

一次长三角大气重污染期间浙江典型城市 大气PM_{2.5}污染成因分析*

王琰真¹ 于燕² 孟伟江³ 蒋琦清¹ 张天⁴ 晁娜¹ 吴电¹ 吴建¹

(1.浙江省环境保护科学设计研究院,浙江 杭州 310007;2.浙江省气象科学研究所,浙江 杭州 310008;

3.时代盛华科技有限公司,浙江 杭州 311202;4.杭州市环境监测中心站,浙江 杭州 310007)

摘要 浙江大气PM_{2.5}污染问题突出。利用国家环境空气质量监测站的实时在线监测数据分析了2013年12月上旬长三角地区一次大气PM_{2.5}严重污染前后浙江典型城市(杭州、湖州、金华、宁波和舟山)的PM_{2.5}污染成因。结果表明,严重污染天(SPD)风速和大气边界层高度均较非污染天低,不利于污染物扩散,而气温和相对湿度高,易于二次颗粒物生成。PM_{2.5}/CO(质量比)的变化结果显示,SPD二次颗粒物对杭州、宁波、舟山PM_{2.5}浓度的贡献高于60%,对湖州和金华PM_{2.5}浓度的贡献略低(42%~54%)。杭州SPD时二次NO₃⁻、SO₄²⁻、NH₄⁺的增长幅度远高于PM_{2.5},且氮转化率和硫转化率随相对湿度的升高而上升,表明硫酸盐和硝酸盐的生成是PM_{2.5}污染的重要来源。气团后向轨迹显示,SPD时杭州和湖州主要受江苏、安徽及浙江省内其他城市气团传输的影响,宁波和舟山主要受上海、江苏、安徽及东海上空气团传输的影响,而金华主要受本地及邻近的杭州、绍兴的影响。

关键词 PM_{2.5} 二次转化 区域传输

DOI:10.15985/j.cnki.1001-3865.2019.09.014

The causes of PM_{2.5} pollution in typical cities of Zhejiang during a severe pollution event of Yangtze River Delta WANG

Qiongzhen¹, YU Yan², MENG Weijiang³, JIANG Qiqing¹, ZHANG Tian⁴, CHAO Na¹, WU Dian¹, WU Jian¹.

(1.Environmental Science Research & Design Institute of Zhejiang Province, Hangzhou Zhejiang 310007; 2.Zhejiang Institute of Meteorological Sciences, Hangzhou Zhejiang 310008; 3.Times Shenghua Technology Co., Ltd., Hangzhou Zhejiang 311202; 4.Hangzhou Environmental Monitoring Centre Station, Hangzhou Zhejiang 310007)

Abstract: Atmospheric PM_{2.5} pollution is a serious issue in Zhejiang. In this study, the causes of PM_{2.5} pollution in five typical cities including Hangzhou, Huzhou, Jinhua, Ningbo and Zhoushan were comparatively analyzed during a severe PM_{2.5} pollution event of Yangtze River Delta in early December, 2013, based on real time on-line observation data from nation-controlled stations. Results showed that wind speed and height of planetary boundary layer decreased in severe pollution days (SPD) in all the five cities, leading to accumulations of atmospheric pollutants, while temperature and relative humidity increased, easy to formaiton of secondary particles. Based on the variation of PM_{2.5}/CO (mass ratio), secondary particles were estimated to account for more than 60% of PM_{2.5} in Hangzhou, Ningbo and Zhoushan, while only 42%-54% in Huzhou and Jinhua. In Hangzhou, the increase of secondary NO₃⁻, SO₄²⁻ and NH₄⁺ in SPD was significantly higher than that of PM_{2.5}, and nitrogen oxidation ratio and sulfur oxidation ratio increased significantly along with the increase of relative humidity, indicating that the formation of sulfate and nitrate was the crucial source of PM_{2.5} pollution. Backward trajectories of air masses in SPD showed that PM_{2.5} pollution in Hangzhou and Huzhou was influenced by air masses from Jiangsu, Anhui and other cities in Zhejiang, that PM_{2.5} pollution in Ningbo and Zhoushan was influenced by air masses from Shanghai, Jiangsu, Anhui and the East China Sea, and that PM_{2.5} pollution in Jinhua was influenced by air masses from native sources and adjacent Hangzhou and Shaoxing.

