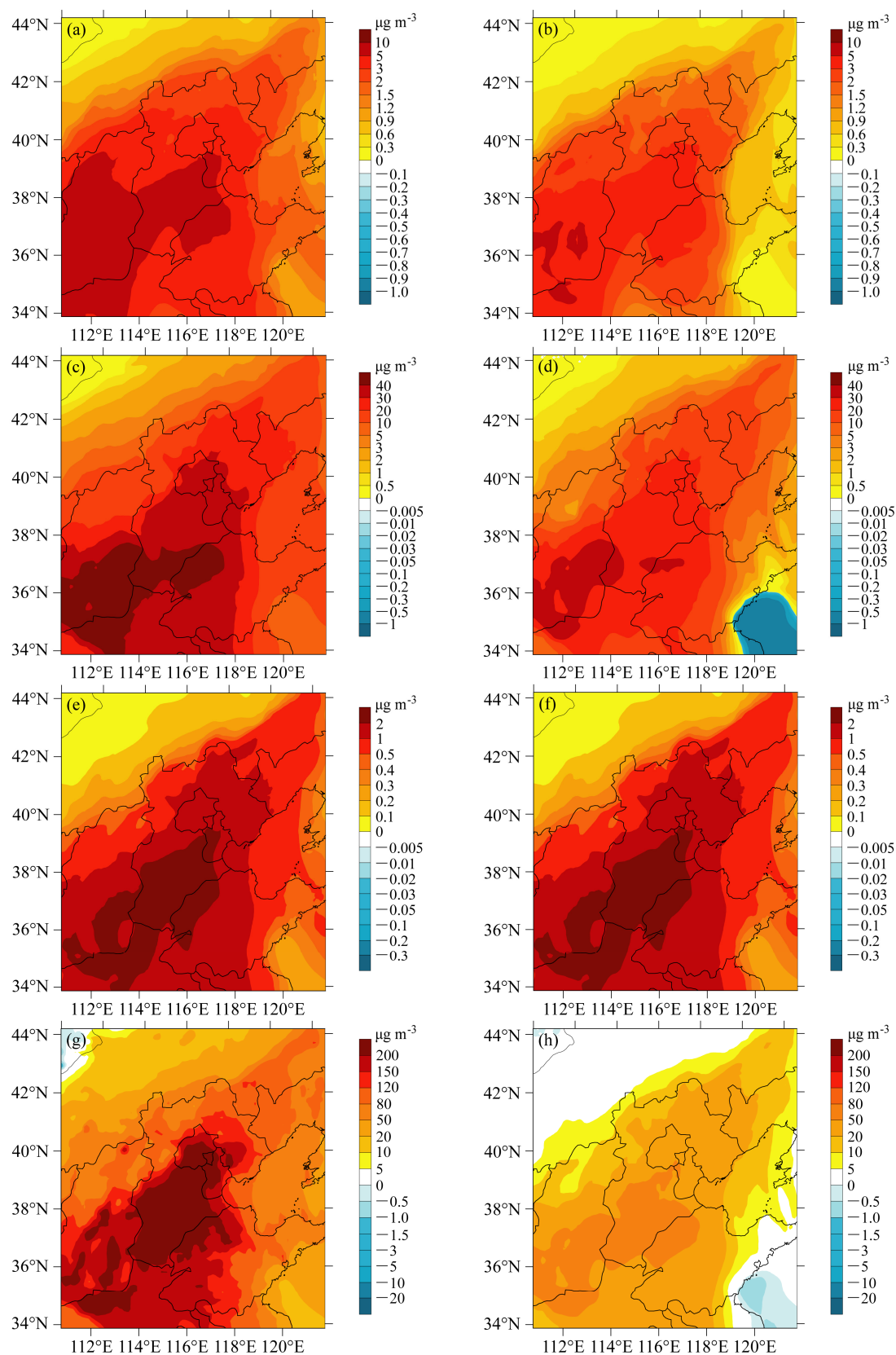


图5 综合人为源(左)和综合人为源中的VOCs源(右)对(a、b)硫酸盐、(c、d)硝酸盐、(e、f)SOA、(g、h)PM_{2.5}浓度的贡献

Fig. 5 Contribution of comprehensive anthropogenic emissions (left) and VOCs (right) to (a, b) sulfate, (c, d) nitrate, (e, f) SOA, and (g, h) PM_{2.5} concentration

改变情况, 将 BASE 的模拟结果减去 NONEMS 的模拟结果得到人为源综合排放的影响。选取 2013 年 2 月 16 日二者模拟的气象要素日均值的差值来探讨此次强霾污染时期人为源综合排放的气溶胶所引起的气象要素(短波辐射、温度、边界层高度、风速、相对湿度及气压)的改变情况(图 6)。由于气溶胶对太阳向下短波辐射的光散射或吸收作用,

使得地面接收到的辐射减少, 特别是污染严重地区所接收到的太阳辐射更少(图 6a), 由此导致相应地区的地面温度降低(图 6b)。经计算, 气溶胶使区域平均太阳向下短波辐射降低了近 15.99%, 地表负辐射强迫值达 -26.51 W m^{-2} , 由此导致地面平均气温下降 0.14°C (3.68%)。由于向下短波辐射的减少, 地表气温的降低, 而高空温度升高, 使得区域

