

秦楚菲, 孙家仁, 张文君, 等. 2020. 基于数值模拟和统计拟合分析华北冬季一次大范围重污染过程的形成机理 [J]. 气候与环境研究, 25(2): 185–198. QIN Chufei, SUN Jiaren, ZHANG Wenjun, et al. 2020. Formation Mechanism of a Large-Scale Heavy Pollution Process in North China in Winter Based on Numerical Simulation and Statistical Fitting [J]. Climatic and Environmental Research (in Chinese), 25 (2): 185–198. doi:10.3878/j.issn.1006-9585.2019.19006

基于数值模拟和统计拟合分析华北冬季一次大范围重污染过程的形成机理

秦楚菲¹ 孙家仁^{2,3} 张文君¹ 廖志恒³ 滕宇威¹ 陈朋龙² 陈静华²

1 南京信息工程大学气象灾害教育部重点实验室/气候与环境变化国际合作联合实验室气象灾害预报预警与评估协同创新中心, 南京 210044

2 生态环境部华南环境科学研究所国家环境保护城市生态环境模拟与保护重点实验室, 广州 510655

3 中山大学大气科学学院, 广州 510275

摘要 基于 WRF/Chem (Weather Research Forecasting/Chemistry) 模式对 2015 年 11 月 25 日至 12 月 2 日我国北方一次大范围 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) 重污染过程进行了模拟。与观测资料对比表明, 模式能够较好地模拟出 PM_{2.5} 浓度及气象因素的变化趋势, 结果适用于此次污染事件的机理分析。动力、热力条件及化学转化等因素对此次强污染事件形成的机理分析表明, 动力因子主要通过表面风和垂直风切变的减弱对此次污染事件造成影响, 边界层逆温等热力因子促进了大气稳定性的增强, 不利于污染物扩散。依据 PM_{2.5} 组成成分变化分析可知, 硝酸盐、硫酸盐和有机碳在此次事件中含量增加, 说明机动车汽车尾气和燃煤排放所致的二次气溶胶生成对 PM_{2.5} 污染加剧起重要贡献。多元线性回归分析和多因子相对贡献率量化解析结果表明, 热力因子在此次污染过程中起主要作用, 方差贡献率为 52%, 动力因子次之, 方差贡献率为 34%, 而化学转化方差贡献率约为 14%, 说明气象条件, 尤其是热力条件是引起此次污染事件的主要原因。

关键词 WRF/Chem 模式 重污染 动力因子 热力因子 化学因子

文章编号 1006-9585(2020)02-0185-14

中图分类号 P402

文献标识码 A

doi:10.3878/j.issn.1006-9585.2019.19006

Formation Mechanism of a Large-Scale Heavy Pollution Process in North China in Winter Based on Numerical Simulation and Statistical Fitting

QIN Chufei¹, SUN Jiaren^{2,3}, ZHANG Wenjun¹, LIAO Zhiheng³, TENG Yuwei¹,
CHEN Penglong², and CHEN Jinghua²

1 Key Laboratory of the Ministry of Meteorological Disaster Education/Joint Laboratory of International Cooperation on Climate and Environmental Change, Cooperative Innovation Center for Forecasting, Early Warning and Assessment of Meteorological Disasters, Nanjing University of Information Science and Technology, Nanjing 210044

2 Key Laboratory of Urban Ecological Environmental Simulation and Protection, South China Institute of Environmental Sciences, the Ministry of Environmental Protection of People's Republic of China, Guangzhou 510655

3 School of Atmospheric Sciences, Sun Yat-sen University, Guangzhou 510275

收稿日期 2019-01-11; 网络预出版日期 2019-08-30

作者简介 秦楚菲, 女, 1994 年出生, 硕士研究生, 主要从事大气污染和数值模拟方面研究, E-mail: 762902534@qq.com

通讯作者 张文君, E-mail: zhangwj@nuist.edu.cn

资助项目 国家自然科学基金项目 41475140、41675073

Funded by National Natural Science Foundation of China (Grants 41475140 and 41675073)

Abstract Using the WRF/Chem (Weather Research Forecasting/Chemistry) model, a large-scale PM_{2.5} heavy pollution process in northern China from 25 November to 2 December 2015 was simulated. Comparisons to observations show that the model can realistically capture the magnitude and variation of PM_{2.5} and meteorological factors, and can be used for the mechanism analysis of this pollution event. This paper further analyzed the mechanism of the strong pollution event from the aspects of dynamics, thermo-meteorological conditions, and chemical transformation. The results show that the dynamic factors mainly affect the pollution event through weakening of the surface wind and vertical wind shear. Thermal factors, such as a boundary layer inversion, promote the enhancement of the atmospheric stability, which is not conducive to pollutant diffusion. Based on the analysis of the PM_{2.5} composition, the nitrate, sulfate, and organic carbon content increased in this event, indicating that the secondary aerosol formation caused by vehicle exhaust and coal combustion contributes greatly to the PM_{2.5} pollution. To identify the main factors causing this pollution event, we used multiple linear regression and relative contribution rate accounting methods to quantify the multi-factor analysis. The results show that the thermal factors play a major role in the pollution process, with a variance contribution of 52%, dynamic factor of 34%, and a chemical transformation variance contribution of 14%, indicating that adverse meteorological conditions, especially thermal conditions, are the main causes of the pollution event.

Keywords WRF-Chem model, Heavy pollution, Dynamic factors, Thermal factors, Chemical factors

1 引言

近年来,随着我国工业化、城市化的不断发展,以细颗粒物 PM_{2.5} 为首要污染物的污染事件频繁发生,尤其是我国北方冬季,至今仍面临较严重的 PM_{2.5} 污染问题(林俊等, 2009; 安俊岭等, 2012; Cao et al., 2014; Lu et al., 2015)。PM_{2.5} 含有的有害元素和化合物易引发呼吸系统和心脑血管等疾病(黄鹂鸣等, 2002; 殷永文等, 2011), 对人体健康造成严重威胁。此外, PM_{2.5} 的消光作用使大气能见度显著下降, 给人们的出行带来了不便(吴国平等, 1999; 王伟等, 2000; 黄鹂鸣等, 2002; 张殷俊等, 2015)。因此, 了解细颗粒 PM_{2.5} 污染事件的演变过程和形成机理对于有针对性开展大气重污染防控起重要支撑作用。

细粒子所带来的健康效应、气候变化以及环境污染很大程度上是由其化学成分决定的(狄一安等, 2014), 因此研究 PM_{2.5} 各组成成分有利于追踪 PM_{2.5} 的来源, 及时防范大气污染及其健康危害。然而, 由于我国经济发展不均衡, 不同区域的具体情况各异, 因此污染物具体的成分和来源不尽相同, 但前人的研究认为 PM_{2.5} 的 6 种主要成分是硫酸盐、硝酸盐、铵盐、含碳气溶胶(包括有机碳和元素碳)、二次有机气溶胶和海盐气溶胶(Yang et al., 2011; 焦周光等, 2016; Li et al., 2016; Liu et al., 2016; 周广强等, 2016; 秦思达等, 2017; 鞠园华等, 2018)。目前学术界普遍认为二次气溶胶是我国灰霾形成的真正祸首, 二次气溶胶由一次气

溶胶污染物相互反应或与大气中原有成分进行化学和光化学反应生成的一系列新的气溶胶(Kang et al., 2004; 李建生和刘炳光, 2018), 分为二次有机气溶胶(SOA)和二次无机气溶胶(SIA)(黄丹丹等, 2018), 其中二次无机气溶胶主要包括硫酸盐、硝酸盐、铵盐等(黄晓锋等, 2014; 卫菲菲等, 2017)。所以研究二次气溶胶对我国污染过程的影响具有重要意义。

前人研究表明, 细颗粒污染不仅和人为排放有关, 不利的气象条件对污染物的维持和发展也起重要作用(张小曳等, 2013; 赵晨曦等, 2014; Huang et al., 2015)。其中表面风速与污染物浓度呈显著的负相关, 当表面风速偏大时, 污染向区域外的输送较强, 不利于污染的发生发展。当水平风的垂直切变偏大时, 污染天气区域上空垂直混合偏强, 有利于污染向高空扩散, 减弱污染物在低空的聚集(孟伟等, 2006; 马锋敏等, 2008; Pasch et al., 2011; 张人禾等, 2014; 赵晨曦等, 2014; Liu et al., 2017)。此外, 一些研究表明较低的边界层和逆温结构所导致的大气稳定性增强不利于污染物扩散(王跃等, 2014; 刘建等, 2015; 常炉予等, 2016), 大气中的相对湿度增加促进 PM_{2.5} 吸湿增长, 有利于污染加重, 而降水对污染起到冲刷作用, 因此降水与 PM_{2.5} 浓度呈负相关, 但积雪融化过程易使地面温度降低, 造成低层逆温, 使污染积聚(Mlawer et al., 1997; Huang et al., 2015)。温度与 PM_{2.5} 浓度值也呈负相关, 通常情况下, 冬季 PM_{2.5} 污染最为严重, 夏季污染最小(Tiwari et al., 2013)。

尽管以往涉及 PM_{2.5} 不同成分贡献解析及气象因子对污染影响的研究较多,但是将二者结合起来,定量的解析气象和化学因子对 PM_{2.5} 重污染相对贡献的研究并不多见。鉴于此,本文运用 WRF/Chem (Weather Research Forecasting/Chemistry) 3.9.1 模式对 2015 年 11 月 25 日至 12 月 2 日我国北方(本文特指京津冀鲁豫皖苏地区,如图 1)一次大范围的重污染过程进行模拟分析,从动力、热力气象因子和化学因子 3 个方面对污染演变机理进行分析并计算各自相对贡献,识别引发此次重污染的主要原因,对我国重污染天气预报预警和应急管理具有一定的参考作用。

