

刘晓咏, 王自发, 王大玮, 等. 2019. 京津冀典型工业城市沙河市大气污染特征及来源分析 [J]. 大气科学, 43(4): 861–874. Liu Xiaoyong, Wang Zifa, Wang Dawei, et al. 2019. Characteristics and source identification of air pollution in Shahe, a typical industrial city in Beijing–Tianjin–Hebei region [J]. Chinese Journal of Atmospheric Sciences (in Chinese), 43(4): 861–874. doi:10.3878/j.issn.1006-9895.1810.18158

京津冀典型工业城市沙河市大气污染特征及来源分析

刘晓咏^{1,2,3} 王自发^{1,2,3} 王大玮² 向伟玲² 潘小乐² 刘航^{2,3}
田雨^{2,3} 张瑜⁴ 王刘铭^{2,3} 李杰² 苏方成⁵ 贺泓¹

1 中国科学院城市环境研究所区域大气环境研究卓越创新中心, 厦门 361021

2 中国科学院大气物理研究所大气边界层物理和大气化学国家重点实验室, 北京 100029

3 中国科学院大学, 北京 100049

4 成都信息工程大学, 成都 610103

5 郑州大学, 郑州 450001

摘要 近些年京津冀地区秋、冬季大气重污染事件频发, 工业生产与居民燃煤是大气灰霾污染的重要原因。河北省沙河市是京津冀地区以玻璃制造和加工为主的典型工业城市, 本研究选取该城市为研究对象, 主要利用 2017 年 1 月至 12 月国控站点的大气环境监测和气象数据, 采用扩散模型、潜在源分析等手段, 分析了沙河市主要污染物的时空分布特征和污染来源。主要结论有: (1) 沙河市首要污染物具有明显季节特征, 春季、夏季、秋冬季分别以 PM₁₀、O₃、PM_{2.5} 污染为主, 季节贡献率分别为 43.3%、72.3%、61.5%。(2) 受城市大气边界层和排放的共同影响, PM₁₀、PM_{2.5}、SO₂、NO₂ 和 CO 浓度均有剧烈的季节一日变化特征。(3) 冬季东北风时 PM_{2.5}、NO₂、SO₂ 均展现出高浓度和高相关性特征, 表明站点可能受东北方向玻璃企业排放影响。同时, 站点可能也受城中村散煤燃烧影响。(4) 沙河市冬季 PM_{2.5} 浓度为 143 μg m⁻³。冬季的一次重污染中硫氧化率 SOR、氮氧化率 NOR 的最高值分别达 0.67、0.39, 气态污染物的二次转化剧烈, 高湿度利于二次粒子的生成。重污染中 C(NO₃⁻)/C(SO₄²⁻) 均值为 1.89, 推测沙河市 NO₂ 主要来自大型运输车辆和企业的共同排放。(5) 本地源是沙河市 PM_{2.5} 的主要潜在源区, 周边几个重工业城市也有一定贡献。因此本研究建议沙河市 PM_{2.5} 的治理除需加强本地污染源的削减和控制外, 区域联防联控也十分重要。

关键词 工业城市 大气污染 时空特征 扩散模型

文章编号 1006-9895(2019)04-0861-14

中图分类号 P402

文献标识码 A

doi:10.3878/j.issn.1006-9895.1810.18158

Characteristics and Source Identification of Air Pollution in Shahe, a Typical Industrial City in Beijing–Tianjin–Hebei Region

LIU Xiaoyong^{1,2,3}, WANG Zifa^{1,2,3}, WANG Dawei², XIANG Weiling², PAN Xiaole², LIU Hang^{2,3},
TIAN Yu^{2,3}, ZHANG Yu⁴, WANG Liuming^{2,3}, LI Jie², SU Fangcheng⁵, and HE Hong¹

1 Center for Excellence in Regional Atmospheric Environment, Institute of Urban Environment, Chinese Academy of Sciences, Xiamen 361021

2 State Key Laboratory of Atmospheric Boundary Layer Physics and Atmospheric Chemistry, Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029

收稿日期 2018-05-03; 网络预出版日期 2019-01-22

作者简介 刘晓咏, 男, 1992 年出生, 博士, 主要从事区域大气环境研究。E-mail: xyliu@iue.ac.cn

通讯作者 王自发, E-mail: zifawang@mail.iap.ac.cn

资助项目 国家自然科学基金项目 41675128

Funded by National Natural Science Foundation of China (Grant 41675128)

3 University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049

4 Chengdu University of Information Technology, Chengdu 610103

5 Zhengzhou University, Zhengzhou 450001

Abstract In the autumn and winter, severe air pollution events occur frequently in Beijing–Tianjin–Hebei region. As is known, industrial emissions and residential coal burning are the major reasons for atmospheric pollution. As a typical industrial city focusing on glass manufacturing and processing, Shahe city is selected as the research object. An air diffusion model and potential source analysis are employed to study spatiotemporal characteristics and sources of major pollutants based on the atmospheric monitoring data in Shahe city from January to December, 2017. Major results are as follows. (1) There are obvious seasonal characteristics of primary pollutants in Shahe. The primary pollutant is PM_{10} in the spring, O_3 in the winter, and $PM_{2.5}$ in the autumn and winter. Their seasonal contribution rates are 43.3%, 72.3% and 61.5% respectively. (2) Affected by changes in urban atmospheric boundary layer and pollution emissions, the concentrations of PM_{10} , $PM_{2.5}$, SO_2 , NO_2 and CO have strong seasonal–diurnal changes. (3) When northeasterly winds prevail in the winter, correlation coefficients between $PM_{2.5}$, NO_2 , SO_2 and their concentrations are high, which may be attributed to emissions from glass factories to the northeast of the city. Meanwhile, the observational site may also be affected by coal burning in surrounding villages. (4) The mean concentration of $PM_{2.5}$ in Shahe is $143 \mu g m^{-3}$ in the winter. The analysis of a severe pollution case shows that the max values of SOR (sulfur oxidation ratio), NOR (nitrogen oxidation ratio) are 0.67 and 0.39, respectively. This indicates that the conversion from primary gaseous pollutants to secondary pollutants is severe. It also proves that high humidity does favor the formation of air-borne particulates. The mean value of $C(NO_3^-)/C(SO_4^{2-})$ is 1.89. It is concluded that NO_2 in Shahe mainly comes from emissions of heavy transport vehicles and factories. (5) Local area is a strong potential source for Shahe's $PM_{2.5}$. The surrounding industrial cities also make some contributions. Not only local emission reduction, but also regional management regimes are needed to control the $PM_{2.5}$ pollution.

Keywords Industrial city, Air pollution, Spatiotemporal characteristics, Diffusion model

1 引言

京津冀地区位于环渤海区域的西部、华北平原北端，背靠太行山山脉和燕山山脉，是我国的“首都经济圈”。该地区作为全国主要的重化工业基地，产业结构重型化严重，年燃煤消耗量近4亿吨。污染前体物的大量排放，造成了区域内严重的复合型大气污染，已严重阻碍了我国的可持续发展战略和居民的身体健康。2013年1月，我国中东部地区相继出现多次大范围雾霾天气，席卷了中国中东部、东北及西南共计10个省、市、区，受害人口高达8亿以上，其中北京 $PM_{2.5}$ （直径不超过2.5微米的颗粒；Particulate Matter，简称PM）小时浓度最高超过 $600 \mu g m^{-3}$ （贺泓等，2013；王自发等，2014）。此事件引起了国内外的广泛关注，专家学者就污染成因及控制对策进行了大讨论。同年国家从顶层设计，在战略高度上启动了大气污染防治行动计划（2013~2017年），向灰霾和 $PM_{2.5}$ 污染宣战。

贺泓等（2013）指出我国频繁严重灰霾事件的

根本原因在于大气中的 $PM_{2.5}$ 或 PM_{10} 及其前体污染物，如 SO_2 、 NO_2 、 NH_3 、VOC（volatile organic compounds）等严重超过了由当地气候、地形等条件形成的环境容量，而工业是一次颗粒物和二次颗粒物前体物的重要来源。京津冀地区聚集着大量工业企业，污染排放量大。同时由于独特的地理环境条件（缪育聪等，2015），此区域易形成相对湿度大、连续静稳、逆温层低、气压梯度小的天气形势。而灰霾与边界层气象要素之间存在一种正反馈机制（王哲等，2014），这些天气形势为区域颗粒物污染创造了有利条件（杨欣等，2014；高愈霄等，2016；郝建奇等，2017；侯梦玲等，2017）。有研究表明京津冀地区的 $PM_{2.5}$ 污染其区域内输送占主要贡献，区域外的跨城市群输送贡献占比20%~35%（王自发等，2014）。京津冀地区各个城市的首要污染源略有不同，但均以二次源占比最大，工业生产、机动车、燃煤、扬尘等都是主要污染源（李云燕和葛畅，2017）。

河北省煤炭、钢铁、石化、建材企业众多，交叉聚集于石家庄、邢台、邯郸等城市，导致排放情

况复杂、排放源清单尚不明晰，为揭示京津冀区域污染成因制造了障碍。沙河市隶属河北省邢台市，距北京约 400 km，是全国玻璃生产销售的重要集散地，平板玻璃年产量约占全国总量的 20%、年产值 320 亿元，有“中国玻璃城”之称。