Keywords: PM_{2.5}; secondary transformation; regional transport

大气PM_{2.5}污染一般受人为污染源排放和气象条件的双重影响^[1-4]。PM_{2.5}污染期间,硫酸盐、硝酸盐等污染物浓度通常是清洁天的数倍甚至几十倍^{[5]6, [6]}。QUAN等^[7]研究表明,硫酸盐和硝酸盐的非均相生成是北京冬季PM_{2.5}污染的重要原因。

LIN等^[8]研究发现,2004—2008年上海颗粒物中NH₄⁺浓度明显升高,影响能见度。逆温、静稳、高湿等不利的气象条件常引发高浓度的颗粒物污染^[9-10]。此外,污染物的中/长距离输送,对区域空气质量也有重要影响^{[5]17, [11]9-11, [12]}。

第一作者:王琰真,女,1984年生,博士,高级工程师,主要从事大气气溶胶化学研究。

*国家重点研发计划项目(No.2018YFC0213806)。

浙江位于 PM_{2.5} 污染问题较突出的长三角地区。但是有关浙江 PM_{2.5} 污染特征及成因的研究较为有限,现有的研究主要集中在经济发展较好的杭州、宁波等地。王书肖等^[13]采用模型模拟和现场观测方法,分析了杭州和宁波的 PM_{2.5} 污染特征及来源。徐昶等^[14]在世界无车日期间,评估了机动车尾气排放对杭州 PM_{2.5} 污染的影响。然而,浙江地形地貌复杂,经济发展与人为源排放的空间差异显著,不同地区 PM_{2.5} 的污染特征及成因不尽相同。本研究在选取杭州、宁波的基础上,又选择了浙江、江苏、安徽 3 省交界处的湖州,地处浙中盆地的金华和海岛城市舟山等典型城市开展 PM_{2.5} 污染成因研究。

2013 年 12 月上旬我国长三角地区出现了长时间、大范围的 PM_{2.5} 严重污染^[15],期间浙江大部分城市 PM_{2.5} 污染严重。因此,本研究重点分析了此次重污染期间的浙江典型城市 PM_{2.5} 污染成因,以期对浙江制定科学合理的大气污染防治措施提供参考。

1 研究方法

大气 PM₁₀、PM_{2.5}、SO₂、NO₂、CO 等污染物日均浓度数据为来自各地的国家环境空气质量监测站的实时在线监测数据。根据《环境空气质量指数(AQI)技术规定(试行)》(HJ 633—2012),将 PM_{2.5} 日均质量浓度分别为 0~35、>35~75、>75~115、>115~150、>150~250、>250~500 μg/m³,所对应的污染等级划分为优、良、轻度污染、中度污染、重度污染、严重污染。2013 年 12 月 4 至 8 日长三角地区出现了区域 PM_{2.5} 严重污染,本研究分析了 2013 年 11 月 28 日至 12 月 11 日期间杭州、湖州、金华、宁波、舟山严重污染天(SPD)的污染特征及影响因素。

为分析 PM_{2.5} 的化学组分变化,特别是水溶性离子 NO₃⁻、SO₄²⁻、NH₄⁺^[16],本研究以杭州为代表,采用美国 URG 公司生产的大气气溶胶及气体组分在线监测分析系统(AIM URG-9000D 系列)实时在线监测 PM_{2.5} 中 NO₃⁻、SO₄²⁻、NH₄⁺、Cl⁻、Na⁺、K⁺、Mg²⁺、Ca²⁺ 等水溶性离子浓度。

小时气温、相对湿度、风速和风向等气象数据取自各地气象站。大气边界层高度(PBLH)数据由美国海洋与大气局大气资源实验室的模型计算(<https://ready.arl.noaa.gov/READYamet.php>),气象数据集选择 GDAS(1 deg, 3 hourly, global)。

采用美国海洋与大气局大气资源实验室的拉格朗日混合单粒子轨道(HYSPLIT)模型计算了 12 月

4 至 9 日气团的 48 h 后向轨迹,气象数据集选择 GDAS(1 deg, 2006-present, global)。由于研究期间 PBLH 较低,设置气团的起始高度为 150 m。