2 数据与方法

2.1 资料

(1) 模式验证所用的 PM_{2.5} 浓度观测数据来自青悦开放环境数据中心 (<http://data.epmap.org/> [2017-11-20]) 的小时平均结果,气象资料源自中

国气象数据网每隔 6 h 平均的观测数据。污染区域、污染浓度及代表站点分布如图 1 所示。

(2) 中国内陆排放源清单采用清华大学中国多尺度排放清单 MEIC (Multi-resolution Emission Inventory for China) 2016 年更新结果,周边区域清单则采用 MIX (a new Asian anthropogenic emission inventory, 简称 MIX) (Li et al., 2017) 2010 年排放结果。

(3) 模式气象初始条件和边界条件使用 NCEP (National Centers for Environmental Prediction) FNL (Final Operational Global Analysis) 全球再分析资料 ([http://rda.ucar.edu/datasets\[2017-11-20\]](http://rda.ucar.edu/datasets[2017-11-20])), 选取变量主要包括气压、温度、位势高度、风速、相对湿度、土壤参数等。资料空间和时间分辨率分别为 1° (纬度) × 1° (经度) 和 6 h, 垂直方向为 29 层。

2.2 方法

2.2.1 WRF/Chem 模式简介

空气质量模式作为大气污染的时空演变、内在机理和污染成因等研究的有用工具,从 20 世纪

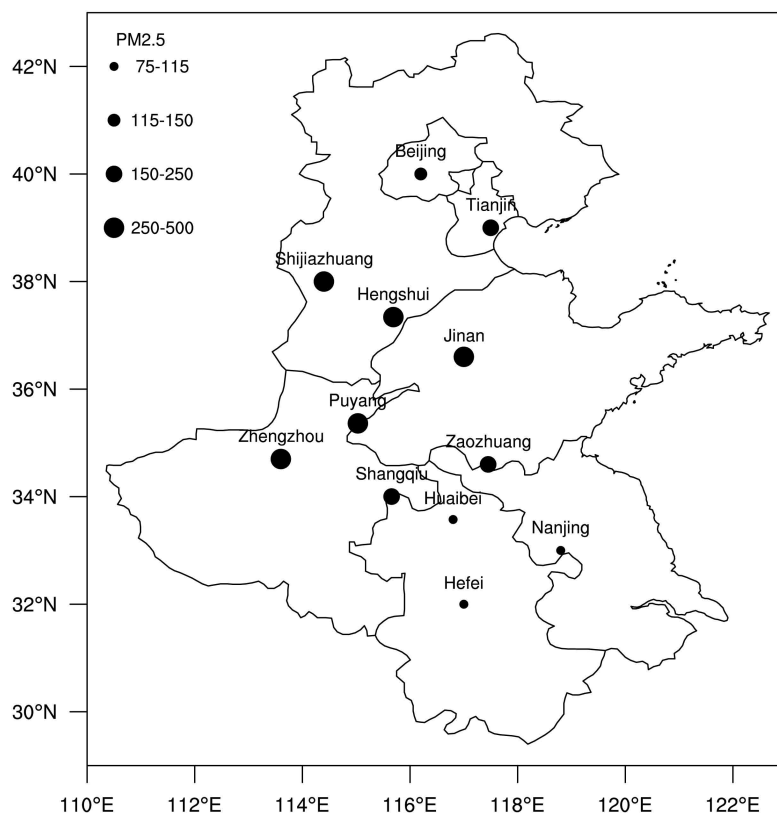


图 1 研究区域站点分布(黑点)及各站点 2015 年 11 月 26~30 日平均 PM_{2.5} 浓度(单位: μg/m³)分布

Fig. 1 Distribution of the stations (black spots) in the study area and the PM_{2.5} concentration (μg/m³) at the representative stations averaged from 26 November to 30 November 2015

70 年代建立开始, 经历了 3 次重大发展历程。WRF/Chem 作为第三代模式的重要代表, 是由美国 NOAA (National Oceanic and Atmospheric Administration)、NCAR (National Centers for Environmental Prediction) 等多家机构联合开发的在线区域化学传输模式, 包含多种可选的大气物理和化学参数化方案。模式实现了动力传输 (平流、对流、扩散等)、干湿沉降、气溶胶非均相、辐射、光化学、气相化学等多物理化学过程的在线耦合, 能够较为准确模拟出气溶胶浓度的时空变化, 更符合实际大气的情况 (Grell and Dévényi, 2002; 杨雨灵等, 2015; 周广强等, 2016; 黄晓波等, 2016; 杨关盈等, 2018)。

本文采用 WRF/Chem 模式 3.9.1 版本。排放源清单是清华大学开发的中国多尺度排放清单 (MEIC 2016) 和 MIX 2010 融合产品。排放源物种包括 PM_{2.5}、PM₁₀、SO₂、OC、NO₂ 和 NMHC (乙烷、丙烷等烷类和乙烯、丙烯、苯、甲苯以及其他芳香族化合物) 等。模拟区域采取 (28°N, 114°E) 为中心经纬度的兰勃特投影, 水平分辨率采用 27 km 的一重嵌套网格, 模拟区域垂直方向分为 29 层。模式物理参数化方案如表 1 所示。气象时间步长为 60 s, 化学时间步长为 60 s。研究机制选用 CB05, 该机制的反应个数有 156 个, 物种个数为 51 个 (Yarwood, 2005), 相比其他机制 (CBM-IV、CBM-IV_99 等) 考虑了更多的反应个数和前体物。

2.2.2 统计方法

本文采用常见的统计指标包括相关系数 (R)、平均偏差 (M_B)、标准化平均偏差 (N_{MB})、标准化平均误差 (N_{ME}) 和均方根误差

(R_{MSE}) 评估模式结果。

$$R = \frac{\sum_{i=1}^N (p_i - \bar{p})(o_i - \bar{o})}{\sqrt{\sum_{i=1}^N (p_i - \bar{p})^2} \sqrt{\sum_{i=1}^N (o_i - \bar{o})^2}}, \quad (1)$$

$$M_B = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (p_i - o_i), \quad (2)$$

$$N_{MB} = \frac{\sum_{i=1}^N (p_i - o_i)}{\sum_{i=1}^N o_i} \times 100\%, \quad (3)$$

$$N_{ME} = \frac{\sum_{i=1}^N |p_i - o_i|}{\sum_{i=1}^N o_i} \times 100\%, \quad (4)$$

$$R_{MSE} = \left[\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (p_i - o_i)^2 \right]^{\frac{1}{2}}, \quad (5)$$

其中, p_i 为模拟值, o_i 为观测值, N 为样本总数, $\bar{p}$ 为模拟平均值, $\bar{o}$ 为观测平均值。 R 是相关系数, 反映了模拟值和观测值的相关性。 M_B 是平均偏差, 反映了模拟值比观测值偏大或者偏小的数值。 N_{MB} 是标准化偏差, 反映了模拟、观测间的偏离程度。 N_{ME} 是标准化平均误差, 反映了模拟和观测间的平均偏离程度。 R_{MSE} 是均方根误差, 反映了模拟值和观测值的离散程度, 能衡量模式的模拟精度。

将影响我国北方 (30°N~42°N, 110°E~122°E) 2015 年 11 月 25 日至 12 月 2 日 PM_{2.5} 重污染的动力、热力和化学因子作为自变量, 将 PM_{2.5} 浓度作为因变量, 建立了关于 PM_{2.5} 浓度的多元回归方程:

$$P = C + az_1 + bz_2 + cz_3, \quad (6)$$

其中, P 表示 PM_{2.5} 浓度, C 为常数项, a 、 b 、 c 为回归系数, z_1 、 z_2 、 z_3 分别是动力因子、热力因子和化学转化因子的表达式。参考张人禾等 (2014) 研究方法, 选取表面风速 (W_s) 和 500 hPa 与 850 hPa 水平风垂直切变 (垂直切变指垂直于地表方向上风速或风向随高度的剧烈变化, 用 $\Delta|V| = \sqrt{(u_{500} - u_{850})^2 + (v_{500} - v_{850})^2}$ 表示, u_{850} 、 v_{850}

表 1 模式物理参数化方案

Table 1 Physical parameterization scheme of the model

方案类型	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 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 (Reynolds et al., 1984)
陆面过程	Noah 陆面过程方案 (Noh, 2003)
边界层参数化方案	YSU 方案 (Noh, 2003)
积云参数化方案	Grell 积云参数化方案 (Grell and Dévényi, 2002)
气溶胶参数化方案	MADE 方案 (Schell et al., 2001)
气相化学机制	CB05 (Yarwood, 2005)

和 u_{500} 、 v_{500} 分别表示 850 hPa、500 hPa 纬向风和径向风) 作为动力因子, 热力因子为 850 hPa 与 1000 hPa 假相当位温差 (假相当位温指未饱和湿空气块上升, 直到气块内水汽全部凝结降落后, 再按干绝热下沉到 1000 hPa 处, 此时气块所具有的温度称为该气块的假相当位温, 用 $\Delta\theta$ 表示)、925 hPa 与 1000 hPa 温度垂直差 (ΔT)。考虑到化学转化过程主要对 PM_{2.5} 的二次生成有显著贡献, 选用二次气溶胶 (硫酸盐、硝酸盐和二次有机气溶胶) 的含量作为化学转化因子, 用 Q 表示, 选取依据详见本文第 6 节。多元线性回归方程的偏回归系数可以反映各因子与 PM_{2.5} 浓度的相关性。

为了进一步分析热力因子、动力因子和化学转化因子对此次污染过程的相对重要性, 我们参考 Liu et al. (2017) 的方法计算了各项因子的相对贡献率:

$$\begin{aligned} & |a_1| / (|a_1| + |a_2| + |a_3|) \times 100\%, \\ & |a_2| / (|a_1| + |a_2| + |a_3|) \times 100\%, \\ & |a_3| / (|a_1| + |a_2| + |a_3|) \times 100\%, \end{aligned} \quad (7)$$