2017 年国家施行了“大气重污染成因与治理攻关”项目，经一系列努力取得了显著成效，京津冀地区空气质量有很大改善，北京 $PM_{2.5}$ 年平均浓度更是低至 $58 \mu g m^{-3}$ ，完成了国家“大气十条”既定目标。而沙河市 2017 年 $PM_{2.5}$ 年平均浓度仍高达 $91 \mu g m^{-3}$ ，在邢台区县空气质量排名靠后，空气质量不容乐观。目前关于京津冀地区大气污染特征及成因的研究，专家学者大都着眼于北京、石家庄、天津、唐山等中大型城市，对沙河这样的小城市关注尚少，相关的研究鲜有报道。而这些小城市聚集着大量规模下工业企业，是重要的污染排放源，亦是大气污染的重灾区。因此亟需在更高空间分辨率——区县级城市开展相关研究，明晰其大气污染特征及成因，对区域联防联控有重要意义，为国家打赢蓝天保卫战提供支撑。

2 数据来源与方法

2.1 数据来源

$PM_{2.5}$ 、 PM_{10} 、 O_3 、 NO_2 、 SO_2 和 CO 质量浓度及气象观测资料均来源于河北省环境监测站（沙河宣传文化中心站）2017 年 1 月 1 日至 12 月 31 日的连续观测资料（小时值）。 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 监测仪基于 β 射线法， SO_2 和 O_3 基于紫外吸收法， NO_2 基于化学发光法， CO 基于气体相关滤波法。

2017 年 12 月 13~16 日的 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 质量浓度由气溶胶化学形态分析仪（ACSA-12，由 Kimoto 电气有限公司生产）观测所得，该仪器安装在沙河市司法局楼顶（距离宣传文化中心站 1.9 km）。 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 质量浓度的测定分别基于紫外吸收光度法和 $BaSO_4$ 浊度测定法（Kimoto, et al., 2013; Pan et al., 2016, 2018），仪器进气流速 $16.7 L min^{-1}$ 、分辨率 1 h，每晚 23:00（北京时，下同）仪器自行校准而暂停测定。

沙河宣传文化中心站位于河北省沙河市梅花公园（简称 MHGY）内（ $36.87^\circ N$ ， $114.51^\circ E$ ），地处市区，距邯郸市 27 km、邢台市 22 km。站点东部 2.3 km 和 4 km 处为东环路和京港澳高速公路，南边为居民区，东北方向有大量玻璃厂。观测站建在二层楼顶，进气口距楼顶 3 m。沙河市及监测站点位置见图 1。

2.2 分析方法

2.2.1 Flexpart 模式介绍

Flexpart（Flexible Particle dispersion mode）模式是一种针对污染源应急的粒子扩散模式，由挪威大气研究所开发（陈斌等，2010；Stohl et al., 2011；Pan et al., 2014；曹治强和吕达仁，2015）。该模式通过计算点、线、面或体积源释放的大量粒子的轨迹，来描述示踪物在大气中远距离、中尺度的传输、扩散、干湿沉降和辐射衰减等过程（Seibert and Frank, 2004；吴保见等，2017）。Flexpart 前向模拟可获得污染物传输、扩散轨迹，后向模拟可获得对固定点有潜在影响的排放源区分布或滞留时间。

Flexpart 模式的核心内容是研究大气污染的源

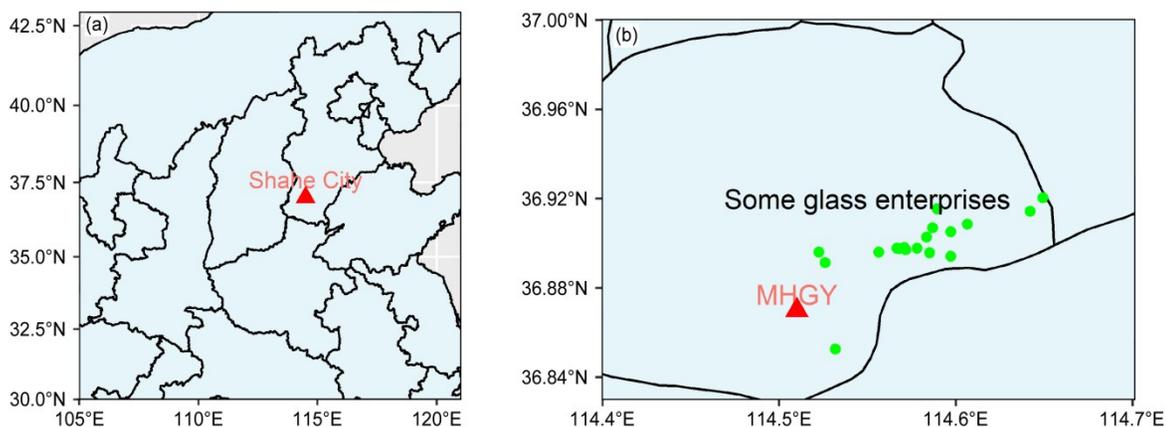


图 1 (a) 沙河市和 (b) 梅花公园监测站点 (MNGY) 所在位置。(b) 中绿色实心点表示玻璃厂的位置
Fig.1 Locations for (a) Shahe City and (b) the MNGY monitoring site. Green solid points in (b) represent glass enterprises

一受体关系, 污染排放物为源、观测站为受体, 通过研究污染物水平输送、扩散、对流、干湿沉降、辐射衰减和一阶化学反应等过程, 可以得到随时间序列变化的格点污染浓度 (正向模拟) 或格点驻留时间 (安兴琴等, 2014)。通过源一受体关系转换, 格点驻留时间 τ_i 的计算公式如下:

$$\tau_i = \frac{T}{NJ} \sum_{n=1}^N \sum_{j=1}^J f_{ijn}, \quad (1)$$

其中, T 为时间分辨率 (单位: s); N 为 T 时间内采样的个数; J 为释放的粒子总个数; f_{ijn} 为是一个函数, 它决定了对于指定格点有“贡献”的粒子的多少。

本研究选取 2017 年 12 月 15 日 09:00 为起始时间, 以梅花公园为起始地点, 释放 10000 个粒子, 计算粒子 48 h 的后向足印和驻留时间。气象资料来自 NCEP (美国环境预报中心) 提供的全球资料同化系统 GDAS (Global Data Assimilation System)。

2.2.2 潜在源贡献因子分析法 (PSCF)

PSCF (Potential Source Contribution Function) 算法是一种基于条件概率函数发展而来的一种判断污染源可能方位的方法 (Begum et al., 2005; 王爱平等, 2014; 朱书慧等, 2016), 其定义为经过某一区域的气团到达观测点时对应的某要素值超过设定阈值的条件概率。将研究区域划分为一定分辨率的若干个网格 (i, j) , 对研究的要素设定一个阈值, 当轨迹所对应的要素值高于这个阈值时, 认为该轨迹是污染轨迹, 其经过网格 (i, j) 的污染轨迹端点数为 m_{ij} , 而落在网格 (i, j) 内的所有轨迹端点数为 n_{ij} , PSCF 计算公式为

$$\text{PSCF}_{ij} = \frac{m_{ij}}{n_{ij}}. \quad (2)$$

PSCF 的误差会随着网格与采样点的距离增加而增加 (王爱平等, 2014), 当 n_{ij} 较小时, 会有很大的不确定性。为了降低这些特殊网格对计算结果的影响, 引入权重系数 W_{ij} 来降低 PSCF 的不确定性 (Hopke et al., 1995; Xu and Akhtar, 2010), 记为 WPSCF (Weighted Potential Source Contribution Function), 其计算公式为

$$\text{WPSCF}_{ij} = \frac{m_{ij}}{n_{ij}} W_{ij}, \quad (3)$$

$$W_{ij} = \begin{cases} 1.00, & 3n_{\text{ave}} < n_{ij} \\ 0.70, & 1.5n_{\text{ave}} < n_{ij} \leq 3n_{\text{ave}} \\ 0.4, & n_{\text{ave}} < n_{ij} \leq 1.5n_{\text{ave}} \\ 0.17, & n_{ij} \leq n_{\text{ave}} \end{cases} \quad (4)$$

其中, n_{ave} 为每个网格的平均轨迹端点数。

2.2.3 浓度权重轨迹分析 (CWT)

PSCF 算法反映的是网格对受点污染程度的贡献大小, 不能区分相同 PSCF 值的网格对观测点污染程度贡献的大小, 即网格内轨迹的要素值高出设定阈值的程度范围。而 CWT (Concentration Weighted Trajectory) 分析法可以通过计算轨迹的权重浓度定量给出每个网格的平均权重浓度 (Hsu et al., 2003; 朱书慧等, 2016), 反映不同网格区域对研究区域的污染程度贡献。同时也引入权重系数 W_{ij} 来降低 CWT 的不确定性, 记为 WCWT (Weighted Concentration Weighted Trajectory), 计算公式为

$$\text{WCWT}_{ij} = \frac{\sum_{l=1}^M C_l \cdot \tau_{ijl}}{\sum_{l=1}^M \tau_{ijl}} \cdot W_{ij}, \quad (4)$$

其中, WCWT_{ij} 为网格 (i, j) 的平均权重浓度, l 是轨迹, M 为网格 (i, j) 内的轨迹数, C_l 为轨迹 l 经过网格 (i, j) 时对应的受点污染物质量浓度, τ_{ijl} 为轨迹 l 在网格 (i, j) 所停留的时间。权重函数 W_{ij} 与 PSCF 中的相同。

3 结果与讨论

3.1 污染物时间变化特征

3.1.1 污染物月变化特征

沙河市 2017 年六项主要污染物质量浓度 (日均值) 统计见图 2。2017 年沙河市有效监测天数 364 天, 未达标 (空气质量指数 ≥ 101) 天数 246 天, 占比 67.6%。沙河市秋、冬季以 $\text{PM}_{2.5}$ 污染为主, 占全年以 $\text{PM}_{2.5}$ 为首要污染物的 61.5%; 其夏季以 O_3 污染为主, 占比 72.3%; 春季以 PM_{10} 污染为主, 占比 43.3%。