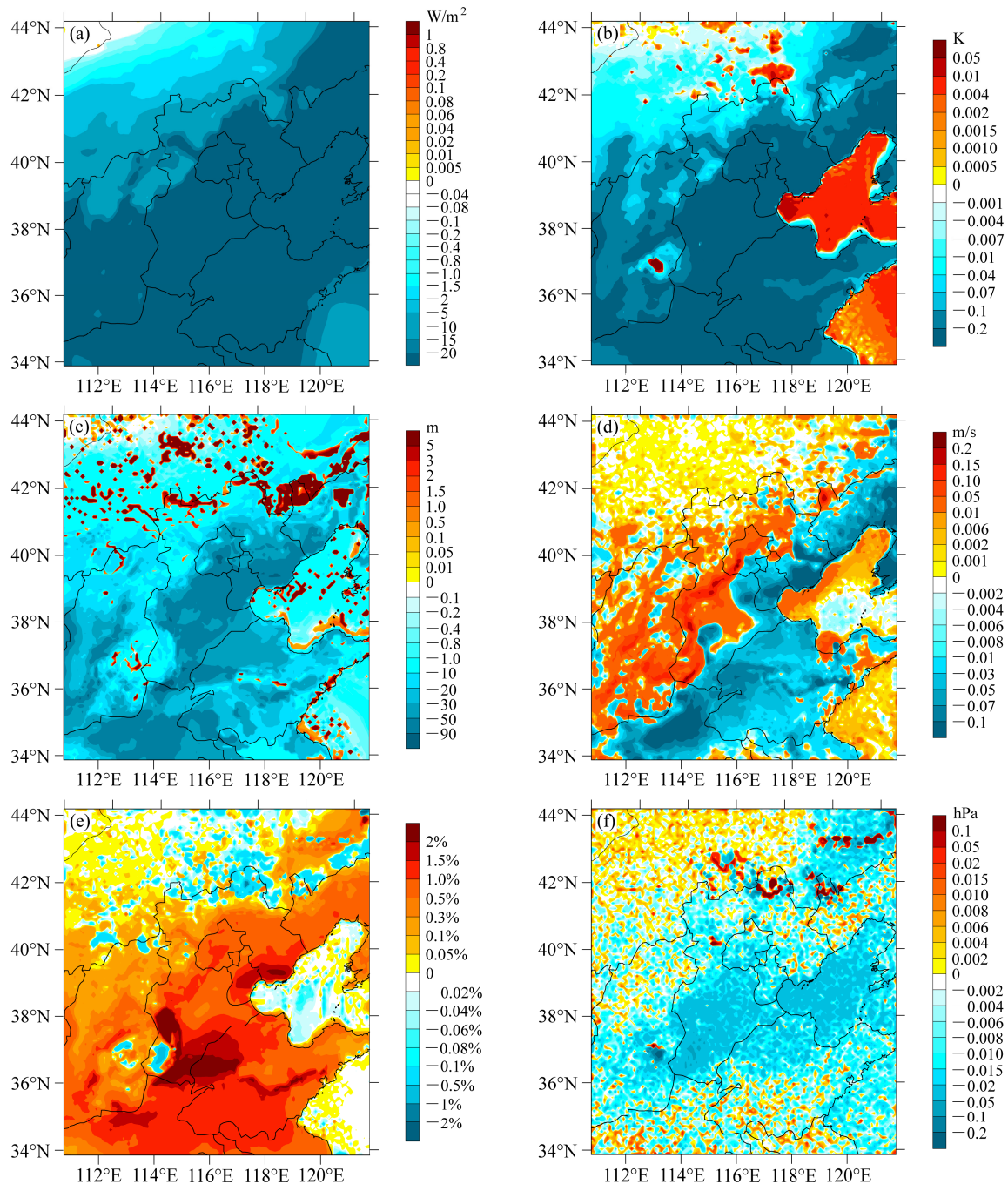


图 6 综合人为源对 (a) 短波辐射、(b) 温度、(c) 边界层高度、(d) 风速、(e) 相对湿度及 (f) 气压的影响

Fig. 6 Simulated feedback effect of comprehensive anthropogenic emissions on (a) surface short wave flux, (b) 2-m temperature, (c) height of planetary boundary layer, (d) wind speed, (e) relative humidity, and (f) surface pressure

平均的垂直温度梯度 ($\partial T/\partial z$) 升高约 0.026 K km^{-1} , 逆温增强 (图 7), 大气边界层高度降低, 尤其是灰霾重污染区域降低更显著。经估算, 人为源综合排放生成的气溶胶使大气边界层的区域平均高度降低了 18.92 m (8.77%)。由图 6c 和图 5e 的对比发现, 边界层高度降幅较大的区域主要出现在气溶胶浓度高值区。例如污染较重的沧州边界层高度降低了约 52.09 m (49.5%), 而相对清洁的秦皇岛仅降低了 5.34 m (5.1%)。同时, 与 Jacobson and Kaufman (2006) 的研究结论不同, 此次强霾污染没有引起陆地风速的一致性减少。由图 6d 可见, 风速仅在灰霾污染较重的低海拔区域减少, 在污染相对较轻、海拔较高的北部和西北区域反而增加。可见, 气溶胶对风速的反馈不仅与污染水平本身有关, 还受研究区域地形等的影响。人为源综合排放导致区域平均风速减少约 0.014 m s^{-1} (0.35%), 其中污染较重的沧州风速减小约 0.031 m s^{-1} (1.13%), 强霾污染对风速的影响很小。气溶胶粒子与大气湿度存在着复杂的相互作用 (Ding and Liu, 2014), 数值试验结果显示 (图 6e), 受此次强霾的影响, 华北大部分地区相对湿度增加, 尤其是在污染相对较重的河南北部、河北南部和唐山等区域, 相对湿度普遍升高约 1% (绝对值变化, 非与总量的百分比, 下同)。究其原因, 一方面可能是由于气溶胶细粒子数的增多并活化为凝结核, 促进了液滴的凝结, 有利于大气液水含量的增加; 另一方面, 气溶