2 结果与讨论

2.1 污染物浓度变化

由图 1(a)可知,湖州的 PM_{2.5} 污染总体最严重,12 月 4 至 8 日连续 5 d 均为 SPD,最高 PM_{2.5} 日均质量浓度达 448 μg/m³,是《环境空气质量标准》(GB 3095—2012)二级标准(75 μg/m³)的 6.0 倍;杭州和金华 12 月 6 至 8 日连续 3 d 为 SPD,最高 PM_{2.5} 日均质量浓度分别达 375、473 μg/m³,是 GB 3095—2012 二级标准的 5.0、6.3 倍;宁波和舟山 12 月 6 至 7 日连续 2 d 为 SPD,最高 PM_{2.5} 日均质量浓度分别为 421、292 μg/m³,是 GB 3095—2012 二级标准的 5.6、3.9 倍。定义优良天为非污染天(NPD),计算了各地 SPD 的大气污染物平均浓度与 NPD 的平均浓度的比值(SPD/NPD)。SPD/NPD 从大到小依次为舟山(9.2)、杭州(8.8)、湖州(7.4)、宁波(7.1)、金华(6.3),说明 SPD 舟山 PM_{2.5} 的增长幅度最大,金华最低。

与 PM_{2.5} 浓度的变化趋势一致,SPD 各地的 PM₁₀ 浓度显著升高(见图 1(b)),但 PM₁₀ 的 SPD/NPD 低于 PM_{2.5},表明 SPD PM_{2.5} 的增长幅度高于 PM₁₀,说明严重污染期间二次颗粒物的贡献增加。

CO 主要来自一次燃烧源排放,在大气中较为稳定,不易发生化学转化,因此 CO 浓度反映了人为排放对此次 PM_{2.5} 污染过程的影响。如图 1(c)所示,严重污染期间各地 CO 浓度急剧上升,杭州、湖州、金华、宁波、舟山 SPD 的 CO 日均质量浓度分别达到了 2.1~2.4、2.1~3.1、1.9~2.8、2.0~2.7、2.3 mg/m³,说明一次燃烧源排放对各地的大气污染均有显著贡献。CO 的 SPD/NPD 大小为湖州(3.6)>金华(3.2)>舟山(3.1)>杭州(2.8)>宁波(2.3),说明一次污染物累积对湖州、金华、舟山的影响相对较大。

SPD 各城市 NO₂ 浓度明显升高,为 NPD 的 1.7~2.6 倍(见图 1(d))。NO_x 是硝酸盐颗粒的前体物,高浓度 NO₂ 可导致硝酸盐的大量生成^[16]。杭州 SPD 的 NO₂ 浓度及 SPD/NPD 均最高,主要原因是本地 NO_x 的排放量较大。舟山 SPD 的 NO₂ 的浓度水平最低,因为其本地 NO_x 排放较低,但 NO₂ 的 SPD/NPD 仅次于杭州,说明外来污染物输送对舟