$\text{PM}_{2.5}$ 的变化呈宽口“U”型, 高值出现于 1 月、2 月、11 月和 12 月, 3~10 月中值浓度变幅很小。沙河市是北方典型的以燃煤为主的工业城市, 秋冬季是燃烧消耗的高峰期, 使得秋冬季 $\text{PM}_{2.5}$ 的排放量远超过春夏季。并且沙河市冬季静风天 (风速小于 0.2 m s^{-1}) 比例高达 26.9%、平均风速 0.73 m s^{-1} , 易形成静稳天气, 不利于污染物的稀释扩

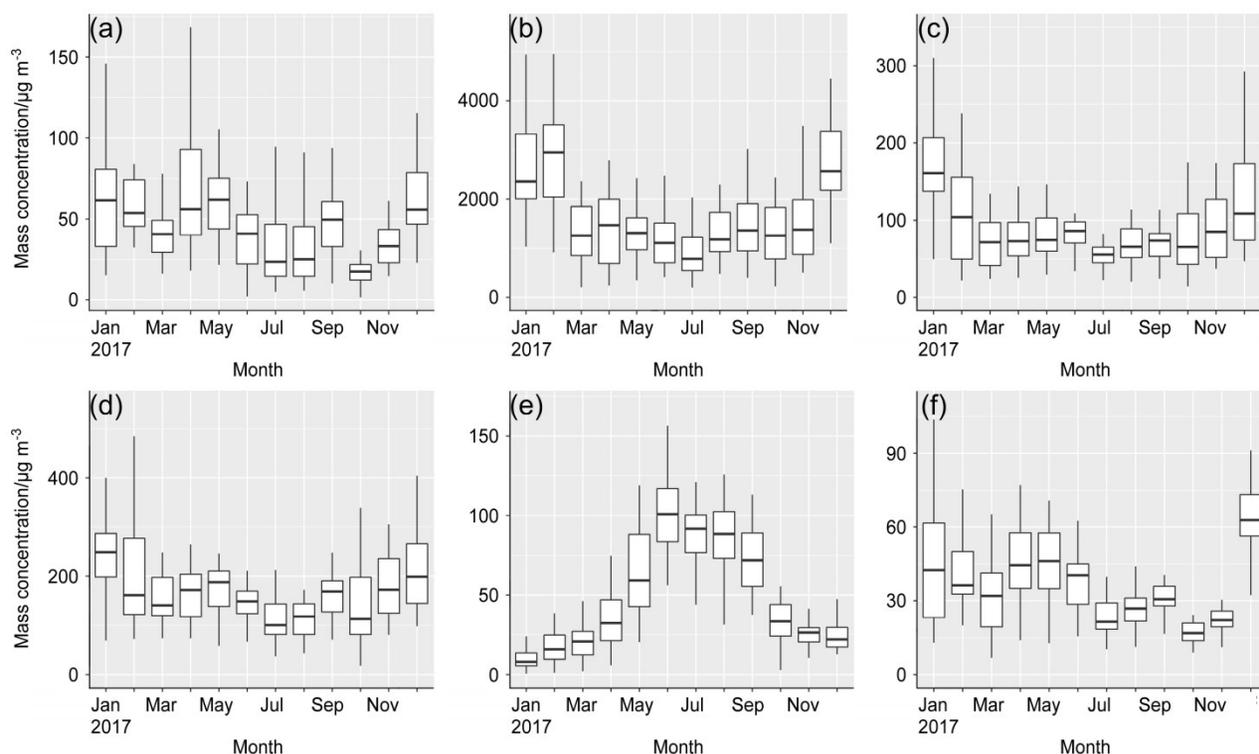


图2 2017年沙河市 (a) SO₂、(b) CO、(c) PM_{2.5}、(d) PM₁₀、(e) O₃和 (f) NO₂污染物质量浓度的月变化
Fig. 2 Monthly variations of mass concentrations in Shahe City in 2017 for (a) SO₂, (b) CO, (c) PM_{2.5}, (d) PM₁₀, (e) O₃, and (f) NO₂

散，易造成PM_{2.5}的累积。另外沙河市冬季雨雪较少，清除能力有限。其次，沙河市山地群峰耸立、沟谷纵横，自西向东依次为山地、丘陵、平原，宣传文化中心所在的市境东南隅为境内最低处，气流裹挟细颗粒物汇聚于此，微弱的东南风无法将之吹散。在气象、地形、排放等多种因素耦合下，沙河市冬季PM_{2.5}浓度高达143 µg m⁻³。

NO₂的年均浓度为36.8 µg m⁻³，12月份的64 µg m⁻³为全年最高值。SO₂的年均浓度为47.6 µg m⁻³，4月份的72.5 µg m⁻³为最高值。NO₂和SO₂的月均浓度最低值出现于10月份。

CO的月变化呈“U”型，春、夏、秋、冬季浓度分别为1.36、1.13、1.41、2.85 mg m⁻³，高于北京的1.06、0.87、1.34、2.17 mg m⁻³（王占山等，2018），冬季CO的高浓度主要受采暖季燃煤排放影响（Zhang et al., 2012）；O₃变化呈倒“V”型，从1月始浓度逐渐升高，在6月达到峰值，冬季达到谷值，这和我国其他北方城市类似（潘本锋等，2016；于世杰等，2017）。在夏季，O₃是沙河市主要污染物之一。

3.1.2 污染物日变化特征

沙河市2017年主要污染物日变化特征见图3。

PM_{2.5}和PM₁₀日变化趋势较为一致，受早高峰机动车和餐饮源排放影响，于09:00出现浓度峰值。随着白天大气边界层高度不断增加，PM_{2.5}、PM₁₀浓度逐渐降低，在16:00前后达到谷值。16:00后，混合层高度开始下降，颗粒物浓度随之升高。通常受晚间交通源和餐饮源的影响，在20:00前后PM₁₀、PM_{2.5}会出现较明显的峰值（张子曰等，2016；许波等，2017）。沙河市夏季略微表现出了此特征，而春冬季时PM₁₀、PM_{2.5}浓度在16:00~23:00持续大幅升高，表明存在固定排放源。四季的NO₂日变化特征差异较大，春夏季呈单峰型、秋冬季呈双峰型。在春、秋和冬季的07:00~09:00，NO₂有小幅增高，可能是早高峰周边公路机动车流量增加所致。而夏季日出早，07:00~09:00时日光已较强烈，大气边界层抬升快，抵消了早高峰排放，因此NO₂浓度持续降低。随后太阳辐射增强，化学反应加剧、部分NO₂被消耗（王婷等，2014），大气不稳定性增加、边界层抬升（吕立慧等，2017）。多种因素综合作用下，NO₂在14:00~16:00达到谷值。秋冬季的19:00~20:00，NO₂出现第二个峰值，可能主要受晚间交通和餐饮源影响。春夏季太阳辐射比秋冬季强，导致大气稳定性差、污染物水平输

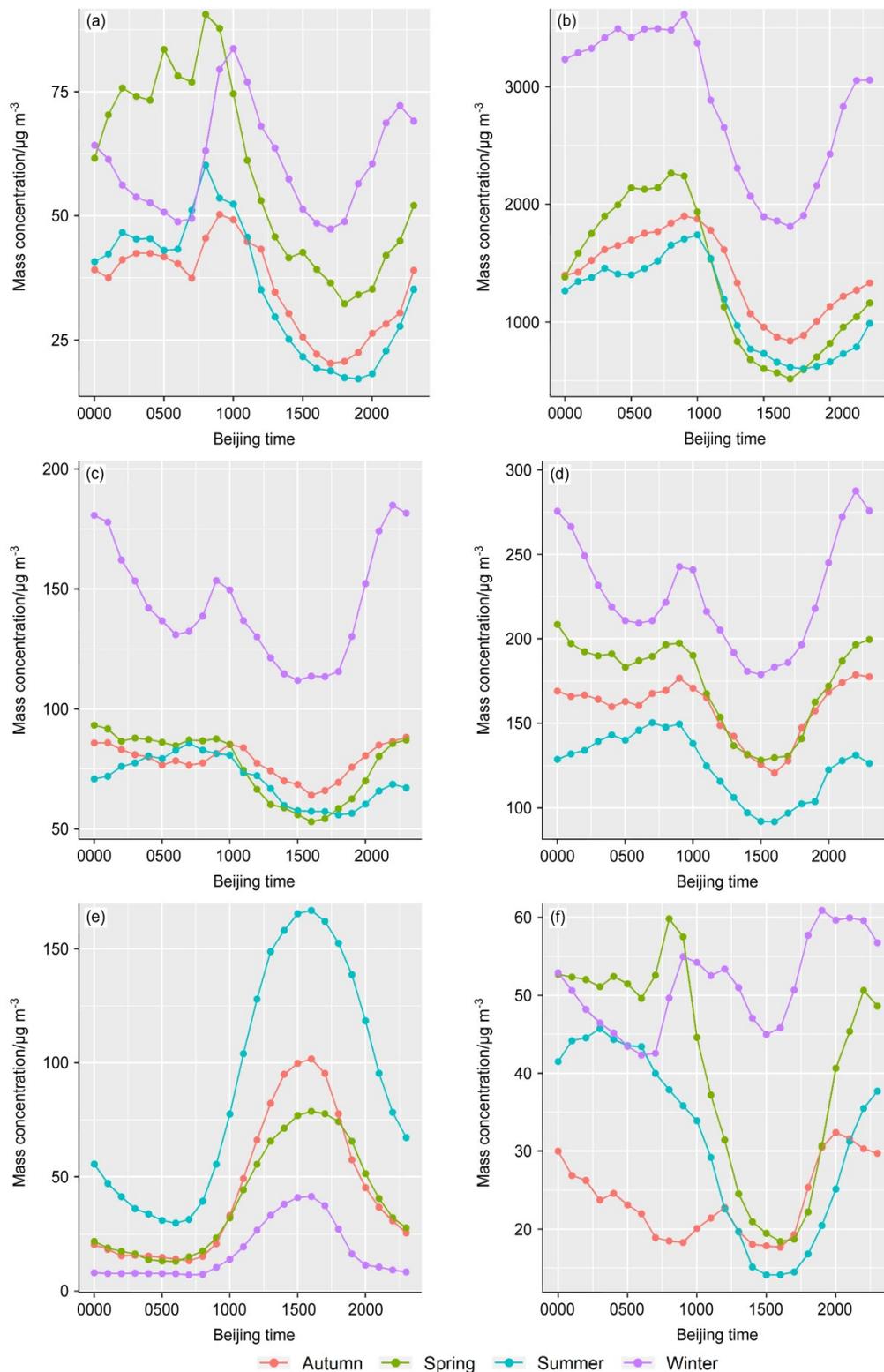


图3 2017年沙河市 (a) SO_2 、(b) CO 、(c) $\text{PM}_{2.5}$ 、(d) PM_{10} 、(e) O_3 和 (f) NO_2 不同季节质量浓度的日变化