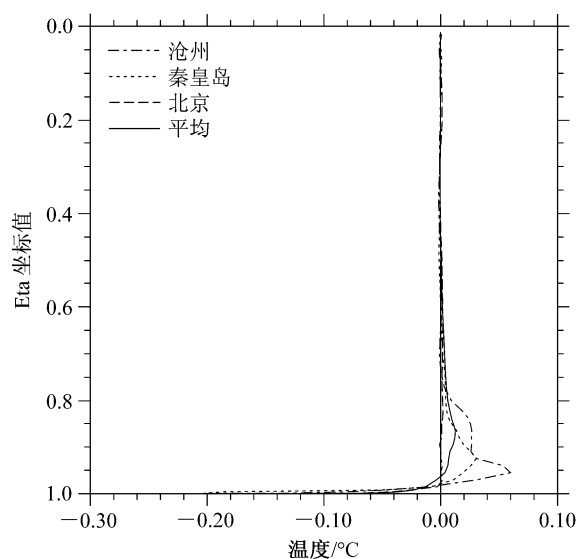


图 7 综合人为源对区域平均、沧州、秦皇岛、北京垂直温度的影响
Fig. 7 Effect of comprehensive anthropogenic emissions on regionally averaged vertical temperature in Cangzhou, Qinhuangdao, and Beijing

胶的辐射强迫使地面温度降低 (图 6b), 也利于水汽的凝结; 与此同时, 气溶胶还使河北南部, 山东以及渤海向北输送的水汽通量增加 (图 8a), 为雾滴的形成与累积提供了充足的水汽来源。这些都是由气溶胶对天气系统的直接和间接作用所导致的。气压场受热力因子和动力因子共同影响。虽然霾污染引起的地面降温 (图 6b) 有利于增加重污染区域的空气密度, 从而具有增强相应区域地面气压的趋势, 但从图 8a、8c 可见, 强霾污染引起的动力学效应是, 使得南方暖湿气流北上加强, 流经之处 (河北南部、京津地区) 密度减小, 具有减低地面气压的作用。结合图 8c 和图 8e 可知, 由于气流在河北南部、河南北部及京津地区的辐合作用 (图 8c), 导致该区域气流正涡度异常的出现 (图 8e)。同时, 由于大气稳定性较强, 对流运动较弱, 垂直运动对地面气压的影响较小。因此, 动力因子的主导性作用最终导致河北南部、京津地区及河南北部等强霾污染区域气压降低, 其它区域补偿性增压 (图 6f), 譬如, 沧州气压降低了 2.25 Pa , 而秦皇岛气压反而升高了 0.83 Pa 。总体而言, 由于人为源综合排放对灰霾的贡献作用, 使得区域平均气压降低了约 0.86 Pa 。文中整层水汽通量 Q 计算公式:

$$Q = \frac{1}{g} \int_{p_{\text{top}}}^{p_{\text{bot}}} Vq dp, \quad (6)$$

其中, V 为大气中的风速矢量, q 为比湿, p_{top} 、 p_{bot} 分别为所积分的大气柱上界气压 (900 hPa) 和下界气压 (1100 hPa), g 为重力加速度, Q 的单位是 $\text{kg m}^{-1} \text{ s}^{-1}$ 。

综上所述, 人为源综合排放引起华北地区辐射减少, 气温降低, 边界层高度降低、相对湿度增加、平均风速减少以及气压降低等一系列天气学反馈。这些天气学反馈作用都不利于污染物的扩散和传输, 易于加剧霾污染的累积与恶化。

6.1.2 人为源综合排放对天气过程的影响

2013 年 2 月 15~17 日的 BASE 试验、NONEMS 试验及二者差值的气象要素随时间的变化可分别代表气溶胶与天气系统综合作用、天气系统自身演变作用及气溶胶作用所引起的气象要素的变化 (图 9)。通过对比这 3 种情形下各气象要素日均值随时间的变化情况, 可以反映气溶胶对天气过程的影响程度。由图 9a 可见, 15~17 日霾污染期间, 人为排放所生成的气溶胶使地面接收的短波辐射明显减少, 尤其是在从污染相对较轻的 15 日向污染较