其中, a_1 、 a_2 、 a_3 分别为 3 个因子对污染过程的贡献量, $a_1 = a\Delta z_1$, $a_2 = b\Delta z_2$, $a_3 = c\Delta z_3$, Δ 表示标准差, 期望通过相对贡献率大小可以得出造成此次污染的主要原因。

3 研究区域选取和模式结果验证

3.1 研究区域

2015 年 11 月 25 日至 12 月 2 日, 我国北方发生了一次以 PM_{2.5} 为首要污染物的重污染过程。为了确定具体的研究区域, 利用现有城市大气环境监测站点的 PM_{2.5} 值画出浓度分布图, 并参照环境空气质量指数 (AQI) 技术规定 (试行) (HJ633-2012) (Cheng et al., 2007; 高庆先等, 2015) 定义的中国 24 h 污染等级划分标准, 对各个站点的 PM_{2.5} 浓度进行了等级划分, 从低到高依次为优 (0~35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)、良 (35~75 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)、轻度污染 (75~115 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)、中度污染 (115~150 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)、重度污染 (150~250 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)、严重污染 (250~500 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)。根据 PM_{2.5} 浓度分布特征, 本文将北京、天津、河北、河南、山东、江苏和安徽作为此次污染过程的发展演变的研究区域, 并选取上述各个区域内代表站点监测资料用于污染特征分析及模式结果验证 (图 1)。由图 1 可知, 合肥、南京和淮北市在 11 月 26 日至 11 月 30 日

PM_{2.5} 平均浓度值为 80 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 左右, 属轻度污染, 北京市的污染强度在该时段达到中度污染, 而天津市、枣庄市和商丘市 PM_{2.5} 浓度值为 200 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 为重度污染, 石家庄、郑州、衡水和济南市 PM_{2.5} 浓度均达到 250 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上, 污染强度达到严重污染的标准。综上所述, 此次污染以京津冀南部及豫鲁地区为污染中心, 依次向南北方向减弱, 具有污染范围大, 污染强度高、持续时间长等特点, 是一次典型的 PM_{2.5} 污染事件。分析其演变过程及形成机理对今后开展 PM_{2.5} 污染成因研究具有重要借鉴意义。

3.2 模式结果验证

图 2 为研究区域平均的模式与观测资料的对比验证结果。模式较好地捕捉到 850 hPa 风速、气温以及 500 hPa 风速的演变趋势, 基本上再现了研究时段内污染气象条件的变化特征 (图 2a-2c); 由区域平均的 PM_{2.5} 模拟结果和观测结果的对比 (图 2d) 可见, 模拟结果总体能够模拟出实际 PM_{2.5} 值的大小和变化趋势, 但没能模拟出观测结果中 11 月 30 日 PM_{2.5} 浓度峰值。为了进一步探讨 11 月 30 日峰值未模拟出的原因, 将北京地区硝酸盐、硫酸盐和有机碳的在线观测值与模拟值进行对比 (图略), 结果发现模式结果虽然总体上能够反映这 3 个变量的变化趋势, 但低估了 11 月 30 日的高污染过程, 从而使得模式未能模拟出该时段 PM_{2.5} 浓度峰值。尽管如此, 模式结果很好地捕捉到了各站点 PM_{2.5} 日均浓度的变化特征 (图 3)。进一步的定量统计分析结果表明 (表 2), 模拟的气象要素和 PM_{2.5} 浓度值与观测值的相关都达到 0.7 以上, 850 hPa 风速相关系数为 0.73, 其中 500 hPa 风速和 850 hPa 温度则达到 0.95 以上。模拟的气象要素 M_B 、 N_{MB} 、 N_{ME} 和 R_{MSE} 值很小, 说明气象要素与观测值的偏离程度小。PM_{2.5} 浓度的 M_B 、 R_{MSE} 和相对于气象要素偏大, 但整体模拟效果较好, 相关系数达到 0.8, N_{MB} 和 N_{ME} 的值约 20%, 平均偏离程度较小。上述模式结果验证表明, 模拟研究区域的平均变化趋势是可信的, 可以反映此次 PM_{2.5} 重污染过程的演变特征。

4 污染过程演变分析

图 4 为 2015 年 11 月 25 日至 12 月 2 日 PM_{2.5} 污染过程的时空演变, 由图可见, 11 月 25 日我国

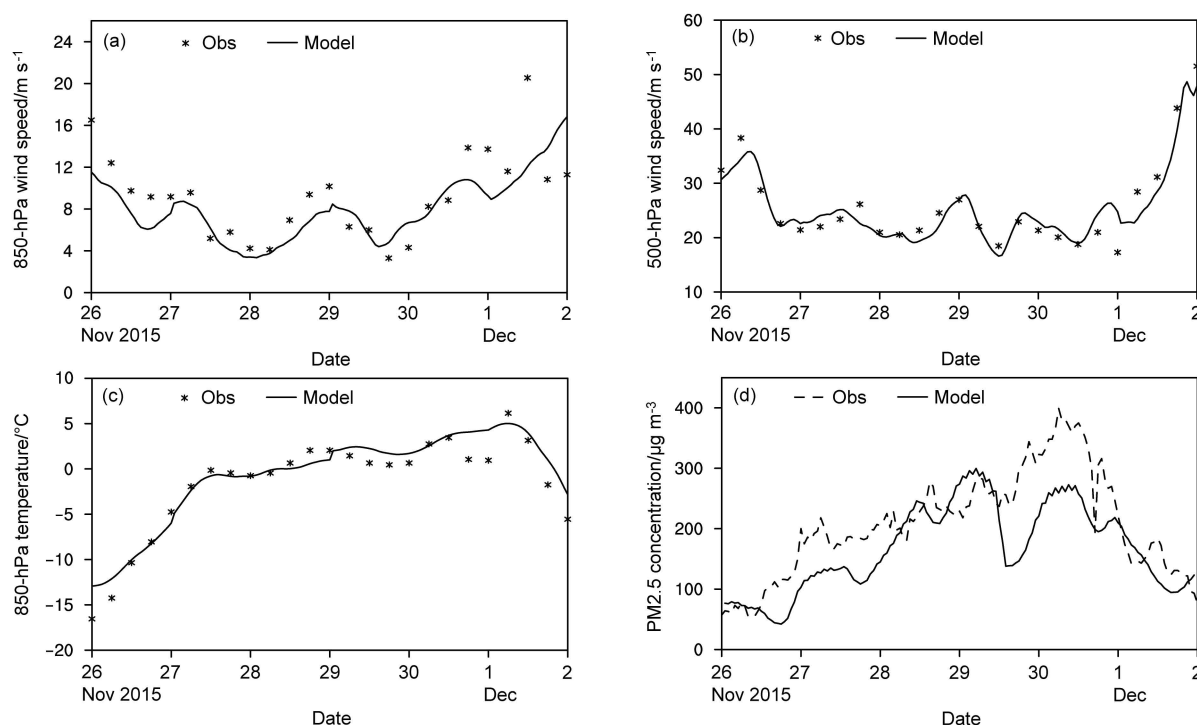


图2 2015年11月26日至12月2日研究区域平均的模式模拟结果与观测结果的对比：(a) 850 hPa 风速（单位： m/s ）；(b) 500 hPa 风速（单位： m/s ）；(c) 850 hPa 温度（单位： $^{\circ}\text{C}$ ）；(d) PM_{2.5} 浓度（单位： $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）。其中，实线为 WRF/Chem 模拟结果，(a-c) 中星点为每隔 6 h 气象要素观测值，(d) 中虚线为空气质量网提供的每隔 1 h 的 PM_{2.5} 观测浓度值

Fig. 2 Comparison and verification of the regional averaged model and observation results from 26 November 2015 to 2 December 2015: (a) 850-hPa wind speed (m/s); (b) 500-hPa wind speed (m/s); (c) 850-hPa temperature ($^{\circ}\text{C}$); (d) PM_{2.5} concentration ($\mu\text{g}/\text{m}^3$). Among them, the solid line is the WRF/Chem (Weather Research Forecasting/Chemistry) simulation result, the star point in (a-c) is the observation result value of meteorological elements every 6 h, the dotted line in (d) is the observed PM_{2.5} concentration value every 1 h provided by the air quality network ([http://data.epmap.org/\[2017-11-20\]](http://data.epmap.org/[2017-11-20]))

东部以较强的偏北风为主，污染区域 PM_{2.5} 平均浓度在 $75 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 左右；11月26日，我国北方大部分地区受反气旋性环流控制，偏北风减弱，PM_{2.5} 浓度开始增加；27日风向由北转南，河北、山东地区污染进一步增强，PM_{2.5} 浓度值最大达到 $270 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ，污染达到严重污染等级；28日受持续南风控制，污染区域扩大，污染强度增加，河北、河南、山东等地 PM_{2.5} 浓度达到 $300 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上；29日在河南等地出现弱北风，使得污染强度稍弱于28日；30日，河南等地北风又转为南风，使得北部污染进一步加剧，持续污染，但污染范围缩小。12月1日北风增加，污染开始消散，随着12月2日华北地区北风的进一步加强，此次污染至此结束。

为了更细致地了解各省份 PM_{2.5} 污染的演变特征，图5给出了不同地区 PM_{2.5} 小时平均浓度的变化。从图5中可以看出，各个省份的 PM_{2.5} 浓度变化趋势是一致的，11月26日各个地区达到

轻度污染，11月27~30日污染持续增加，其中28日污染最严重，29日污染略微减弱，30日持续污染，12月1日污染开始消散，12月2日 PM_{2.5} 浓度值在 $75 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下。