Fig. 3 Diurnal variations of mass concentrations in different seasons in 2017 for (a) SO_2 , (b) CO , (c) $\text{PM}_{2.5}$, (d) PM_{10} , (e) O_3 , and (f) NO_2 in Shahe City

送和垂直扩散能力强, 因此春夏季 NO_2 日变化幅度比秋冬季大。

SO_2 在08:00~10:00出现峰值, 推测沙河市的

SO_2 主要来自企业的高架排放, 夜晚大气较稳定、 SO_2 逐渐累积, 并在混合层顶上形成残留层(许波等, 2017)。日出后边界层的内部扩散增强, SO_2

残留层迅速向地面传输，在 08:00~10:00 混合均匀。随后太阳热力作用加强，大气不稳定性提高，增强了 SO₂ 的稀释扩散和水平输送，使得低层大气中 SO₂ 浓度降低（孟晓艳等，2009）。

四季的 CO 日变化趋势相似，总体呈正弦波型。春夏秋季的峰值和谷值分别出现于 09:00、16:00~17:00，冬季的峰值和谷值则出现于 07:00、15:00；白天的 O₃ 浓度明显高于晚上，属典型的“单峰型”。日出后随着太阳辐射的增强，O₃ 生成反应增强，浓度持续上升，午后太阳辐射最强，O₃ 达到峰值。

3.2 污染物空间分布特征

3.2.1 污染玫瑰图分析

污染玫瑰图（图 4）显示了污染物浓度随风速、风向的变化情况，可反映排放源方位等信息。图 4 显示，在不同季节，污染物源区有一定差异。图 4a 中 PM_{2.5} 的高值主要出现于冬季，浓度高于 120 μg m⁻³ 时由东北风主导，表明站点东北方向有明显的局地 PM_{2.5} 排放源。在低风速时，PM_{2.5} 也展示了高浓度特征，表明微风天气利于 PM_{2.5} 的累积。图 4b 显示，PM₁₀ 浓度大于 200 μg m⁻³ 的情况时有发生，在春季的高浓度主要由强偏北风主导，在夏季和冬季主要由强东北风主导，这表明站点东北方向有 PM₁₀ 局地排放源。由图 4c 可见，夏秋季的 SO₂ 分布特征十分相似，高值由西南风主导，春冬季的高浓度主要由偏南风 and 东北风共同主导，表明站点南部、东北部有 SO₂ 排放源。图 4d 显示，春季 NO₂ 的高值由东北风主导，冬季时由偏北风和东北风共同主导。在冬季，PM_{2.5}、NO₂、SO₂ 均在东北方位展现出高浓度特征，与沙河市部分玻璃企业（见图 1b）的分布特征十分类似。

3.2.2 污染来源分析

用高斯核函数对风向和径向变量（风速）加权，分别计算 CO 和 SO₂、NO₂ 和 SO₂、PM_{2.5} 和 NO₂ 的加权皮尔森相关系数 r ($r=1$ 表示两污染物完全相关，表明污染物同源)，见图 5。在冬季东北风时 CO 和 SO₂、NO₂ 和 SO₂、PM_{2.5} 和 NO₂ 均为高度相关，表明东北方向的 PM_{2.5}、NO₂、SO₂ 来源相同。制造玻璃过程中的玻璃熔窑烟气、原料处理废气、熔化工段和切装工段产生的含尘废气和无组织粉尘排放等，都会产生 PM。玻璃制造工艺中常在配合料里引入一定量的硝酸盐，同时煤为主要输入能源，导致玻璃生产过程中会产生氮氧化物和硫氧化

物。另一方面，工业生产过程中需交通工具（多为重型卡车）进行原料的输入和产品的输出，也产生氮氧化物。

冬季时大气边界层低、地面风速小，且玻璃企业距监测站点仅有数公里，可能是玻璃企业产生的污染物扩散不开，传输至站点时浓度依然较高，因此站点在东北风时展现出了污染物高浓度特征（图 4）和高相关性特征（图 5）。而其它季节风速较大，大气垂直和水平扩散能力较冬季强，玻璃企业排放未对监测站点产生明显影响。由图 5 也可见，CO 和 SO₂ 在其它方位也展现出了高度相关特征，这可能与城中村散煤的燃烧有关。

3.3 重污染个例分析

沙河市 PM_{2.5} 污染严重，尤其是冬季重污染事件频发。为了解冬季污染特征，选取了一个典型的重污染个例进行分析。

3.3.1 空气质量演变过程

2017 年 12 月 13~16 日的重污染过程时间序列见图 6。此次重污染过程中，地面平均温度为 -0.15°C，相对湿度（RH）为 73.6%、风速为 0.9 m s⁻¹，具有近地面低温、高湿度、弱风速的气象特点，是冬季逆温形成的有利条件。PM_{2.5} 从 12 月 14 日 00:00 前后逐渐累积升高，在 16 日 01:00 达到 478 μg m⁻³ 的峰值，此时 NO₃⁻ 质量浓度 $C(\text{NO}_3^-)$ 和 SO₄²⁻ 质量浓度 $C(\text{SO}_4^{2-})$ 分别为 40.2 μg m⁻³、33.4 μg m⁻³。随后地面东北风转为西北风，污染物浓度在两小时内迅速下降。整个污染过程中 $C(\text{PM}_{2.5})/C(\text{PM}_{10})$ 为 0.53~0.78，表明污染以细颗粒物为主。PM_{2.5} 与 CO、SO₂、NO₂ 的相关系数分别为 0.9、0.66、0.56，表明化石燃料的不完全燃烧对重污染有重要贡献。

3.3.2 重污染中二次粒子的生成

PM_{2.5} 中的 NO₃⁻、SO₄²⁻ 主要是由气态前体物 NO₂、SO₂ 分别经一系列的化学反应转化而生成的二次粒子，通常用 NOR（nitrogen oxidation ratio）和 SOR（sulfur oxidation ratio）来表示二次转化的程度（Huang et al., 2014; Zheng et al., 2015; Liu et al., 2016）。

$$\text{NOR} = m(\text{NO}_3^-) / [m(\text{NO}_3^-) + m(\text{NO}_2)], \quad (5)$$

$$\text{SOR} = m(\text{SO}_4^{2-}) / [m(\text{SO}_4^{2-}) + m(\text{SO}_2)], \quad (6)$$