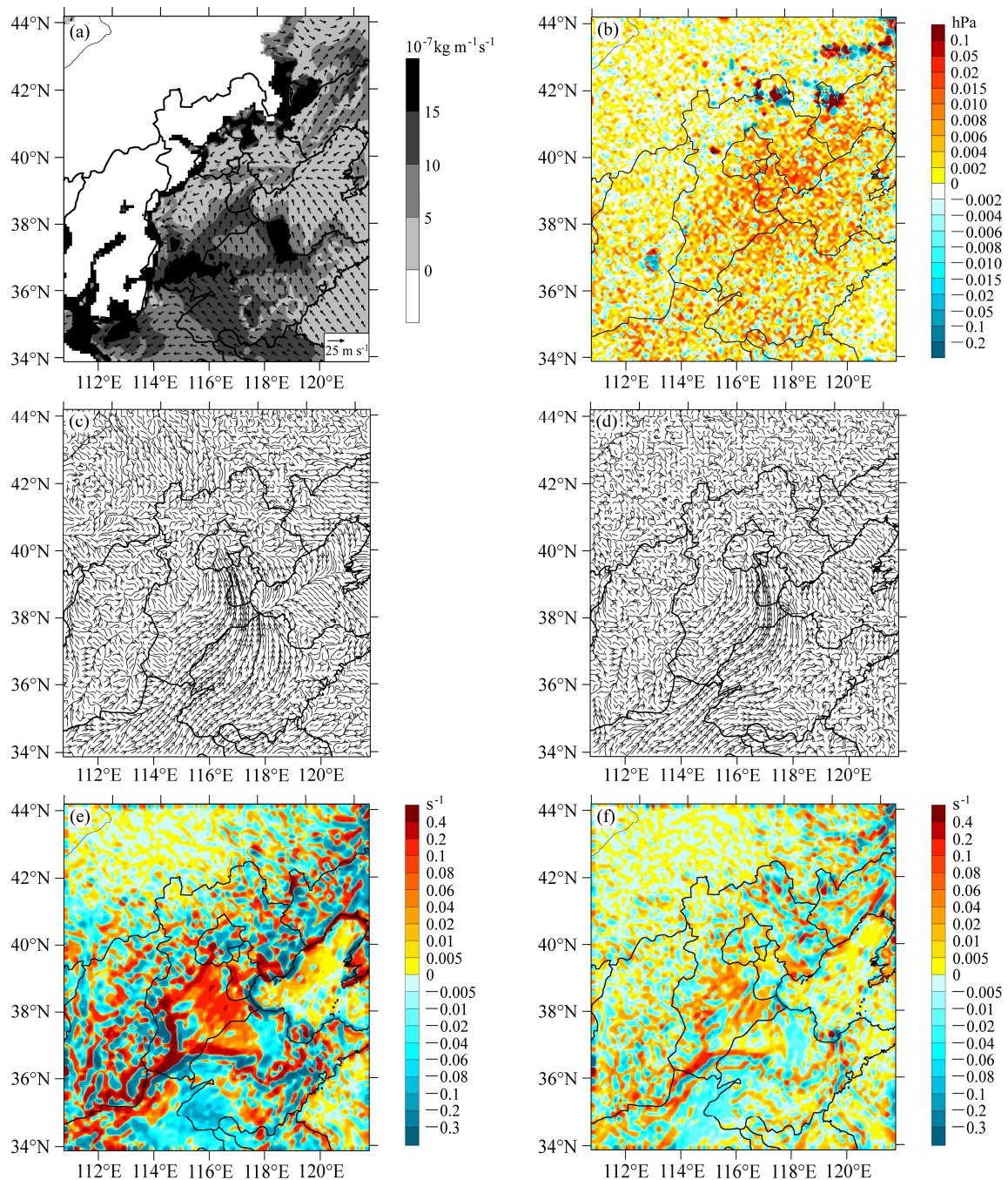


图8 综合人为源对 (a) 整层水汽通量、(c) 水平风和 (e) 水平涡度的影响; 人为排放的 VOCs 源对 (b) 气压、(d) 水平风和 (f) 水平涡度的影响
Fig. 8 Effect of comprehensive anthropogenic emissions on (a) vapor flux of full level, (b) horizontal wind, and (c) vorticity; effect of anthropogenic VOCs emissions on (a) pressure, (b) horizontal wind, and (c) vorticity

重的 16 日过渡时, 辐射减少得最显著, 16 日较 15 日的区域负辐射强迫增强 12.5 W m^{-2} 。而由 16 日向 17 日过渡期间, 由于区域性霾污染相对减弱 (如图 4a、4b、4c), 使得区域性辐射强迫减少。与天气系统自然变率相比, 15 日向 16 日过渡期间, 气溶胶使地面接收的短波辐射减少量是天气系统自身作

用时减少量的 1.8 倍, 这使二者综合作用下辐射的降低趋势比天气系统自然降低趋势更显著。相反, 16 日向 17 日过渡期间, 由于气溶胶的辐射强迫减弱, 使得综合作用相对天气系统自身作用对辐射的削弱趋势降低。由此可见, 人为排放所生成的气溶胶对短波辐射的影响比天气系统自身影响更大, 起

主导性作用。同样道理, 2月16日是气溶胶对区域地面温度降低最显著的日期。但是15日向16日过渡期间, 由于气溶胶造成的温度降低仅占天气过程引起的温度变化的2.2%, 使得天气系统自身作用与综合作用时的温度变化趋势十分接近(图9b), 虽然16~17日过渡期间, 由于区域性都污染较重的

缘故, 使得综合作用相对天气系统自身作用的气温变化差异性略有增加, 但天气系统仍起主导作用, 气温变化趋势改变不大。由图9c可见, 考虑人为排放时, 3天的边界层高度都明显比无人排放时低。气溶胶与天气过程综合作用使16日边界层高度比15日降低37.3 m, 其中, 气溶胶作用影响占