5 各因子对污染天气演变过程的影响

5.1 动力因子影响

根据前人研究，影响大气污染扩散的动力因子主要包括表面风、风垂直切变、高压系统等（张人禾等, 2014; 赵晨曦等, 2014; Pasch et al., 2011）。通过对 850 hPa 环流场（500 hPa 环流场图略）演变特征（图6）的分析发现，11月25日在我国有强西北风，26日西北风继续影响我国，在高空引导气流的作用下，为我国南部大陆高压的形成提供了有利的气象条件。27日，西北风减弱，南风增强，我国中部形成了一个明显的反气旋环流，高压前部下沉气流有效抑制了对流的发展，有利于污染

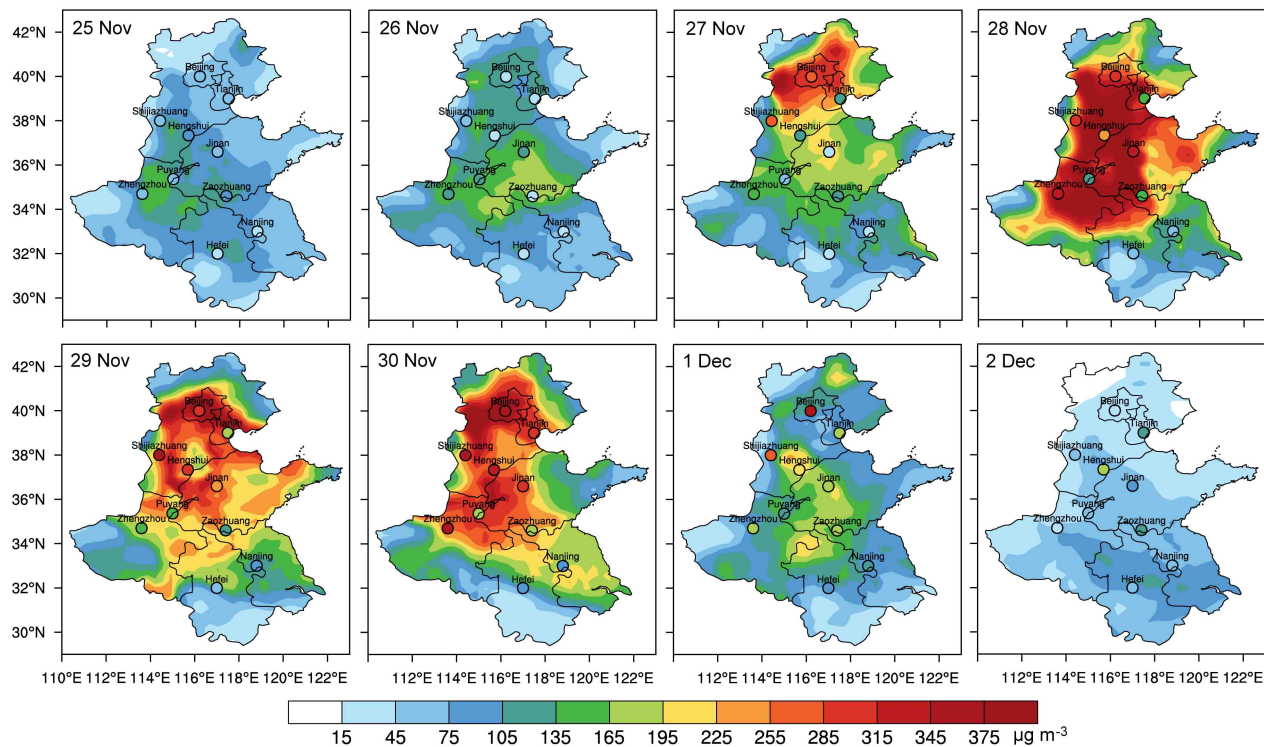


图3 2015年11月26日至12月2日观测站点日均PM_{2.5}浓度值和模拟PM_{2.5}浓度值分布（彩色圆圈为代表站点观测值，阴影为模式模拟值；单位： $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）

Fig. 3 Comparison and verification of daily average PM_{2.5} concentration of observation stations (color circles, units: $\mu\text{g}/\text{m}^3$) and simulated PM_{2.5} concentration (color shaded, units: $\mu\text{g}/\text{m}^3$) from 26 November 2015 to 2 December 2015

表2 模拟效果的统计评估

Table 2 Statistical evaluation of the simulation results

	R	M_B	N_{MB}	N_{ME}	R_{MSE}
850 hPa风速	0.73	-1.10 m/s	-11.97%	25.90%	2.99 m/s
500 hPa风速	0.95	-1.11 m/s	-3.86%	23.82%	2.81 m/s
850 hPa温度	0.96	0.67°C	-4.43%	7.95%	1.63°C
PM _{2.5} 浓度	0.80	-41.90 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	-20.17%	25.75%	65.92 $\mu\text{g}/\text{m}^3$

物在大气中低层聚集。28日北风继续减弱，西南风增强，高压东移入海，污染在28日达到最大。29日我国中东部再次形成一个小高压，高压西侧的异常西南风以及北方冷空气的减弱，共同形成了有利于此次污染事件加剧的气象条件。30日高压东移入海，污染持续增加。12月1日伴随着北风的加强和高压的消亡，污染扩散得到加强，PM_{2.5}浓度降低，随着12月2日偏北风的进一步加强，此次污染最终得以消散。综上，500 hPa环流场通过西北风不断往低空输送冷空气，为地面形成高压提供了基本的环流背景，而西北风的减弱和中南部高压系统的建立与维持是形成此次污染事件的主要动力机制。由此可见，表面风和500 hPa与850 hPa

之间的水平风垂直切变可作为此次污染事件的关键动力因子。

5.2 热力因子影响

除了大气动力因子以外，与温度、湿度和层结稳定度有关的大气热力因子也对大气污染产生重要影响。由于在研究时段相对湿度变化小（图略），与PM_{2.5}的偏相关系数未通过显著性检验，所以我们最终没有将其考虑进来。图7为2015年11月25日至12月2日的垂直温度变化，从图中可以明显看出，在11月27~30日，在近地面层有逆温现象发生，逆温现象越明显，污染程度越大。在逆温天气下，大气边界层高度降低（图略），湍流减弱，近地面层的污染物在垂直方向上的扩散受到限制，更容易使污染物堆积在近地面。污染颗粒可以对太阳的短波辐射起衰减作用，减弱到达地面的净短波辐射通量，造成地面温度降低，地面温度降低有利于近地面层的水汽凝结，污染细颗粒通过吸湿增长，进一步导致污染加剧。在此次污染过程中，河南、河北和山东的部分地区在11月25日出现降雪（图略），积雪的融化导致地面温度降低，进一步导致逆温现象明显，不利于污染物扩散。

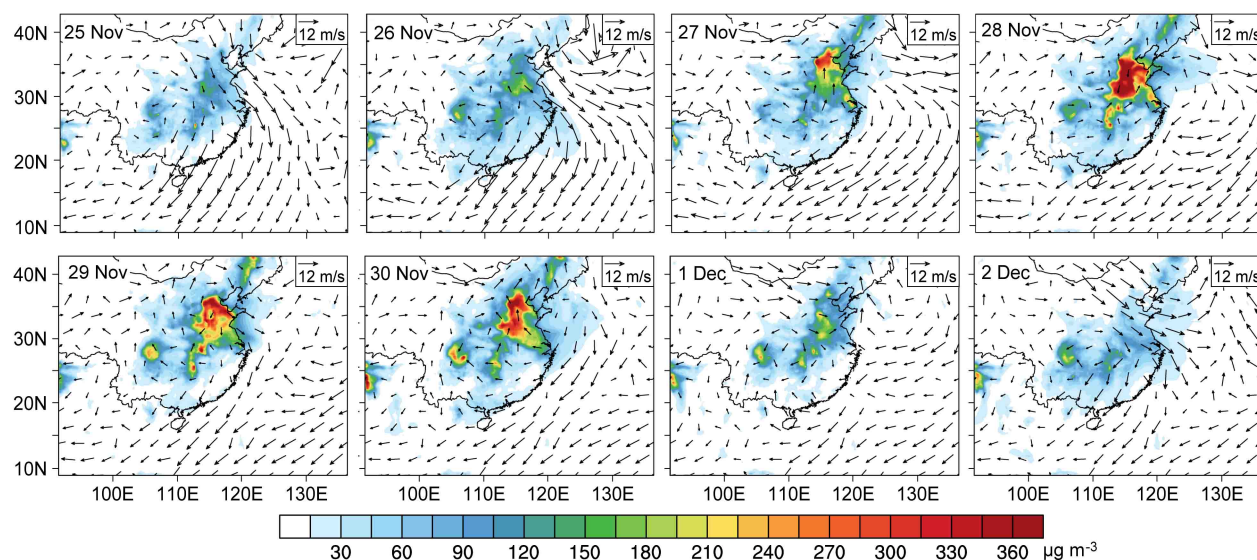


图4 2015年11月25日至12月2日PM_{2.5}污染过程时空演变(阴影为PM_{2.5}日均浓度,单位: $\mu\text{g}/\text{m}^3$; 箭头为地面风场,单位: m/s)

Fig. 4 Spatial and temporal evolution of the PM_{2.5} concentration pollution process from 25 November to 2 December 2015 (PM_{2.5} average concentration in shadow, units: $\mu\text{g}/\text{m}^3$; the arrow is the surface wind, units: m/s)