其中， m 指摩尔浓度。

图 7 显示，沙河市 12 月 14 日 00:00 至 12 月 16

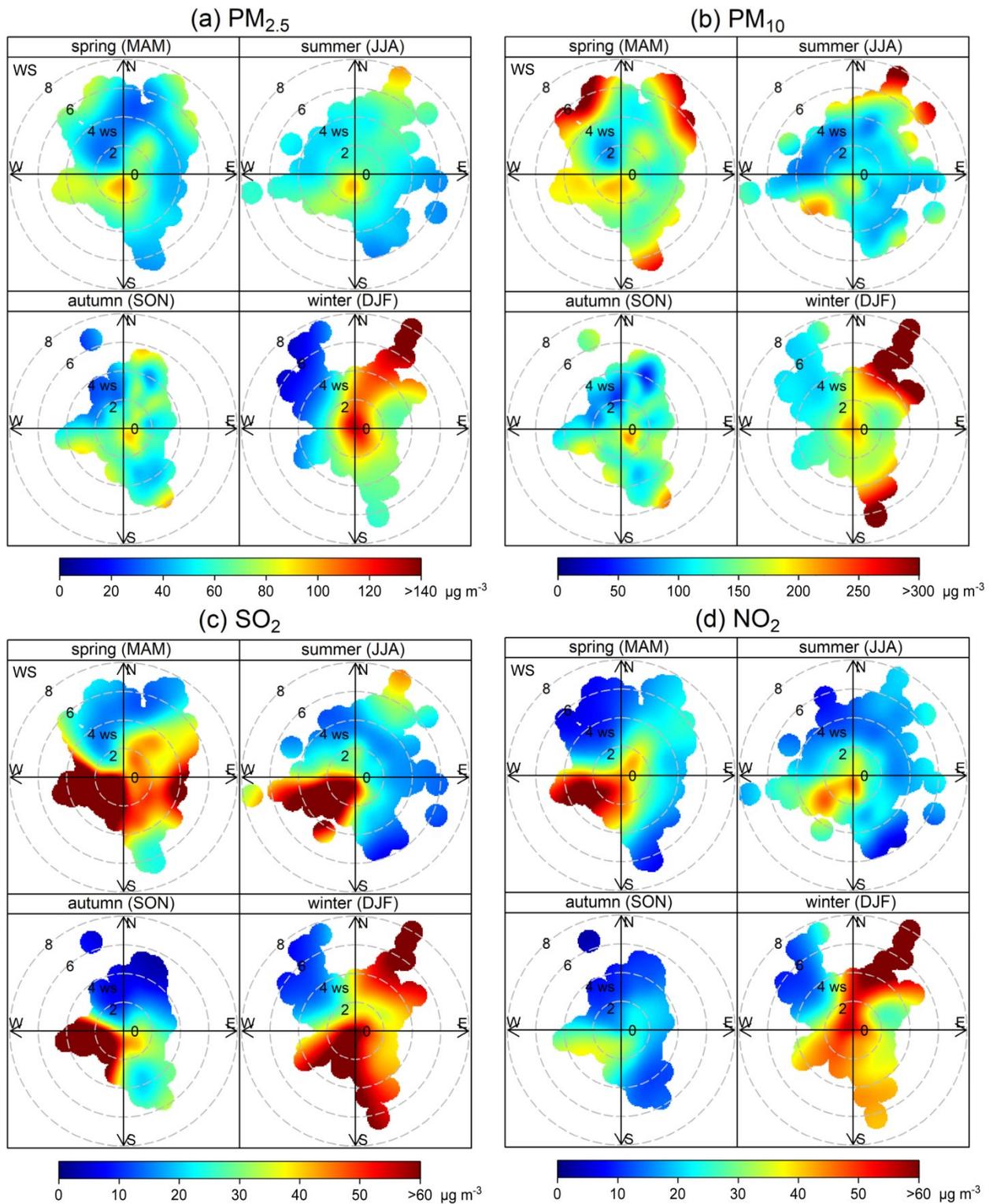


图4 2017年不同季节沙河市 (a) $PM_{2.5}$ 、(b) PM_{10} 、(c) SO_2 和 (d) NO_2 质量浓度随风速 (WS, 单位: $m s^{-1}$)、风向变化的玫瑰图

Fig. 4 Rose diagrams for variations of (a) $PM_{2.5}$, (b) PM_{10} , (c) SO_2 , and (d) NO_2 mass concentrations with wind speeds (WS, units: $m s^{-1}$) and wind directions in Shahe City in different seasons of 2017

日01:00的重污染时段, NOR、SOR的均值分别为0.31、0.4, 高于北京冬季重污染时的0.15、0.21 (杨孝文等, 2016)。SOR=0.1常作为大气中 SO_2

发生二次转化的分界值 (Shon et al., 2013), 沙河市此次重污染中SOR、NOR的最高值分别达0.67、0.39, 表明二次转化剧烈。在12月14日00:00至12

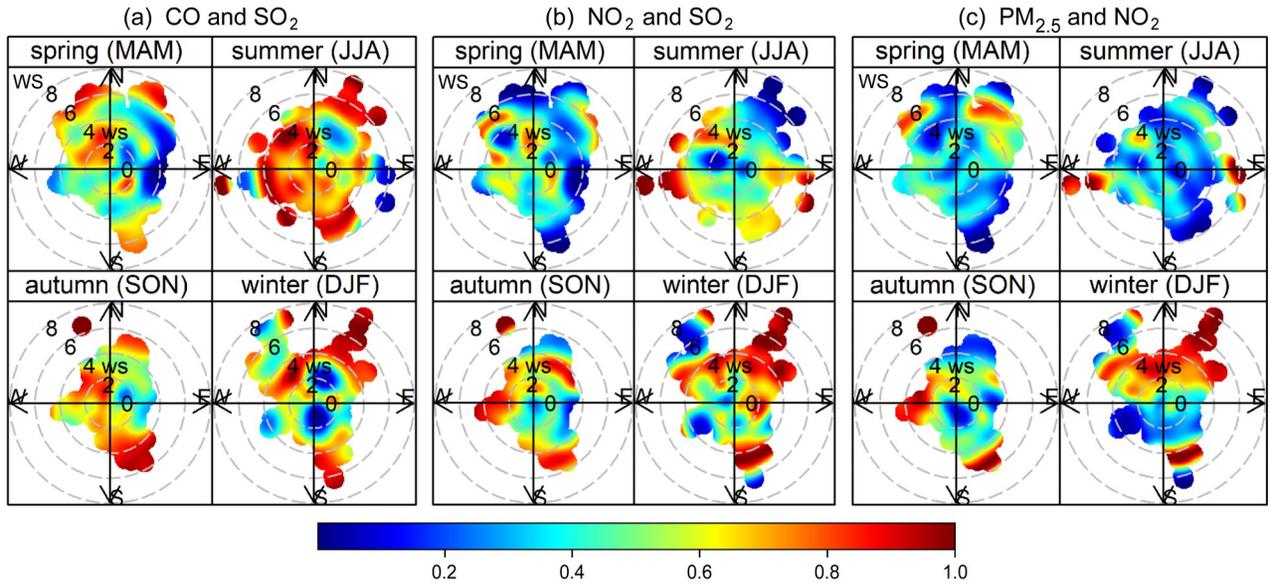


图5 2017年沙河市 (a) CO和SO₂、(b) NO₂和SO₂、(c) PM_{2.5}和NO₂质量浓度在不同季节相关系数(填色)随风速(WS, 单位: m s⁻¹)、风向变化的玫瑰图

Fig.5 Rose diagrams for variations of correlation coefficients (shaded) between (a) CO and SO₂, (b) SO₂ and NO₂, (c) PM_{2.5} and NO₂ mass concentrations with wind speeds (WS, units: m s⁻¹) and wind directions in different seasons of 2017 in Shahe City

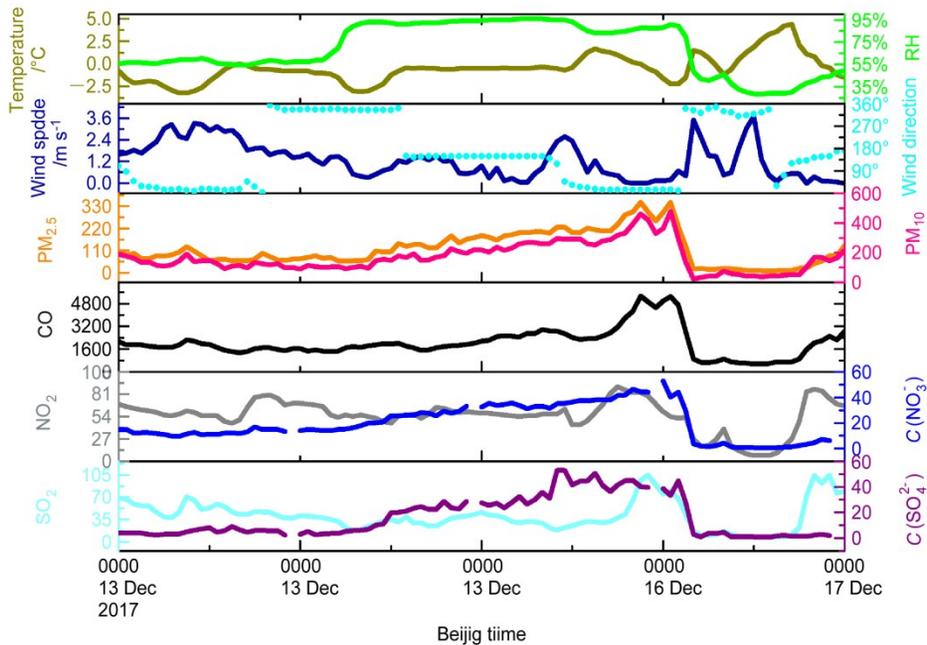


图6 2017年12月13~16日梅花公园站各气象要素及各污染物质量浓度的时间序列

Fig. 6 Time series of meteorological elements and mass concentration of pollutants at MHGY site during 13 to 16 December, 2017

月15日11:00, PM_{2.5}开始累积, SOR、NOR持续上升, SO₂和NO₂的二次转化对高浓度PM_{2.5}贡献很大。

一些研究中用 $C(\text{NO}_3^-)/C(\text{SO}_4^{2-})$ 表征固定源和移动源的相对贡献 (Yao et al., 2002)。发达国家对于固定源污染物排放控制较好, 移动源对污染的贡

献较大, $C(\text{NO}_3^-)/C(\text{SO}_4^{2-})$ 通常大于1。而我国含硫煤使用广, $C(\text{NO}_3^-)/C(\text{SO}_4^{2-})$ 通常小于1 (李伟芳等, 2008; 杨孝文等, 2016; 邹长伟等, 2016)。近几年我国华北地区正大力推动产业结构的优化升级, 煤炭消耗量被大幅压缩, SO₂排放得到有效控制, NO_x却持续增加, $C(\text{NO}_3^-)/C(\text{SO}_4^{2-})$ 有所升高。

2017年12月13~16日整个时段内,沙河市 $C(\text{NO}_3^-)/C(\text{SO}_4^{2-})$ 的平均值为1.89、最高值为5.7,表明重污染过程中移动源占优势, $C(\text{NO}_3^-)/C(\text{SO}_4^{2-})$ 的变化说明硫酸氮的二次转化促进霾的形成和演变(Chen et al., 2015)。

沙河市作为人口45万左右的县级市,本地小型汽车保有量较小,推测运输工业产品的大型车辆对 NO_2 贡献较大,同时企业排放也有一定贡献。整个污染事件期间,SOR、NOR与RH的相关系数分别为0.76、0.92,表明高湿度利于二次粒子的生成。