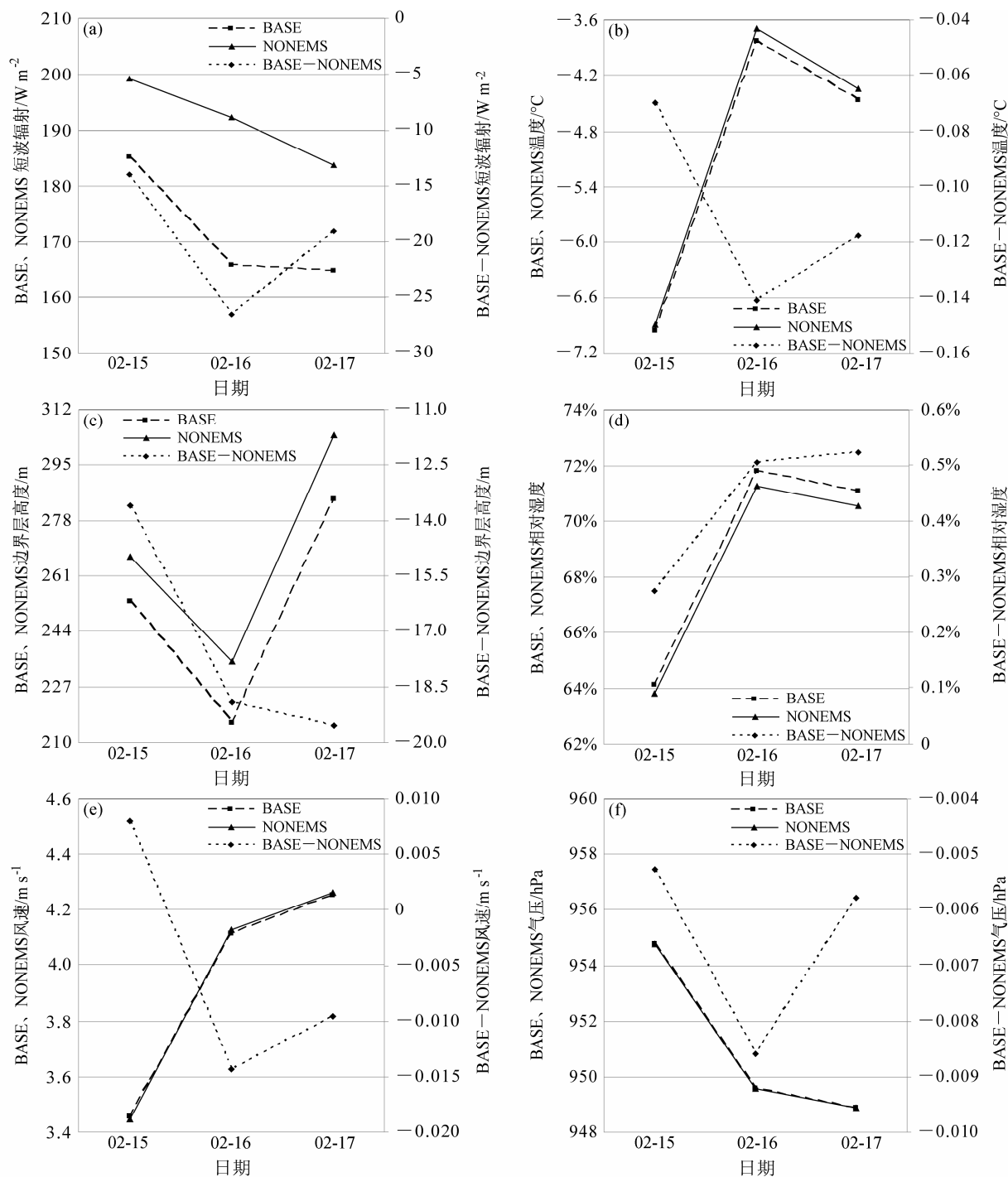


图9 2013年2月15~17日区域平均的气象要素变化: (a) 短波辐射; (b) 温度; (c) 边界层高度; (d) 相对湿度; (e) 风速; (f) 气压

Fig. 9 Trends of regionally averaged meteorological variables during 15–17 February 2013: (a) Surface shortwave flux; (b) temperature; (c) height of planetary boundary layer; (d) wind speed; (e) relative humidity; (f) surface pressure

14.3%，天气过程影响占 85.7%。考虑人为排放时，相对湿度较无人排放时略有增加（图 9d），但是与天气过程的作用相比影响不大。对于风速（图 9e）和气压（图 9f），气溶胶的影响都不大，人为排放气溶胶使风速和气压略微减小，16 日最为显著，但是与天气过程的自身影响相比，气溶胶的影响可忽略不计。

6.2 人为排放 VOCs 对气象场的反馈

与讨论人为源的综合排放的反馈作用相同，BASE-NONVOCs 得到人为排放的 VOCs 的反馈作用。同样选取 2013 年 2 月 16 日的日均值的差值来讨论人为排放的 VOCs 引起的气象要素的变化。与人为源综合排放引起的气象要素的变化一致，人为排放的 VOCs 使区域平均接收到的太阳短波辐射减少，地面温度降低，边界层高度降低，风速略微减小，相对湿度增大（图略）。模拟结果显示，人为排放的 VOCs 使区域平均接收到的短波辐射减少 3.24 W m^{-2} （1.96%），区域地面平均温度降低 $0.02 \text{ }^{\circ}\text{C}$ （0.51%），区域平均边界层高度降低 1.57 m （0.73%），区域平均风速减少了 0.0017 m s^{-1} （0.04%），区域平均相对湿度增加了 0.07%，分别占综合人为源影响的 12.2%、13.7%、8.29%、11.54%、13.18%。与人为源综合排放引起的区域平均气压降低不同，人为排放的 VOCs 使区域平均气压升高（图 8b）。这主要是因为河北南部正涡度小（图 8f），气流北上趋势相对较弱（图 10d），温度对气压起主导作用。最终使区域平均气压上升约为 0.16 Pa ，尤其是河北南部升高显著，其中沧州气压上升了 1.7 Pa 。

将人为排放 VOCs 引起的气象反馈作用与图 5f 对比发现，反馈作用较强的区域与图 5h 中 $\text{PM}_{2.5}$ 的高浓度区域相对应。人为排放的 VOCs 对 $\text{PM}_{2.5}$ 贡献越大的区域，其气象要素的变化越不利于污染物的扩散和沉降。

7 结论与讨论

综上，本文利用 WRF-Chem 模式研究了华北地区一次强霾污染过程（2013 年 2 月 15~17 日）对气象条件的反馈作用。得出以下主要结论：

（1）通过对 4 种大气化学方案模拟效果的对比发现，CBMZ-MADE/SORGAM 方案能更好地再现此次霾污染过程。

（2）人为源综合排放分别使硫酸盐、硝酸盐、SOA、 $\text{PM}_{2.5}$ 的区域平均浓度增加 $3.99 \mu\text{g m}^{-3}$ （99.1%）、 $27.33 \mu\text{g m}^{-3}$ （92.2%）、 $1.26 \mu\text{g m}^{-3}$ （99.4%）、 $103.2 \mu\text{g m}^{-3}$ （91.3%），人为排放的 VOCs 对四者的贡献分别约占人为源综合贡献的 60.2%、58.8%、100.2%和 22.1%。VOCs 对 SOA 的贡献率约为 99.6%，对硫酸盐和硝酸盐浓度的贡献也达到 50%以上，说明 VOCs 除了是 SOA 的前体物以外，还可通过调整大气反应活性而对 SIA 的生成起促进作用。但是，VOCs 的人为排放对 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度的贡献仍不及各种源综合贡献的 1/4。