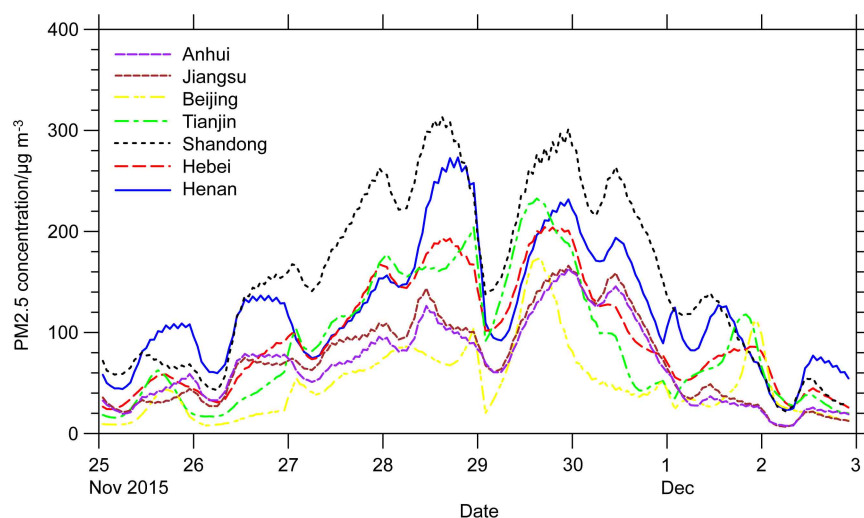


图5 2015年11月26日至12月2日不同污染地区小时平均PM_{2.5}浓度变化

Fig. 5 Change of the hourly average PM_{2.5} concentration in different polluted areas from 25 November to 2 December 2015

5.3 化学因子影响

不利的气象因素对一次重污染事件的形成起重要作用,而研究污染颗粒物的组成成分以及各个组成成分在一次污染过程中的变化有利于我们了解污染物的内在变化特征,得出此次污染演变过程中的主要污染成分。此次污染事件中PM_{2.5}主要组成成分有黑碳、有机碳、二次有机气溶胶、硫酸盐和硝酸盐(图8),有机碳、二次有机气溶胶、硫酸盐和硝酸盐在11月27日至11月30日含量呈现明显增加的过程,选取11月26日、11月28日和12月1日3个典型日,分别代表此次污染过程的

前、中、后期。由图8b可知,在污染前有机碳所占比重最大,为29%,在污染期间有机碳所占比重降低,硝酸盐所占比重加大,达到42%。硫酸盐在整个污染时期所占比重变化不大,约占整个污染物组成成分比重的五分之一。二次有机气溶胶在污染前后变化不大,所占比重大约为五分之一。黑碳气溶胶在污染前所占比重为12%,在污染期间所占比重下降为5%,污染后比重又重新升为11%。由图9分析可得,有机碳和黑碳在此次污染过程中有所减少,硝酸盐在此次污染过程中含量增加,二次有机气溶胶和硫酸盐在此次污染过程中排

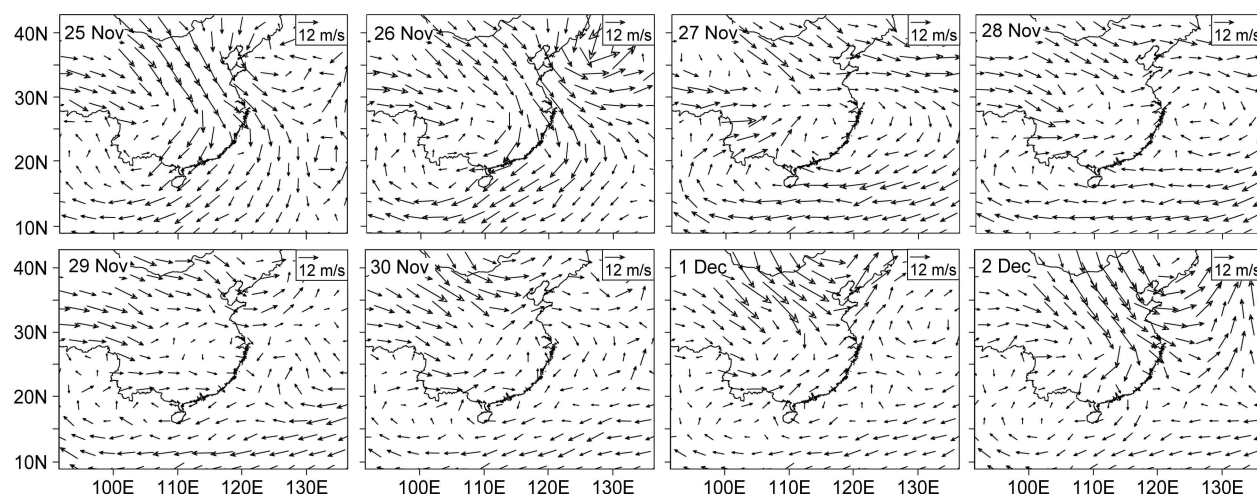


图6 2015年11月25日至12月2日850 hPa 环流风场

Fig. 6 850-hPa circulation wind field from 25 November to 2 December 2015

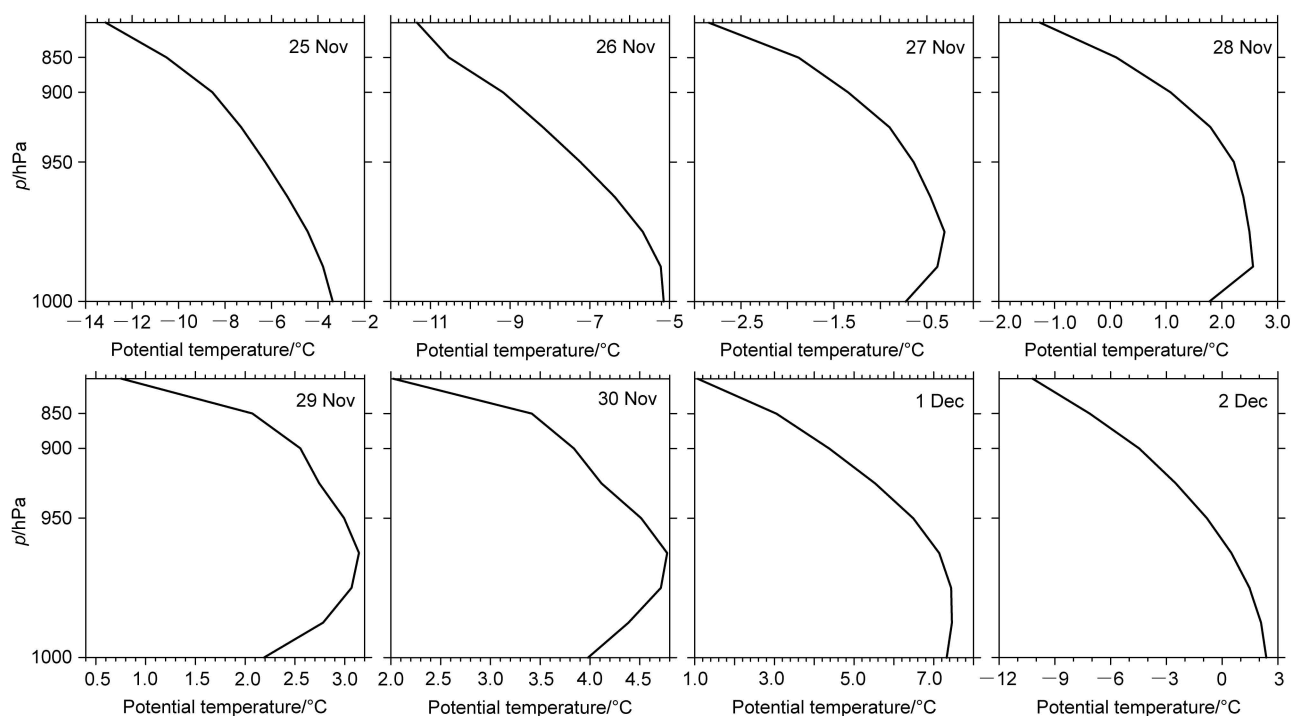


图7 2015年11月25日至12月2日研究区域平均的逐日位温垂直分布

Fig. 7 Daily vertical distribution of potential temperature averaged for the study area from 25 November to 2 December

放较为稳定，分别占总含量的五分之一。由此可见，在此次污染过程中，重污染日的硝酸盐气溶胶比重大幅增加，说明 NO_x 向硝酸盐的化学转化在二次气溶胶生成中起主导作用，机动车排放的增加可能加剧了此次污染。

6 各项因子的相对贡献

如前所述，气象动力因子、热力因子及 $\text{PM}_{2.5}$

中二次成分的生成过程对此次污染过程演变产生重要影响，那么这3个因素对 $\text{PM}_{2.5}$ 污染的相对贡献如何？值得我们深入探讨。考虑到 WRF/Chem 模式的排放源中初次排放的二次气溶胶成分占比较小，即二次气溶胶成分基本都是化学转化而来，因而本文使用 $\text{PM}_{2.5}$ 中硫酸盐、硝酸盐和二次有机气溶胶等二次成分的量来表征通过化学转换过程新生成的 $\text{PM}_{2.5}$ 量，并将之作为化学转化因子。以这3个因子作为自变量建立关于 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度的多