3.3.3 后向轨迹分析

利用Flexpart模拟的粒子的后向轨迹见图8。逆推的粒子主要落在河北南部的邢台、邯郸等区域,环保部数据中心也显示此时段内这些地区经历了以 $\text{PM}_{2.5}$ 为主要污染物的严重污染。这表明沙河市存在本地污染源的同时,可能也受其周边城市的区域传输影响。

3.4 潜在源分析

沙河市冬季时常爆发强度高、持续时间久的大气细颗粒物重污染事件,为了解污染物来源,选取2017年12月为研究时段,分析沙河市 $\text{PM}_{2.5}$ 的潜在

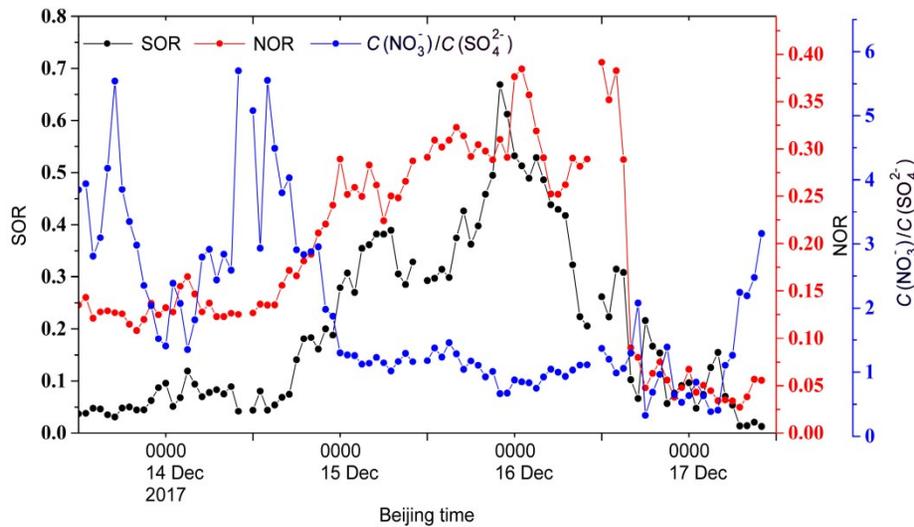


图7 沙河市2017年12月13~16日中NOR、SOR、 $C(\text{NO}_3^-)/C(\text{SO}_4^{2-})$ 的时间序列

Fig. 7 Time series of NOR (nitrogen oxidation ratio), SOR (sulfur oxidation ratio), and $C(\text{NO}_3^-)/C(\text{SO}_4^{2-})$ during 13 to 16 December, 2017 in Shahe City

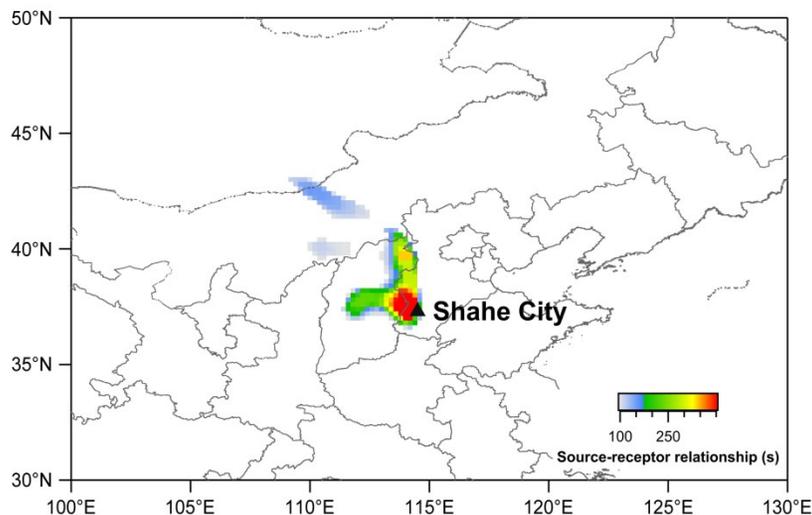


图8 沙河市2017年12月15日09:00粒子48h的后向轨迹

Fig. 8 48-hour backward trajectories of particles at 0900 BT 15 December, 2017 in Shahe City

源区。

利用 Meteoinfo 软件 (Wang et al., 2009), 对沙河市宣传文化中队 (36.87°N, 114.51°E) 2017 年 12 月 1~31 日, 每日 24 个时次的 24 h 后向气团所对应的 PM_{2.5} 浓度分析, 浓度阈值均设为 0。轨迹计算起始点高度设为 10 m, 研究区域范围选择为 (33°~51°N, 99°~122°E), 网格分辨率为 0.1°×0.1°。图 9、图 10 分别为 WPSCF、WCWT 的计算

结果。

图 9 中颜色越接近红色表示 WPSCF 值越大, 表明沙河市 PM_{2.5} 质量浓度超过阈值时更趋向于受到了来自这些地区的气团影响, 可以间接地反映该地区的排放对沙河市 PM_{2.5} 浓度的影响程度。可看出, 沙河市 PM_{2.5} 的强潜在源区 (WPSCF≥0.7) 非常密集, 分布在沙河市周边。主要为沙河市本地、邢台市、邯郸市东北部、辛集市西部。图 10 也表

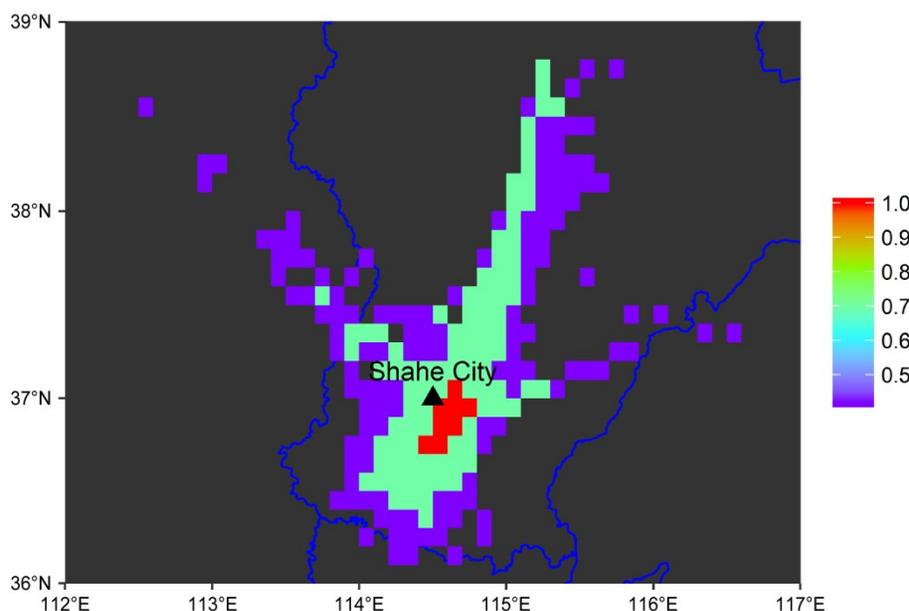


图9 2017年12月沙河市PM_{2.5}的WPSCF分布
Fig.9 WPSCF (Weighted Potential Source Contribution Function) distribution of PM_{2.5} in December, 2017 in Shahe City

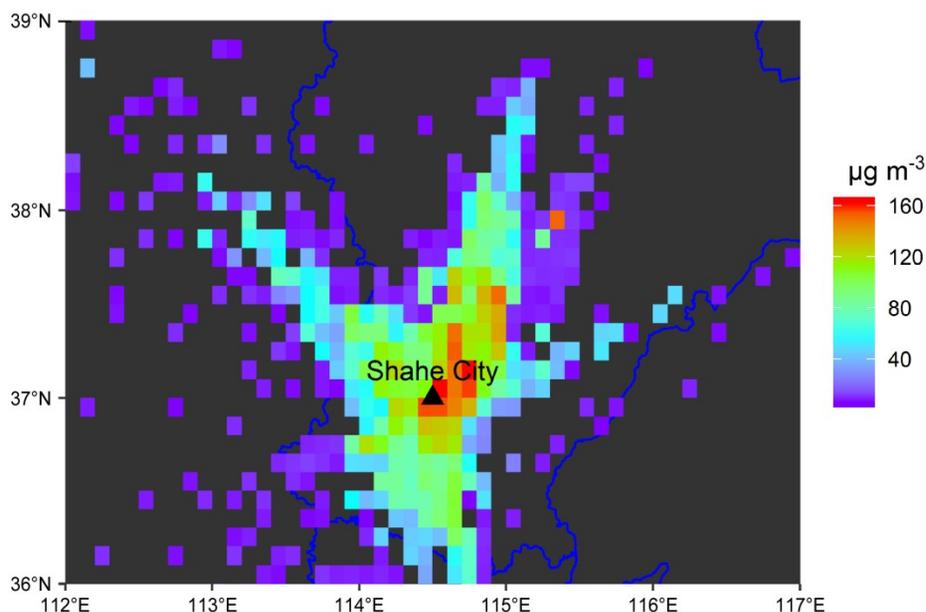


图10 2017年12月沙河市PM_{2.5}的WCWT分布
Fig.10 WCWT (Weighted Concentration Weighted Trajectory) distribution of PM_{2.5} in December, 2017 in Shahe City

明, 这些区域对沙河市 $PM_{2.5}$ 的贡献超过 $70 \mu g m^{-3}$, 其中邢台市和邯郸市东北部区域的贡献在 $90 \mu g m^{-3}$ 以上。WPSCF和WCWT综合表明, 除了本地排放源, 周边几个重工业城市对沙河市的 $PM_{2.5}$ 也有一定贡献。