（3）人为源的综合排放使区域平均 2 月 16 日日均短波辐射减少 26.51 W m^{-2} （15.99%），2 m 温度降低 $0.14 \text{ }^{\circ}\text{C}$ （3.68%），边界层高度降低 18.92 m （8.77%），风速减少 0.014 m s^{-1} （0.35%），相对湿度绝对值升高 0.51%，气压降低 0.86 Pa 。而人为排放的 VOCs 使区域平均日均短波辐射减少了 3.24 W m^{-2} （1.96%），地面温度降低 $0.02 \text{ }^{\circ}\text{C}$ （0.51%），边界层高度减少 1.57 m （0.73%），风速减少 0.0017 m s^{-1} （0.04%），相对湿度增大 0.07%，区域平均气压上升约 0.16 Pa 。人为源的综合排放和 VOCs 排放对风速影响不大。污染物浓度较高的区域天气学反馈作用也较强。

（4）对于 15~17 日污染过程，人为源综合排放的气溶胶对短波辐射的影响在天气过程中占主导地位，虽然它对边界层高度的影响较大，但不起主导作用，而对温度、风速、相对湿度、气压的作用则远小于天气系统本身，影响甚微。

上述结果暗示，气溶胶使气象条件向不利于气溶胶消散的方向发展，可能促进污染物的局地累积、增强重污染程度并延长区域内重污染的维持时间。因此，在探索区域灰霾成因的时候，灰霾中气溶胶成分对气象场的辐射反馈作用是不可忽视的影响因素之一。VOCs 作为灰霾的重要前体物，对气象条件的反馈作用亦不容忽视。本研究暂未定量评估此次霾污染的天气学反馈作用对大气污染物自身浓度的影响。

致谢 气象数据源自中国气象科学数据共享服务网（<http://cdc.nmic.cn> [2014-09-01]），空气质量监测数据来源于中国环境监测总站城市空气质量发布平台（<http://113.108.142.147:20035/emcpublish/> [2014-09-01]）。模式使用了清华大学 MEIC 模型提供的排放数据（<http://www.meicmodel.org> [2014-09-01]）。同时，研究得到了清华大学张强教授、河北工程大学

王丽涛教授、中山大学廖志恒博士和中国科学院大学资源与环境学院郑乃嘉同学的指导和支持, 在此一并表示感谢!

参考文献 (References)