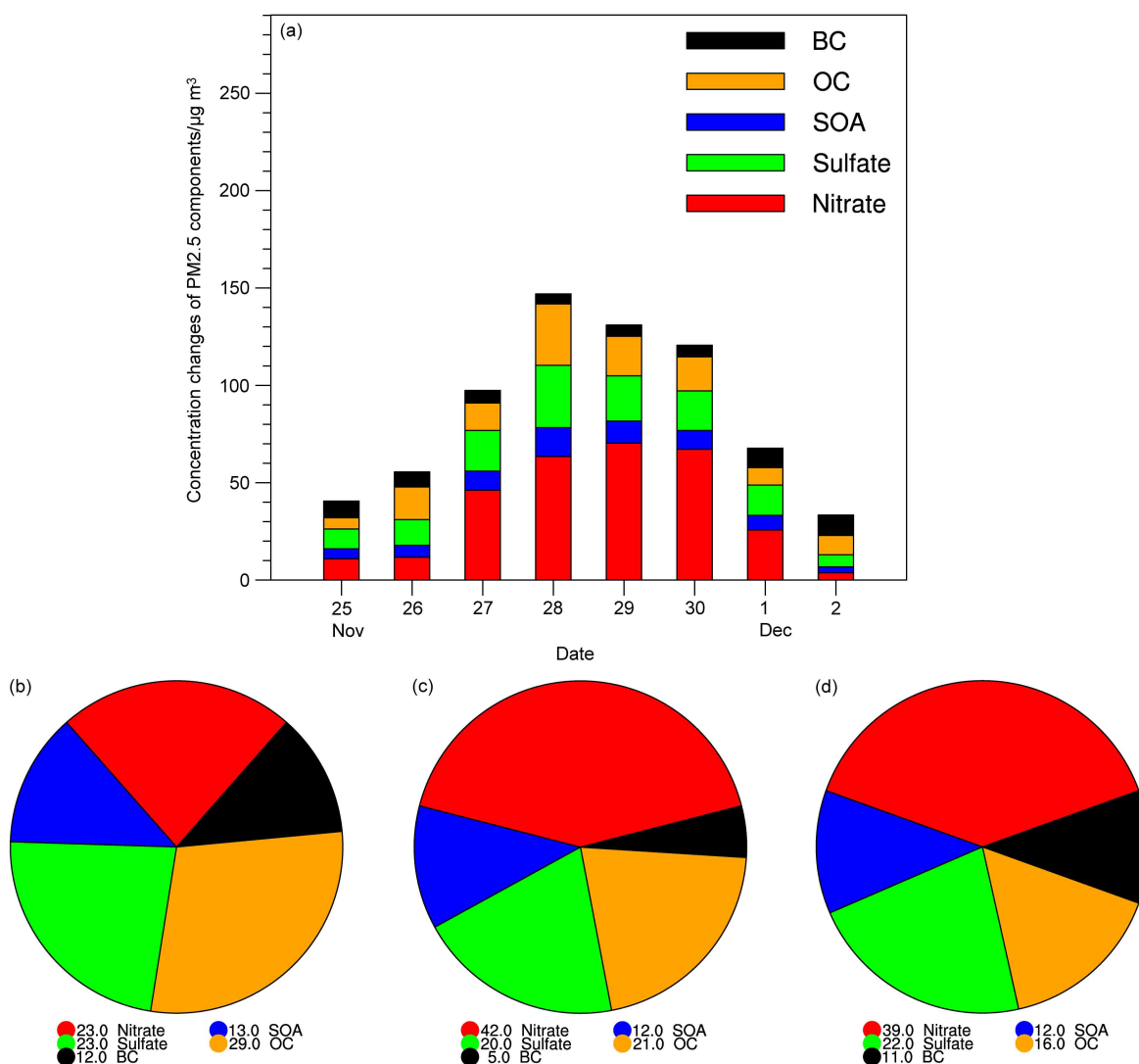


图8 (a) 不同污染时段 PM2.5 各组分浓度变化 (BC: 黑碳, OC: 有机碳, SOA: 二次有机气溶胶, Sulfate: 硫酸盐, Nitrate: 硝酸盐; 单位: $\mu\text{g m}^{-3}$) 及各组分在 (b) 污染前 (11月26日)、(c) 污染时 (11月28日) 和 (d) 污染后 (12月1日) 所占相对比重 (单位: %)

Fig. 8 (a) Concentration changes of the PM2.5 components in different pollution periods (BC: black carbon, OC: carbon oxides, SOA: secondary organic aerosols, Sulfate: sulfate, Nitrate: nitrate; units: $\mu\text{g m}^{-3}$) and the relative proportion (%) of each component (b) before pollution (26 November), (c) pollution (28 November), and (d) after pollution (1 December)

元线性回归方程如下:

$$P = -0.27|W_s| - 0.32\Delta|V| + 0.57\Delta\theta + 0.35\Delta T + 0.3Q + 0.02. \quad (8)$$

拟合 PM2.5 曲线和模拟的 PM2.5 浓度曲线有很好的一致性 (图 9a), 两者的相关系数达到 0.98。动力因子的偏回归系数为负值, 说明动力因子在此次污染事件中起到使污染物消散的作用。偏北风加强可促进污染物的跨区域传输, 500 hPa 与 850 hPa 的水平风垂直切变越大, 对流层中低层的垂直混合越强, 有利于污染物扩散, 反之则有利于污染物在近地面聚集, 造成污染物堆积。热力因子

与 PM2.5 浓度值为正相关, 在逆温情况下, 不利于污染物扩散。化学转化因子与 PM2.5 浓度值正相关。

图 9b-9d 为气象动力因子、热力因子和化学转化因子在所研究区域的偏回归系数的空间分布。动力因子在所研究区域的偏回归系数在 -0.4 左右, 基本呈负相关, 热力因子在所研究区域的偏回归系数为 0.7 左右, 而化学转化因子的偏回归系数为 0.2 左右, 因此可以得出结论: 在此次污染过程中, 化学转化因子所占比重最低, 表明此次污染事件的排放源较为稳定, 气象因子在此次污染过程中

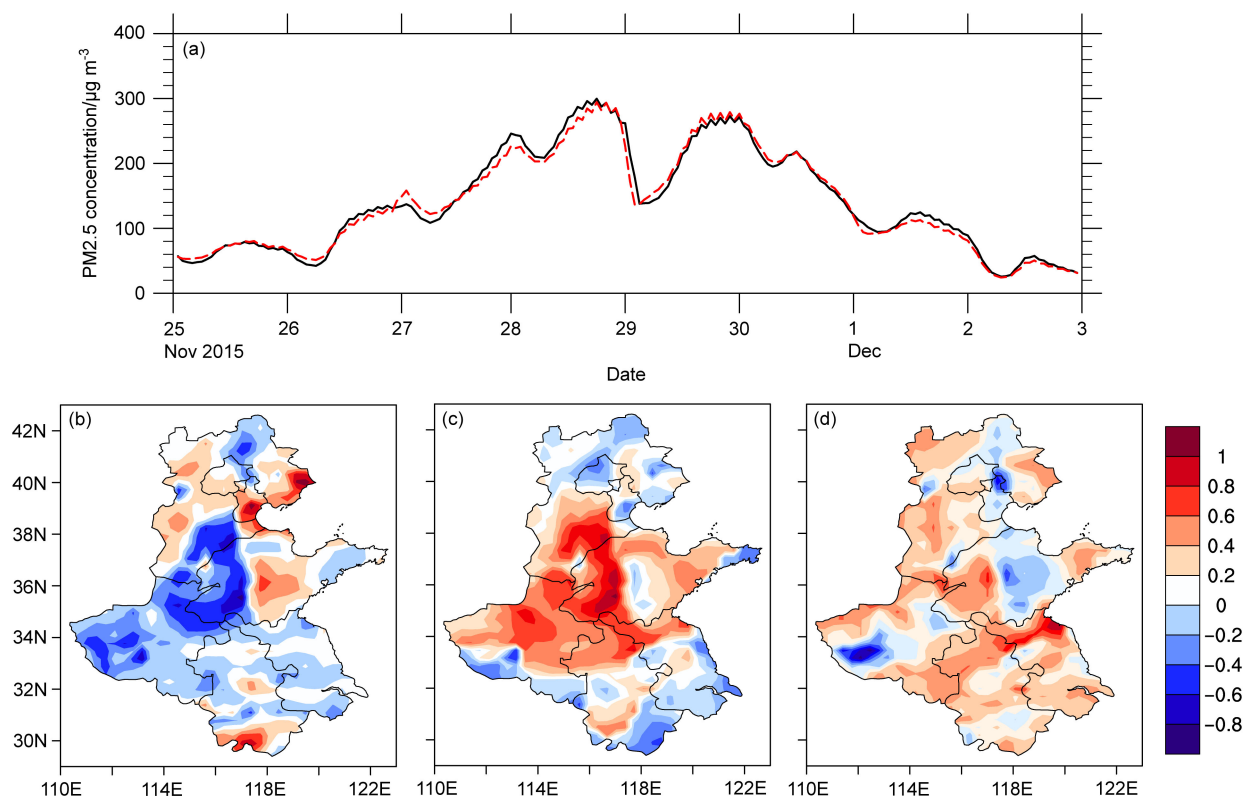


图9 (a) 研究区域平均的PM_{2.5}浓度多元线性回归结果验证(红色实线为多元线性回归曲线,黑色实线为模拟PM_{2.5}浓度曲线)及(b)动力因子、(c)热力因子和(d)化学因子在PM_{2.5}浓度上回归的偏回归系数空间分布

Fig. 9 (a) Validation of multivariate linear regression results of PM_{2.5} concentration averaged for the study area (the red solid line is a multivariate linear regression curve and the black solid line is a simulated PM_{2.5} concentration curve) and (b) dynamic factors, (c) thermal factors, and (d) chemical factor spatial distribution of partial regression coefficient regression at PM_{2.5} concentration

发挥着重要作用,其中热力作用比动力作用对此次污染事件产生的影响更为显著。

为了进一步分析热力、动力和化学转化作用对此次污染过程的相对重要性,我们计算了各项因子的相对贡献率,气象动力因子的相对贡献率为34%,热力因子的相对贡献率为52%,化学转化因子的相对贡献率为14%。进一步得出气象因子在其中起着重要作用,其中热力因子的作用尤为显著。

7 结论与讨论

本文运用WRF/Chem模式对2015年11月25日至12月2日我国北方一次大范围PM_{2.5}重污染过程进行模拟。通过与观测资料的对比表明,模式能够较好地模拟出PM_{2.5}浓度及气象因素的大小和变化趋势,能够用于此次污染事件的机理分析。11月25日存在较强的偏北风,有利于PM_{2.5}的污染扩散,当北风减弱,南风增强时,污