4 结论

(1) 2017年沙河市大气污染严重, 未达标(空气质量指数 ≥ 101)天数占比67.6%。首要污染物有明显季节变化特征, 春季、夏季、秋冬季分别以 PM_{10} 、 O_3 、 $PM_{2.5}$ 污染为主, 季节贡献率分别为43.3%、72.3%、61.5%。 NO_2 、 SO_2 年均浓度分别为 36.8 、 $47.6 \mu g m^{-3}$, 冬季 $PM_{2.5}$ 和CO浓度分别为 $143 \mu g m^{-3}$ 、 $2.85 mg m^{-3}$ 。

(2) 受城市大气边界层和排放的综合作用, 各污染物有明显的日变化特征, 且季节差异明显。PM在09:00出现“早高峰”浓度峰值, 而在春冬季未展现通常20:00前后的“晚高峰”特征。 NO_2 在春夏季呈单峰型、秋冬季呈双峰型, 在07:00~09:00的峰值可能主要受机动车早高峰影响。 SO_2 在08:00~10:00的峰值与夜晚的排放有关。

(3) 在冬季东北风时 $PM_{2.5}$ 、 PM_{10} 、 NO_2 、 SO_2 均展现出高浓度特征, 且 $PM_{2.5}$ 、 NO_2 、 SO_2 间展现出高相关性特征, 表明站点可能受东北方向玻璃企业排放影响。同时, 站点可能也受城中村散煤燃烧影响。

(4) 沙河市冬季一次重污染个例中, $C(PM_{2.5})$ 峰值达 $478 \mu g m^{-3}$, SOR、NOR的最高值分别为0.67、0.39, 气态污染物的二次转化对高浓度 $PM_{2.5}$ 贡献很大, 高湿度促进了二次粒子的生成。 $C(NO_3^-)/C(SO_4^{2-})$ 均值为1.89, 推测沙河市 NO_2 主要来自大型运输车辆和企业的共同排放。Flexpart模式表明除本地污染源外, 沙河市也受区域传输影响。

(5) 本地源是沙河市 $PM_{2.5}$ 的主要潜在源区, 周边几个重工业城市也有一定贡献。因此沙河市 $PM_{2.5}$ 浓度的降低除需加强本地污染源减排和控制外, 区域的联防联控也十分重要。

参考文献 (References)

安兴琴, 姚波, 李岩, 等. 2014. 利用FLEXPART模式反演中国区域 SF_6 排放量[J]. 环境科学学报, 34(5): 1133-1140. An Xingqin,

- Yao Bo, Li Yan, et al. 2014. Estimating emission of SF_6 in China by atmospheric observation data and inverse modeling [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae* (in Chinese), 34(5): 1133-1140. doi: 10.13671/j.hjkxxb.2014.0178
- Begum B A, Kim E, Jeong C H, et al. 2005. Evaluation of the potential source contribution function using the 2002 Quebec forest fire episode [J]. *Atmos. Environ.*, 39(20): 3719-3724. doi: 10.1016/j.atmosenv.2005.03.008
- 曹治强, 吕达仁. 2015. 两次强对流背景下的对流层向平流层输送特征模拟与分析[J]. 大气科学, 39(5): 875-884. Cao Zhiqiang, Lü Daren. 2015. Simulation and analysis of troposphere-to-stratosphere transport caused by two severe convection events [J]. *Chinese Journal of Atmospheric Sciences* (in Chinese), 39(5): 875-884. doi: 10.3878/j.issn.1006-9895.1411.14175
- 陈斌, 徐祥瑞, 卞建春, 等. 2010. 夏季亚洲季风区对流层向平流层输送的源区、路径及其时间尺度的模拟研究[J]. 大气科学, 34(3): 495-505. Chen Bin, Xu Xiangde, Bian Jianchun, et al. 2010. Sources, pathways and timescales for the troposphere to stratosphere transport over Asian monsoon regions in boreal summer [J]. *Chinese Journal of Atmospheric Sciences* (in Chinese), 34(3): 495-505. doi: 10.3878/j.issn.1006-9895.2010.03.03
- Chen C, Sun Y L, Xu W Q, et al. 2015. Characteristics and sources of submicron aerosols above the urban canopy (260 m) in Beijing, China, during the 2014 APEC summit [J]. *Atmospheric Chemistry & Physics*, 15(22): 12879-12895. doi:10.5194/acp-15-12879-2015
- 高愈霄, 霍晓芹, 闫慧, 等. 2016. 京津冀区域大气重污染过程特征初步分析[J]. 中国环境监测, 32(6): 26-35. Gao Yuxiao, Huo Xiaojin, Yan Hui, et al. 2016. Preliminary analysis on the characteristics of heavy air pollution events in Beijing-Tianjin-Hebei region [J]. *Environmental Monitoring in China* (in Chinese), 32(6): 26-35. doi:10.19316/j.issn.1002-6002.2016.06.05
- 郝建奇, 葛宝珠, 王自发, 等. 2017. 2013年京津冀重污染特征及其气象条件分析[J]. 环境科学学报, 37(8): 3032-3043. Hao Jianqi, Ge Baozhu, Wang Zhifa, et al. 2017. Characteristics and meteorological conditions analysis of severe haze events over Beijing-Tianjin-Hebei area [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae* (in Chinese), 37(8): 3032-3043. doi:10.13671/j.hjkxxb.2017.0087
- 贺泓, 王新明, 王跃思, 等. 2013. 大气灰霾成因与控制[J]. 中国科学院院刊, 28(3): 344-352. He Hong, Wang Xinming, Wang Yuesi, et al. 2013. Formation mechanism and control strategies of haze in China [J]. *Bulletin of Chinese Academy of Sciences* (in Chinese), 28(3): 344-352. doi:10.3969/j.issn.1000-3045.2013.03.008
- Hopke P K, Barrie L A, Li S M, et al. 1995. Possible sources and preferred pathways for biogenic and non-sea-salt sulfur for the high Arctic [J]. *J. Geophys. Res.: Atmos.*, 100(D8): 16595-16603. doi:10.1029/95JD01712
- 侯梦玲, 王宏, 赵天良, 等. 2017. 京津冀一次重度雾霾天气能见度及边界层关键气象要素的模拟研究[J]. 大气科学, 41(6): 1177-1190. Hou Mengling, Wang Hong, Zhao Tianliang, et al. 2017. A modeling study of the visibility and PBL key meteorological elements during a heavy fog-haze episode in Beijing-Tianjin-Hebei