- Bollasina M, Nigam S, Lau K M. 2008. Absorbing aerosols and summer monsoon evolution over South Asia: An observational portrayal [J]. *J. Climate.*, 21 (13): 3221–3239, doi: 10.1175/2007JCLI2094.1.
- Bollasina M, Ming Y, Ramaswamy V. 2011. Anthropogenic aerosols and the weakening of the South Asian summer monsoon [J]. *Science*, 334 (6055): 502–505, doi: 10.1126/science.1204994.
- Charlson R J, Schwartz S E, Hales J M, et al. 1992. Climate forcing by anthropogenic aerosols [J]. *Science*, 255 (5043): 423–430, doi: 10.1126/science.255.5043.423.
- Chen F, Dudhia J. 2001. Coupling an advanced land surface-hydrology model with the Penn State-NCAR MM5 modeling system. Part I: Model implementation and sensitivity [J]. *Mon. Wea. Rev.*, 129 (4): 569–585, doi: 10.1175/1520-0493 (2001)129<0569: CAALSH>2.0.CO;2.
- Chou M D, Suarez M J. 1994. An efficient thermal infrared radiation parameterization for use in general circulation models [Z]. NASA Technical Memorandum.
- Civerolo K, Hogrefe C, Lynn B, et al. 2007. Estimating the effects of increased urbanization on surface meteorology and ozone concentrations in the New York city metropolitan region [J]. *Atmos. Environ.*, 41 (9): 1803–1818, doi: 10.1016/j.atmosenv.2006.10.076.
- Ding Y H, Liu Y J. 2014. Analysis of long-term variations of fog and haze in China in recent 50 years and their relations with atmospheric humidity[J]. *Science China: Earth Sciences*, 57 (1): 36–46.
- Fast J D, Gustafson W I Jr, Easter R C, et al. 2006. Evolution of ozone, particulates, and aerosol direct radiative forcing in the vicinity of Houston using a fully coupled meteorology–chemistry–aerosol model [J]. *J. Geophys. Res.: Atmos.* (1984–2012), 111 (D21), doi: 10.1029/2005JD006721.
- Forkel R, Werhahn J, Hansen A B, et al. 2012. Effect of aerosol-radiation feedback on regional air quality—A case study with WRF/Chem [J]. *Atmos. Environ.*, 53: 202–211, doi: 10.1016/j.atmosenv.2011.10.009.
- 高怡, 张美根. 2014. 2013 年 1 月华北地区重雾霾过程及其成因的模拟分析 [J]. *气候与环境研究*, 19 (2): 140–152. Gao Yi, Zhang Meigen. 2014. Numerical simulation of a heavy fog–haze episode over the North China plain in January 2013 [J]. *Climatic and Environmental Research (in Chinese)*, 19 (2): 140–152, doi: 10.3878/j.issn.1006-9585.2014.13135.
- Grell G, Baklanov A. 2011. Integrated modeling for forecasting weather and air quality: A call for fully coupled approaches [J]. *Atmos. Environ.*, 45 (38): 6845–6851, doi: 10.1016/j.atmosenv.2011.01.017.
- Grell G A, Dévényi D. 2002. A generalized approach to parameterizing convection combining ensemble and data assimilation techniques [J]. *Geophys. Res. Lett.*, 29 (14): 38-1–38-4, doi: 10.1029/2002GL015311.
- Guenther A, Karl T, Harley P, et al. 2006. Estimates of global terrestrial isoprene emissions using MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature) [J]. *Atmos. Chem. Phys.*, 6 (11): 3181–3210, doi: 10.5194/acp-6-3181-2006.
- 郭晓霜, 司徒淑婷, 王雪梅. 等. 2014. 结合外场观测分析珠三角二次有机气溶胶的数值模拟 [J]. *环境科学*, 35 (5): 1654–1661. Guo Xiaoshuang, Situ Shuping, Wang Xuemei, et al. 2014. Numerical modeling analysis of secondary organic aerosol (SOA) combined with the ground-based measurements in the Pearl River Delta Region[J]. *Environmental Science (in Chinese)*, 35 (5): 1654–1661.
- Huang R J, Zhang Y L, Bozzetti C, et al. 2014. High secondary aerosol contribution to particulate pollution during haze events in China [J]. *Nature*, 514 (7521): 218–222, doi: 10.1038/nature13774.
- Jacob D J, Winner D A. 2009. Effect of climate change on air quality [J]. *Atmos. Environ.*, 43 (1): 51–63, doi: 10.1016/j.atmosenv.2008.09.051.
- Jacobson M Z, Kaufman Y J. 2006. Wind reduction by aerosol particles[J]. *Geophys. Res. Lett.*, 33 (24), doi: 10.1029/2006GL027838.
- Ji Z M, Kang S C, Zhang D F, et al. 2011. Simulation of the anthropogenic aerosols over South Asia and their effects on Indian summer monsoon [J]. *Climate Dyn.*, 36 (9–10): 1633–1647, doi: 10.1007/s00382-010-0982-0.
- 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, doi: 10.1016/j.atmosenv.2008.08.034.
- Lau K M, Kim M K, Kim K M. 2006. Asian summer monsoon anomalies induced by aerosol direct forcing: The role of the Tibetan Plateau [J]. *Climate Dyn.*, 26 (7–8): 855–864, doi: 10.1007/s00382-006-0114-z.
- Lin Y L, Farley R D, Orville H D. 1983. Bulk parameterization of the snow field in a cloud model [J]. *J. Climate Appl. Meteor.*, 22 (6): 1065–1092, doi: 10.1175/1520-0450 (1983) 022<1065: BPOTSF>2.0.CO;2.
- Liu Y, Sun J R, Yang B. 2009. The effects of black carbon and sulphate aerosols in China regions on East Asia monsoons [J]. *Tellus B*, 61 (4): 642–656, doi: 10.1111/j.1600-0889.2009.00427.x.
- Mahmood R, Li S L. 2013. Delay in the onset of South Asian summer monsoon induced by local black carbon in an AGCM [J]. *Theor. Appl. Climatol.*, 111 (3–4): 529–536, doi: 10.1007/s00704-012-0681-3.
- Mahmood R, Li S L. 2014. Remote influence of South Asian black carbon aerosol on East Asian summer climate [J]. *International Journal of Climatology*, 34 (1): 36–48, doi: 10.1002/joc.3664.
- Meehl G A, Arblaster J M, Collins W D. 2008. Effects of black carbon aerosols on the Indian monsoon [J]. *J. Climate*, 21 (12): 2869–2882, doi: 10.1175/2007JCLI1777.1.
- 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, doi: 10.1126/science.1075159.
- Ming Y, Ramaswamy V, Persad G. 2005. Two opposing effects of absorbing aerosols on global-mean precipitation[J]. *Geophys. Res. Lett.*, 32 (13): L13701, doi: 10.1029/2010GL042895.
- Mlawer E J, Taubman S J, Brown P D, et al. 1997. Radiative transfer for inhomogeneous atmospheres: RRTM, a validated correlated-k model for the longwave [J]. *J. Geophys. Res.*, 102 (D14): 16663–16682.
- Mu M, Zhang R H. 2014. Addressing the issue of fog and haze: A promising perspective from meteorological science and technology [J]. *Science China: Earth Sciences*, 57 (1): 1–2, doi: 10.1007/s11430-013-4791-2.
- Noh Y, Cheon W G, Hong S Y, et al. 2003. Improvement of the K-profile model for the planetary boundary layer based on large eddy simulation