染物易在地面堆积,造成污染加剧。11月26日,由850 hPa环流场可知,在高空引导气流的有利形势下,我国中东部地区形成高压,高压前的下沉气流,抑制对流发展,不利于污染物在垂直方向扩散。从热力因子可以看出,部分地区出现降雪现象,积雪融化时,地面温度降低,尤其是11月27日至11月30日形成逆温天气,大气边界层降低,不利于污染物扩散,导致污染物积聚在近地面层。通过对PM_{2.5}组成成分的分析发现,硝酸盐气溶胶对此次PM_{2.5}重污染形成起重要贡献作用。二次有机气溶胶和硫酸盐在此次污染过程中比较稳定,未发生太大变化,各自约占总PM_{2.5}浓度的五分之一。进一步计算动力、热力和化学转化因子对PM_{2.5}浓度的相对贡献率发现,此次重污染事件中,热力因子占主要地位(相对贡献率为52%),其次为动力因子(相对贡献率为34%),化学转化因子在污染过程中占比重较小(相对贡献率为14%)。

值得说明的是,虽然 WRF/Chem 模拟的 PM_{2.5} 浓度值和观测 PM_{2.5} 浓度值的相关达到 0.8,较好地模拟出了 PM_{2.5} 浓度的时空演变,但模式没能有效捕捉 11 月 30 日的污染过程,其原因是模式低估了硫酸盐和硝酸盐的浓度。此外,受所采用的多元线性回归方法本身的限制,本研究难于精确和动态解析影响 PM_{2.5} 浓度的各因子的贡献,尤其是由于各要素间非线性响应关系的存在,甚至可能给研究结果带来较大的不确定性。因此,今后此类研究中有必要利用具有污染过程在线解析功能的模式工具(如基于 CAMx 或 CMAQ 模式的 IPR),或基于 WRF/Chem 模式开发类似的解析工具,对各影响因子进行更为精确地解析。再者,本文仅针对 2015 年 11 月北方一次 PM_{2.5} 重污染个例进行了分析,今后需要针对更多历史污染事件进行研究以探讨三个影响因子的历史演变特征,从而更全面把握研究区域的 PM_{2.5} 重污染形成机理,为大气污染防治攻坚提供科技支撑。

致谢 气象数据源自中国气象数据网 (<http://data.cma.cn/> [2019-01-01]), 空气质量监测数据来源于青悦开放环境数据中心 (<http://data.epmap.org> [2019-01-09]); 模式使用了清华大学 MEIC 模型提供的排放数据 (<http://www.meicmodel.org> [2019-01-09])。在此对数据提供方一并表示感谢!

参考文献 (References)

- 安俊岭, 李健, 张伟, 等. 2012. 京津冀污染物跨界输送通量模拟 [J]. 环境科学学报, 32(11): 2684–2692. An Junling, Li Jian, Zhang Wei, et al. 2012. Simulation of transboundary transport fluxes of air pollutants among Beijing, Tianjin, and Hebei Province of China [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 32(11): 2684–2692.
- Cao C, Jiang W J, Wang B Y, et al. 2014. Inhalable microorganisms in Beijing's PM_{2.5} and PM₁₀ pollutants during a severe smog event [J]. *Environmental Science & Technology*, 48(3): 1499–1507. doi:10.1021/es4048472
- 常炉予, 许建明, 周广强, 等. 2016. 上海典型持续性 PM_{2.5} 重度污染的数值模拟 [J]. 环境科学, 37(3): 825–833. Chang Luyi, Xu Jianming, Zhou Guangqiang, et al. 2016. A numerical study of typical heavy air pollution episode of PM_{2.5} in Shanghai [J]. *Environmental Science*, 37(3): 825–833. doi:10.13227/j.hjcx.2016.03.006
- Cheng W L, Chen Y S, Zhang J F, et al. 2007. Comparison of the revised air quality index with the PSI and AQI indices [J]. *Science of the Total Environment*, 382(2-3): 191–198. doi:10.1016/j.scitotenv.2007.04.036
- Chou M D, Suarez M J. 1994. An efficient thermal infrared radiation parameterization for use in general circulation models[R]. Greenbelt: NASA/Goddard Space Flight Center.
- 狄一安, 杨勇杰, 刘俊卿, 等. 2014. 青藏日喀则大气颗粒物水溶性无机离子粒径分布特征初探 [J]. 环境化学, 33(2): 355–356. Di Yian, Yang Yongjie, Liu Junqing, et al. 2014. Preliminary study on particle size distribution characteristics of water-soluble inorganic ions in atmospheric particulates in Xigaze, Qinghai-Tibet [J]. *Environmental Chemistry*, 33(2): 355–356. doi:10.7524/j.issn.0254-6108.2014.02.026
- 高庆先, 刘俊蓉, 李文涛, 等. 2015. 中美空气质量指数 (AQI) 对比研究及启示 [J]. 环境科学, 36(4): 1141–1147. Gao Qingxian, Liu Junrong, Li Wentao, et al. 2015. Comparative analysis and inspiration of air quality index between china and America [J]. *Environmental Science*, 36(4): 1141–1147. doi:10.13227/j.hjcx.2015.04.001
- Grell G A, Dévényi D. 2002. A generalized approach to parameterizing convection combining ensemble and data assimilation techniques [J]. *Geophys. Res. Lett.*, 29(14): 1693. doi:10.1029/2002GL015311
- 黄丹丹. 2018. 上海城区二次污染物形成过程及影响因素研究 [J]. 环境科学学报, 38(6): 2262–2269. Huang Dandan. 2018. Formation of secondary species in submicron particulate matter (PM₁) in downtown Shanghai-episodic analysis [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 38(6): 2262–2269. doi:10.13671/j.hjkxxb.2018.0121
- Huang F F, Li X, Wang C, et al. 2015. PM_{2.5} spatiotemporal variations and the relationship with meteorological factors during 2013–2014 in Beijing, China [J]. *PLoS One*, 10(11): e0141642. doi:10.1371/journal.pone.0141642
- 黄鹂鸣, 王格慧, 王荟, 等. 2002. 南京市空气中颗粒物 PM₁₀、PM_{2.5} 污染水平 [J]. 中国环境科学, 22(4): 334–337. Huang Liming, Wang Gehui, Wang Hui, et al. 2002. Pollution level of the airborne particulate matter (PM₁₀, PM_{2.5}) in Nanjing city [J]. *China Environmental Science*, 22(4): 334–337. doi:10.3321/j.issn:1000-6923.2002.04.012
- 黄晓锋, 王慧, 宫照恒, 等. 2014. 深圳大气 PM_{2.5} 来源解析与二次有机气溶胶估算 [J]. 中国科学: 地球科学, 57(6): 1352–1362. Huang Xiaofeng, Yun Hui, Gong Zhaoheng, et al. 2014. Source apportionment and secondary organic aerosol estimation of PM_{2.5} in an urban atmosphere in China [J]. *Science China Earth Sciences*, 57(6): 1352–1362. doi:10.1007/s11430-013-4686-2
- 黄晓波, 殷晓鸿, 黄志炯, 等. 2016. 不同模式对珠三角地区细颗粒物污染模拟效果对比评估 [J]. 环境科学学报, 36(10): 3505–3514. Huang Xiaobo, Yin Xiaohong, Huang Zhijiong, et al. 2016. Evaluation and intercomparison of PM_{2.5} simulations by air quality models over pearl river delta [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 36(10): 3505–3514. doi:10.13671/j.hjkxxb.2016.0032
- 焦周光, 李敬云, 温占波, 等. 2016. 北京城区夏季 PM_{2.5} 及不同组分化学和生物成分分析 [J]. 环境工程学报, 10(9): 5009–5015. Jiao Zhouguang, Li Jingyun, Wen Zhanbo, et al. 2016. Chemical and biological components analysis of PM_{2.5} and its different fractions in summer atmosphere in Beijing urban areas, China [J]. *Chinese Journal of Environmental Engineering*, 10(9): 5009–5015. doi:10.12030/j.cjee.201601018