- of China [J]. Chinese Journal of Atmospheric Sciences (in Chinese), 41(6): 1177–1190. doi:10.3878/j.issn.1006-9895.1703.16211
- Hsu Y K, Holsen T M, Hopke P K. 2003. Comparison of hybrid receptor models to locate PCB sources in Chicago [J]. Atmos. Environ., 37(4): 545–562. doi:10.1016/S1352-2310(02)00886-5.
- 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
- Kimoto H, Ueda A, Tsujimoto K, et al. 2013. Development of a continuous dichotomous aerosol chemical speciation analyzer [J]. Clean Technology, 23: 49–52.
- 李伟芳, 白志鹏, 魏静东, 等. 2008. 天津冬季大气中PM_{2.5}及其主要组分的污染特征 [J]. 中国环境科学, 28(6): 481–486. Li Weifang, Bai Zhipeng, Wei Jingdong, et al. 2008. Pollution characteristics of PM_{2.5} and its main components in Tianjin winter atmosphere [J]. China Environmental Science (in Chinese), 28(6): 481–486. doi:10.3321/j.issn:1000-6923.2008.06.001
- 李云燕, 葛畅. 2017. 我国三大区域PM_{2.5}源解析研究进展 [J]. 现代化工, 37(4): 1–5, 7. Li Yunyan, Ge Chang. 2017. Research progress of PM_{2.5} source analysis in three main regions of China [J]. Modern Chemical Industry (in Chinese), 37(4): 1–5, 7.
- Liu P F, Zhang C L, Mu Y J, et al. 2016. The possible contribution of the periodic emissions from farmers' activities in the North China Plain to atmospheric water-soluble ions in Beijing [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 16(15): 10097–10109. doi:10.5194/acp-16-10097-2016
- 吕立慧, 刘文清, 张天舒, 等. 2017. 基于激光雷达的京津冀地区大气边界层高度特征研究 [J]. 激光与光电子学进展, 54(1): 010101. Lü Lihui, Liu Wenqing, Zhang Tianshu, et al. 2017. Characteristics of boundary layer height in Jing-Jin-Ji area based on Lidar [J]. Laser and Optoelectronics Progress (in Chinese), 54(1): 010101.
- 孟晓艳, 王普才, 王庚辰, 等. 2009. 北京及其周边地区冬季SO₂的变化与输送特征 [J]. 气候与环境研究, 14(3): 309–317. Meng Xiaoyan, Wang Pucui, Wang Gengchen, et al. 2009. Variation and transportation characteristics of SO₂ in winter over Beijing and its surrounding areas [J]. Climatic and Environmental Research (in Chinese), 14(3): 309–317. doi:10.3878/j.issn.1006-9585.2009.03.08
- 缪育聪, 郑亦佳, 王姝, 等. 2015. 京津冀地区霾成因机制研究进展与展望 [J]. 气候与环境研究, 20(3): 356–368. Miao Yucong, Zheng Yijia, Wang Shu, et al. 2015. Recent advances in, and future prospects of, research on haze formation over Beijing–Tianjin–Hebei, China [J]. Climatic and Environmental Research (in Chinese), 20(3): 356–368. doi:10.3878/j.issn.1006-9585.2015.14255
- 潘本锋, 程麟钧, 王建国, 等. 2016. 京津冀地区臭氧污染特征与来源分析 [J]. 中国环境监测, 32(5): 17–23. Pan Benfeng, Cheng Linjun, Wang Jianguo, et al. 2016. Characteristics and source attribution of ozone pollution in Beijing–Tianjin–Hebei region [J]. Environmental Monitoring in China (in Chinese), 32(5): 17–23. doi:10.19316/j.issn.1002-6002.2016.05.04
- Pan X L, Kanaya Y, Wang Z F, et al. 2014. Using Bayesian optimization method and FLEXPART tracer model to evaluate CO emission in East China in springtime [J]. Environmental Science & Pollution Research, 21(5): 3873–3879. doi:10.1007/s11356-013-2317-2
- Pan X L, Uno I, Hara Y, et al. 2016. Polarization properties of aerosol particles over western Japan: Classification, seasonal variation, and implications for air quality [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 16(15): 9863–9873. doi:10.5194/acp-16-9863-2016
- Pan X L, Uno I, Wang Z, et al. 2018. Seasonal variabilities in chemical compounds and acidity of aerosol particles at urban site in the West Pacific [J]. Environmental Pollution, 237: 868–877. doi:10.1016/j.envpol.2017.11.089
- Seibert P, Frank A. 2004. Source-receptor matrix calculation with a Lagrangian particle dispersion model in backward mode [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 4(1): 51–63. doi:10.5194/acp-4-51-2004
- Shon Z H, Ghosh S, Kim K H, et al. 2013. Analysis of water-soluble ions and their precursor gases over diurnal cycle [J]. Atmospheric Research, 132–133: 309–321. doi:10.1016/j.atmosres.2013.06.003
- Stohl A, Sodemann H, Eckhardt S, et al. 2011. The Lagrangian particle dispersion model FLEXPART version 8.2 [OL]. FLEXPART User Guide. <https://www.flexpart.eu/downloads/26>.
- 王爱平, 朱彬, 银燕, 等. 2014. 黄山顶夏季气溶胶数浓度特征及其输送潜在源区 [J]. 中国环境科学, 34(4): 852–861. Wang Aiping, Zhu Bin, Yin Yan, et al. 2014. Aerosol number concentration properties and potential sources areas transporting to the top of mountain Huangshan in summer [J]. China Environmental Science (in Chinese), 34(4): 852–861. doi:10.3969/j.issn.1000-6923.2014.04.008
- 王婷, 王普才, 余环, 等. 2014. 华北地区香河站对流层NO₂的MAX-DOAS光谱仪观测及变化特征分析 [J]. 气候与环境研究, 19(1): 51–60. Wang Ting, Wang Pucui, Yu Huan, et al. 2014. Analysis of the characteristics of tropospheric NO₂ in Xianghe based on MAX-DOAS measurement [J]. Climatic and Environmental Research (in Chinese), 19(1): 51–60. doi:10.3878/j.issn.1006-9585.2012.12131
- Wang Y Q, Zhang X Y, Draxler R R. 2009. TrajStat: GIS-based software that uses various trajectory statistical analysis methods to identify potential sources from long-term air pollution measurement data [J]. Environmental Modelling & Software, 24(8): 938–939. doi:10.1016/j.envsoft.2009.01.004
- 王哲, 王自发, 李杰, 等. 2014. 气象—化学双向耦合模式(WRF-NAQPMS)研制及其在京津冀秋季重霾模拟中的应用 [J]. 气候与环境研究, 19(2): 153–163. Wang Zhe, Wang Zifa, Li Jie, et al. 2014. Development of a meteorology–chemistry two-way coupled numerical model (WRF-NAQPMS) and its application in a severe autumn haze simulation over the Beijing–Tianjin–Hebei area, China [J]. Climatic and Environmental Research (in Chinese), 19(2): 153–163. doi:10.3878/j.issn.1006-9585.2014.13231
- 王自发, 李杰, 王哲, 等. 2014. 2013年1月我国中东部强霾污染的数值模拟和防控对策 [J]. 中国科学: 地球科学, 44(1): 3–14. Wang Zifa, Li Jie, Wang Zhe, 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): 3-13. doi:10.1007/s11430-013-4793-0
- 王占山, 李云婷, 张大伟, 等. 2018. 2014年北京市CO浓度水平和时空分布[J]. *中国环境监测*, 34(3): 14-19. Wang Zhanshan, Li Yunting, Zhang Dawei, et al. 2018. Concentration level and spatiotemporal characteristics of CO in Beijing in 2014 [J]. *Environmental Monitoring in China (in Chinese)*, 34(3): 14-19. doi: 10.19316/j.issn.1002-6002.2018.03.03
- 吴保见, 王昆, 贾立, 等. 2017. 源项对FLEXPART模式模拟福岛核事故放射性物质长距离传输的影响[J]. *气候与环境研究*, 22(1): 10-22. Wu Baojian, Wang Kun, Jia Li, et al. 2017. Influences of source term on long-range transport of radionuclides from the Fukushima Daiichi nuclear accident with FLEXPART model [J]. *Climatic and Environmental Research (in Chinese)*, 22(1): 10-22. doi:10.3878/j.issn.1006-9585.2016.15246
- 许波, 张英杰, 吴序鹏, 等. 2017. 2016年夏季淮安市大气污染特征及成因分析[J]. *科学技术与工程*, 17(27): 316-321. Xu Bo, Zhang Yingjie, Wu Xupeng, et al. 2017. Characteristics and causes of air pollution in Huai'an City in the summertime of 2016 [J]. *Science Technology and Engineering (in Chinese)*, 17(27): 316-321. doi:10.3969/j.issn.1671-1815.2017.27.052
- Xu X, Akhtar U S. 2010. Identification of potential regional sources of atmospheric total gaseous mercury in Windsor, Ontario, Canada using hybrid receptor modeling [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(15): 7073-7083. doi:10.5194/acp-10-7073-2010
- 杨欣, 陈义珍, 刘厚凤, 等. 2014. 北京2013年1月连续强霾过程的污染特征及成因分析[J]. *中国环境科学*, 34(2): 282-288. Yang Xin, Chen Yizhen, Liu Houfeng, et al. 2014. Characteristics and formation mechanism of a serious haze event in January 2013 in Beijing [J]. *China Environmental Science (in Chinese)*, 34(2): 282-288. doi:10.3969/j.issn.1000-6923.2014.02.002
- 杨孝文, 周颖, 程水源, 等. 2016. 北京冬季一次重污染过程的污染特征及成因分析[J]. *中国环境科学*, 36(3): 679-686. Yang Xiaowen, Zhou Ying, Cheng Shuiyuan, et al. 2016. Characteristics and formation mechanism of a heavy winter air pollution event in Beijing [J]. *China Environmental Science (in Chinese)*, 36(3): 679-686. doi:10.3969/j.issn.1000-6923.2016.03.007
- Yao X H, Chan C K, Fang M, et al. 2002. The water-soluble ionic composition of PM_{2.5} in Shanghai and Beijing, China [J]. *Atmos. Environ.*, 36(26): 4223-4234. doi:10.1016/S1352-2310(02)00342-4
- 于世杰, 尹沙沙, 张瑞芹, 等. 2017. 郑州市近地面臭氧污染特征及气象因素分析[J]. *中国环境监测*, 33(4): 140-149. Yu Shijie, Yin Shasha, Zhang Ruiqin, et al. 2017. Analysis on the characteristics of surface ozone pollution and meteorological factors in Zhengzhou [J]. *Environmental Monitoring in China (in Chinese)*, 33(4): 140-149. doi:10.19316/j.issn.1002-6002.2017.04.18
- Zhang W, Capps S L, Hu Y, et al. 2012. Development of the high-order decoupled direct method in three dimensions for particulate matter: Enabling advanced sensitivity analysis in air quality models [J]. *Geoscientific Model Development*, 5: 355-368. doi:10.5194/gmd-5-355-2012
- 张子曰, 李艳, 戴高菊, 等. 2016. 北京市朝阳区主要大气污染物浓度变化特征[J]. *气象与环境学报*, 32(2): 44-51. Zhang Ziyue, Li Yan, Dai Gaoju, et al. 2016. Characteristics of concentrations of main air pollutants at Chaoyang District, Beijing [J]. *Journal of Meteorology and Environment (in Chinese)*, 32(2): 44-51. doi:10.11927/j.issn.1673-503X.2016.02.006
- Zheng G J, Duan F K, Su H, et al. 2015. Exploring the severe winter haze in Beijing: The impact of synoptic weather, regional transport and heterogeneous reactions [J]. *Atmospheric Chemistry & Physics*, 15(6): 2969-2983. doi:10.5194/acp-15-2969-2015
- 朱书慧, 周敏, 乔利平, 等. 2016. 2015年12月气流轨迹对长三角区域细颗粒物浓度和分布的影响[J]. *环境科学学报*, 36(12): 4285-4294. Zhu Shuhui, Zhou Min, Qiao Liping, et al. 2016. Impact of the air mass trajectories on PM_{2.5} concentrations and distribution in the Yangtze River Delta in December 2015 [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae (in Chinese)*, 36(12): 4285-4294. doi: 10.13671/j.hjkxxb.2016.0166
- 邹长伟, 刘凌, 黄虹, 等. 2016. 南昌市PM_{2.5}中硫酸盐、硝酸盐及其气态前体物的分布特征与转化机制[J]. *分析科学学报*, 32(5): 611-618. Zou Changwei, Liu Ling, Huang Hong, et al. 2016. Sulfate and nitrate distribution characteristics and conversion mechanism of PM_{2.5} and its gaseous precursors in Nanchang City [J]. *Journal of Analytical Science (in Chinese)*, 32(5): 611-618. doi:10.13526/j.issn.1006-6144.2016.05.004