- data [J]. Bound.-Layer Meteor., 107 (2): 401–427, doi: 10.1023/A:1022146015946.
- Schell B, Ackermann I J, Hass H, et al. 2001. Modeling the formation of secondary organic aerosol within a comprehensive air quality model system [J]. J. Geophys. Res., 106 (D22): 28275–28293, doi: 10.1029/2001JD000384.
- 沈新勇, 陈明诚, 王勇, 等. 2013. 人为气溶胶的直接气候效应对南亚夏季季风影响的研究 [J]. 高原气象, 32 (5): 1280–1292. Shen Xinyong, Chen Mingcheng, Wang Yong, et al. 2013. Direct climate effect of anthropogenic aerosol on South Asian summer monsoon [J]. Plateau Meteorology (in Chinese), 32 (5): 1280–1292, doi: 10.7522/j.issn.1000-0534.2012.00122.
- Solazzo E, Bianconi R, Pirovano G, et al. 2012. Operational model evaluation for particulate matter in Europe and North America in the context of AQMEII [J]. Atmos. Environ., 53: 75–92, doi:10.1016/j.atmosenv.2012.02.045.
- 孙家仁, 许振成, 刘煜, 等. 2011. 气候变化对环境空气质量影响的研究进展 [J]. 气候与环境研究, 16 (6): 805–814. Sun Jiaren, Xu Zhencheng, Liu Yu, et al. 2011. Advances in the effect of climate change on air quality [J]. Climatic and Environmental Research (in Chinese), 16 (6): 805–814.
- Tie X X, Madronich S, Li G, et al. 2009a. Simulation of Mexico city plumes during the MIRAGE-Mex field campaign using the WRF-Chem model [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 9 (14): 4621–4638, doi: 10.5194/acp-9-4621-2009.
- Tie X X, Geng F H, Peng L, et al. 2009b. Measurement and modeling of O₃ variability in Shanghai, China: Application of the WRF-Chem model [J]. Atmos. Environ., 43 (28): 4289–4302, doi:10.1016/j.atmosenv.2009.06.008.
- Wang L L, Zhang N, Liu Z R, et al. 2014. The influence of climate factors, meteorological conditions, and boundary-layer structure on severe haze pollution in the Beijing–Tianjin–Hebei region during January 2013 [J]. Advances in Meteorology, 2014: Article ID 685971, doi: 10.1155/2014/685971.
- Wang X M, Wu Z Y, Liang G X. 2009. WRF/CHEM modeling of impacts of weather conditions modified by urban expansion on secondary organic aerosol formation over Pearl River delta [J]. Particuology, 7 (5): 384–391, doi: 10.1016/j.partic.2009.04.007.
- Wang X Y, Liang X Z, Jiang W M, et al. 2010. WRF-Chem simulation of East Asian air quality: Sensitivity to temporal and vertical emissions distributions [J]. Atmos. Environ., 44 (5): 660–669, doi: 10.1016/j.atmosenv.2009.11.011.
- 王勇, 吉振明, 沈新勇, 等. 2013. 人为气溶胶对东亚夏季季风直接气候效应的成因分析 [J]. 热带气象学报, 29 (3): 441–448. Wang Yong, Ji Zhenming, Shen Xinyong, et al. 2013. Causation analysis of the direct climate effects of anthropogenic aerosols on East Asian summer monsoon [J]. Journal of Tropical Meteorology (in Chinese), 29 (3): 441–448.
- 王跃思, 王莉莉, 赵广娜, 等. 2014. 北京冬季 PM_{2.5} 重污染时段不同尺度环流形势及边界层结构分析 [J]. 气候与环境研究, 19 (2): 173–184.
- Wang Yuesi, Wang Lili, Zhao Guangna, et al. 2014. Analysis of different-scales circulation patterns and boundary layer structure of PM_{2.5} heavy pollutions in Beijing during Winter [J]. Climatic and Environmental Research (in Chinese), 19 (2): 173–184.
- Wang Y S, Yao L, Wang L L, et al. 2014. Mechanism for the formation of the January 2013 heavy haze pollution episode over central and eastern China [J]. Science China Earth Sciences, 57 (1): 14–25, doi: 10.1007/s11430-013-4773-4.
- Wang Z F, Li J, Wang Z, et al. 2014. Modeling study of regional severe hazes over mid-eastern China in January 2013 and its implications on pollution prevention and control [J]. Science China: Earth Sciences, 57 (1): 3–15, doi: 10.1007/s11430-013-4793-0.
- 王志立, 张华, 郭品文. 2009. 南亚地区黑碳气溶胶对亚洲夏季季风的影响 [J]. 高原气象, 28 (2): 419–424. Wang Zhili, Zhang Hua, Guo Pinwen. 2009. Effects of black carbon aerosol in South Asia on Asian summer monsoon [J]. Plateau Meteorology (in Chinese), 28 (2): 419–424.
- Ying Z M, Tie X X, Li G H. 2009. Sensitivity of ozone concentrations to diurnal variations of surface emissions in Mexico City: A WRF/Chem modeling study [J]. Atmos. Environ., 43 (4): 851–859, doi: 10.1016/j.atmosenv.2008.10.044.
- Zaveri R A, Peters L K. 1999. A new lumped structure photochemical mechanism for large-scale applications [J]. J. Geophys. Res.: Atmos. (1984–2012), 104 (D23): 30387–30415, doi: 10.1029/1999JD900876.
- Zhang R H, Li Q, Zhang R N. 2014. Meteorological conditions for the persistent severe fog and haze event over eastern China in January 2013 [J]. Science China: Earth Sciences, 57 (1): 26–35, doi: 10.1007/s11430-013-4774-3.
- 张小曳, 孙俊英, 王亚强, 等. 2013. 我国雾—霾成因及其治理的思考 [J]. 科学通报, 58 (13): 1178–1187. Zhang Xiaoye, Sun Junying, Wang Yaqiang, et al. 2013. Factors contributing to haze and fog in China [J]. Chinese Science Bulletin (Chin. Ver.) (in Chinese), 58 (13): 1178–1187.
- Zhang Y, Liu P, Queen A, et al. 2006. A comprehensive performance evaluation of MM5-CMAQ for the summer 1999 southern oxidants study episode—Part II: Gas and aerosol predictions [J]. Atmos. Environ., 40 (26): 4839–4855, doi: 10.1016/j.atmosenv.2005.12.048.
- Zhang Y, Wen X Y, Jang C J. 2010. Simulating chemistry–aerosol–cloud–radiation–climate feedbacks over the continental U.S. using the online-coupled Weather Research Forecasting Model with chemistry (WRF/Chem) [J]. Atmos. Environ., 44 (29): 3568–3582, doi: 10.1016/j.atmosenv.2010.05.056.