- 鞠园华, 杨夏捷, 靳全锋, 等. 2018. 不同燃烧状态下农作物秸秆 PM2.5 排放因子及主要成分分析 [J]. *环境科学学报*, 38(1): 92–100. Ju Yuanhua, Yang Xiajie, Jin Quanfeng, et al. 2018. Emission factor and main components of PM2.5 emitted from crop straw under different burning status [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 38(1): 92–100. doi:10.13671/j.hjkxb.2017.0296
- Kang C M, Lee H S, Kang B W, et al. 2004. Chemical characteristics of acidic gas pollutants and PM2.5 species during hazy episodes in Seoul, South Korea [J]. *Atmos. Environ.*, 38(28): 4749–4760. doi:10.1016/j.atmosenv.2004.05.007
- Lin Y L, Farley R D, Orville H D. 1983. Parameterization of the snow field in a cloud model [J]. *J. Clim. Appl. Meteorol.*, 22: 1065–1092. doi:10.1175/1520-0450(1983)022<1065:BPOTSF>2.0.CO;2
- 李建成, 刘炳光. 2018. 大气中二次无机气溶胶的形成反应和清除方法 [J]. *无机盐工业*, 50(10): 1–6. Li Jiansheng, Liu Bingguang. 2018. Formation reaction and removal methods of inorganic secondary aerosols in atmosphere [J]. *Inorganic Chemicals Industry*, 50(10): 1–6.
- Li H M, Wang Q G, Yang M, et al. 2016. Chemical characterization and source apportionment of PM2.5 aerosols in a megacity of Southeast China [J]. *Atmospheric Research*, 181: 288–299. doi:10.1016/j.atmosres.07.005
- Li M, Zhang Q, Kurokawa J I, et al. 2017. MIX: A mosaic Asian anthropogenic emission inventory under the international collaboration framework of the MICS-Asia and HTAP [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17(2): 935–963. doi:10.5194/acp-17-935-2017
- 林俊, 刘卫, 李燕, 等. 2009. 上海市郊区大气细颗粒和超细颗粒物中元素粒径分布研究 [J]. *环境科学*, 30(4): 982–987. Lin Jun, Liu Wei, Li Yan, et al. 2009. Study on the particle size distribution of elements in fine and ultrafine particles in the atmosphere of Shanghai suburbs [J]. *Environmental Science*, 30(4): 982–987. doi:10.3321/j.issn:0250-3301.2009.04.007
- Liu B S, Song N, Dai Q L, et al. 2016. Chemical composition and source apportionment of ambient PM2.5 during the non-heating period in Taian, China [J]. *Atmospheric Research*, 170: 23–33. doi:10.1016/j.atmosres.2015.11.002
- 刘建, 范绍佳, 吴兑, 等. 2015. 珠江三角洲典型灰霾过程的边界层特征 [J]. *中国环境科学*, 35(6): 1664–1674. Liu Jian, Fan Shaojia, Wu Dui, et al. 2015. Boundary layer characteristics of typical haze process in the Pearl River Delta region [J]. *China Environmental Science*, 35(6): 1664–1674. doi:10.3969/j.issn.1000-6923.2015.06.008
- Liu Q, Sheng L F, Cao Z Q, et al. 2017. Dual effects of the winter monsoon on haze–fog variations in Eastern China [J]. *J. Geophys. Res.*, 122(11): 5857–5869. doi:10.1002/2016JD026296
- Lu F, Xu D Q, Cheng Y B, et al. 2015. Systematic review and meta-analysis of the adverse health effects of ambient PM2.5 and PM10 pollution in the Chinese population [J]. *Environ. Res.*, 136: 196–204. doi:10.1016/j.envres.2014.06.029
- 马锋敏, 高庆先, 周锁钹, 等. 2008. 北京及周边地区一次典型大气污染过程的模拟分析 [J]. *环境科学研究*, 21(1): 30–36. Ma Fengmin, Gao Qingxian, Zhou Suoshuan, et al. 2008. The simulation and analysis of a typical pollution event around Beijing [J]. *Research of Environmental Sciences*, 21(1): 30–36. doi:10.13198/j.res.2008.01.36.mafm.007
- 孟伟, 高庆先, 张志刚, 等. 2006. 北京及周边地区大气污染数值模拟研究 [J]. *环境科学研究*, 19(5): 11–18. Meng Wei, Gao Qingxian, Zhang Zhigang, et al. 2006. The numerical study of atmospheric pollution in Beijing and its surrounding regions [J]. *Research of Environmental Sciences*, 19(5): 11–18. doi:10.13198/j.res.2006.05.13.mengw.002
- 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. doi:10.1029/97JD00237
- Noh J D. 2003. Exact scaling properties of a hierarchical network model [J]. *Phys. Rev.*, 67: 045103. doi:10.1103/PhysRevE.67.045103
- Pasch A N, MacDonald C P, Gilliam R C, et al. 2011. Meteorological characteristics associated with PM2.5 air pollution in Cleveland, Ohio, during the 2009–2010 Cleveland multiple air pollutants study [J]. *Atmos. Environ.*, 45(39): 7026–7035. doi:10.1016/j.atmosenv.2011.09.065
- 秦思达, 惠秀娟, 夏广锋, 等. 2017. 基于 Model-3/CMAQ 模式的本溪市大气细颗粒物数值模拟 [J]. *环境科学研究*, 31(1): 53–60. Qin Sida, Hui Xiujuan, Xia Guangfeng, et al. 2017. A numerical study of PM2.5 pollution in Benxi city based on Model-3/CMAQ [J]. *Research of Environmental Sciences*, 31(1): 53–60. doi:10.13198/j.issn.1001-6929.2017.03.52
- Reynolds C S, Wiseman S W, Clarke M J O. 1984. Growth- and loss-rate responses of phytoplankton to intermittent artificial mixing and their potential application to the control of planktonic algal biomass [J]. *Journal of Applied Ecology*, 21(1): 11. doi:10.2307/2403035
- 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: 28275–28293. doi:10.1029/2001JD000384
- Tiwari S, Srivastava A K, Bisht D S, et al. 2013. Diurnal and seasonal variations of black carbon and PM2.5 over New Delhi, India: Influence of meteorology [J]. *Atmospheric Research*, 125–126: 50–62. doi:10.1016/j.atmosres.2013.01.011
- 王玮, 汤大钢, 刘红杰, 等. 2000. 中国 PM2.5 污染状况和污染特征的研究 [J]. *环境科学研究*, 13(1): 1–5. Wang Wei, Tang Dagang, Liu Hongjie, et al. 2000. Research on current pollution status and pollution characteristics of PM2.5 in China [J]. *Research of Environmental Sciences*, 13(1): 1–5. doi:10.3321/j.issn:1001-6929.2000.01.001
- 王跃, 王莉莉, 赵广娜, 等. 2014. 北京冬季 PM2.5 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 Yue, Wang Lili, Zhao Guangna, et al. 2014. Analysis of different-scales circulation patterns and boundary layer structure of PM2.5 heavy pollutions in Beijing during winter [J]. *Climatic and Environmental Research*, 19(2): 173–184. doi:10.3878/j.issn.1006-9585.2014.13178

- 卫菲菲, 刘昊, 陆晓波, 等. 2017. 南京市大气细颗粒物二次组分的时空变化特征 [J]. *中国环境科学*, 37(8): 2866–2876. Wei Feifei, Liu Hao, Lu Xiaobo, et al. 2017. Temporal and spatial characteristics of secondary components of PM_{2.5} in Nanjing [J]. *China Environmental Science*, 37(8): 2866–2876. doi:10.3969/j.issn.1000-6923.2017.08.008
- 吴国平, 胡伟, 滕恩江, 等. 1999. 我国四城市空气中 PM_{2.5} 和 PM₁₀ 的污染水平 [J]. *中国环境科学*, 19(2): 133–137. Wu Guoping, Hu Wei, Teng Enjiang, et al. 1999. PM_{2.5} and PM₁₀ pollution level in the four cities in China [J]. *China Environmental Science*, 19(2): 133–137. doi:10.3321/j.issn:1000-6923.1999.02.009
- Yang F, Tan J, Zhao Q, et al. 2011. Characteristics of PM_{2.5} speciation in representative megacities and across China [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(11): 5207–5219. doi:10.5194/acp-11-5207-2011
- 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*, 20(5): 555–570. doi:10.3878/j.issn.1006-9585.2015.15018
- 杨关盈, 邓学良, 周广强, 等. 2018. 基于 WRF/Chem 模式的 PM_{2.5} 预报效果评估 [J]. *气象科技*, 46(1): 84–91. Yang Guanying, Deng Xueliang, Zhou Guangqiang, et al. 2018. Evaluation of PM_{2.5} forecast performance based on WRF-Chem model [J]. *Meteorological Science and Technology*, 46(1): 84–91. doi:10.19517/j.1671-6345.20170013
- Yarwood S J. 2005. Microtubule-associated proteins (MAPs) regulate cAMP signalling through exchange protein directly activated by cAMP (EPAC) [J]. *Biochemical Society Transactions*, 33(6): 1327–1329. doi:10.1042/BST0331327
- 殷永文, 程金平, 段玉森, 等. 2011. 某市霾污染因子 PM_{2.5} 引起居民健康危害的经济学评价 [J]. *环境与健康杂志*, 28(3): 250–252. Yin Yongwen, Cheng Jinping, Duan Yusen, et al. 2011. Economic evaluation of residents' health hazard caused by PM_{2.5} of haze pollution in a city [J]. *Journal of Environment and Health*, 28(3): 250–252. doi:10.16241/j.cnki.1001-5914.2011.03.007
- 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*, 58(13): 1178–1187. doi:10.1360/972013-150
- 张人禾, 李强, 张若楠. 2014. 2013 年 1 月中国东部持续性强雾霾天气产生的气象条件分析 [J]. *中国科学: 地球科学*, 57(1): 26–35. Zhang Renhe, Li Qiang, Zhang Ruonan. 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
- 张殷俊, 陈曦, 谢高地, 等. 2015. 中国细颗粒物 (PM_{2.5}) 污染状况和空间分布 [J]. *资源科学*, 37(7): 1339–1346. Zhang Yinjun, Chen Xi, Xie Gaodi, et al. 2015. Pollution status and spatial distribution of PM_{2.5} in China [J]. *Resources Science*, 37(7): 1339–1346.
- 赵晨曦, 王云琦, 王玉杰, 等. 2014. 北京地区冬春 PM_{2.5} 和 PM₁₀ 污染水平时空分布及其与气象条件的关系 [J]. *环境科学*, 35(2): 418–427. Zhao Chenxi, Wang Yunqi, Wang Yujie, et al. 2014. Temporal and spatial distribution of PM_{2.5} and PM₁₀ pollution status and the correlation of particulate matters and meteorological factors during winter and spring in Beijing [J]. *Environmental Science*, 35(2): 418–427. doi:10.13227/j.hjcx.2014.02.013
- 周广强, 谢英, 吴剑斌, 等. 2016. 基于 WRF-Chem 模式的华东区域 PM_{2.5} 预报及偏差原因 [J]. *中国环境科学*, 36(8): 2251–2259. Zhou Guangqiang, Xie Ying, Wu Jianbin, et al. 2016. WRF-Chem based PM_{2.5} forecast and bias analysis over the East China region [J]. *China Environmental Science*, 36(8): 2251–2259. doi:10.3969/j.issn.1000-6923.2016.08.002