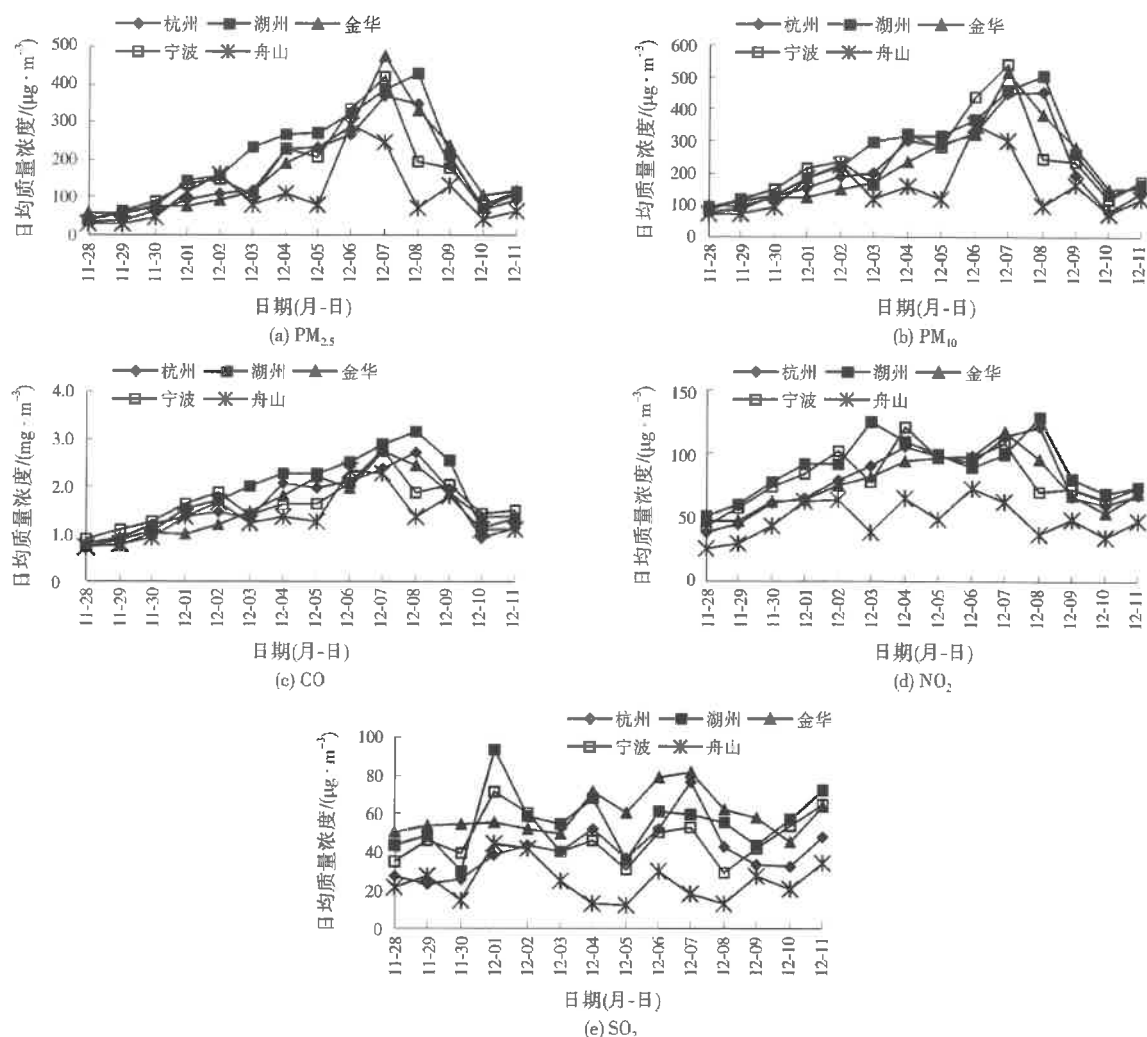


图1 各城市大气污染物日均质量浓度变化

Fig.1 Daily concentrations variation of atmospheric pollutants in five cities

山 SPD 有很大贡献。湖州和金华的 NO_x 本地排放量低于宁波,但 SPD 期间 NO_2 的浓度及 SPD/NPD 与宁波相当,主要原因是湖州和金华的大气扩散条件较差。

杭州、湖州、金华、宁波 SPD 的 SO_2 浓度并不高(见图 1(e)),其 SPD/NPD 低于 CO 和 NO_2 。 SO_2 主要来自燃煤排放,CO 和 NO_x 的主要来源除燃煤外还包括机动车尾气排放,可推测各城市机动车尾气排放对 $\text{PM}_{2.5}$ 污染有很大贡献。

2.2 气象条件对 $\text{PM}_{2.5}$ 污染的影响

大气颗粒物的生消过程受 PBLH^[17-19]、相对湿度^[11,16,20]、气温以及风向、风速^[21-23]等气象条件影响。

如图 2(a)所示,杭州在 12 月 2 日前风向变化较为频繁,在污染最重的 12 月 7 至 8 日风向以偏南风为主,日均风速为 1.3 m/s,污染物易累积,致使 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度升高;12 月 9 日开始受强劲西北风影响,

杭州 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度迅速下降。湖州的风向变化与杭州相似,12 月 4 至 6 日的主导风向分别为偏北风、偏南风、偏北风,日均风速分别为 2.1、1.1、2.7 m/s,因此北方的污染物传输对其影响较大;12 月 7 至 8 日为偏南风,日均风速分别为 1.4、1.6 m/s,污染物浓度持续上升。金华风速小但风向变化复杂,12 月 2 至 6 日的日均风速不超过 1.0 m/s;在污染最严重的 12 月 7 至 8 日以偏东风为主,日均风速分别为 1.3、0.7 m/s,大气扩散条件较差。研究期间,宁波以西北风为主,风速较小,11 月 30 日至 12 月 8 日的日均风速为 0.3~1.2 m/s,特别是 12 月 7 日基本处于静风状态。舟山也以西北风为主,但风速明显大于宁波,在污染最重的 12 月 6 至 7 日,日均风速分别为 1.5、1.0 m/s,与其他 4 个城市不同,舟山的重污染过程持续时间较短。总体而言,SPD 的风速小于 NPD,导致污染物在局地积累。

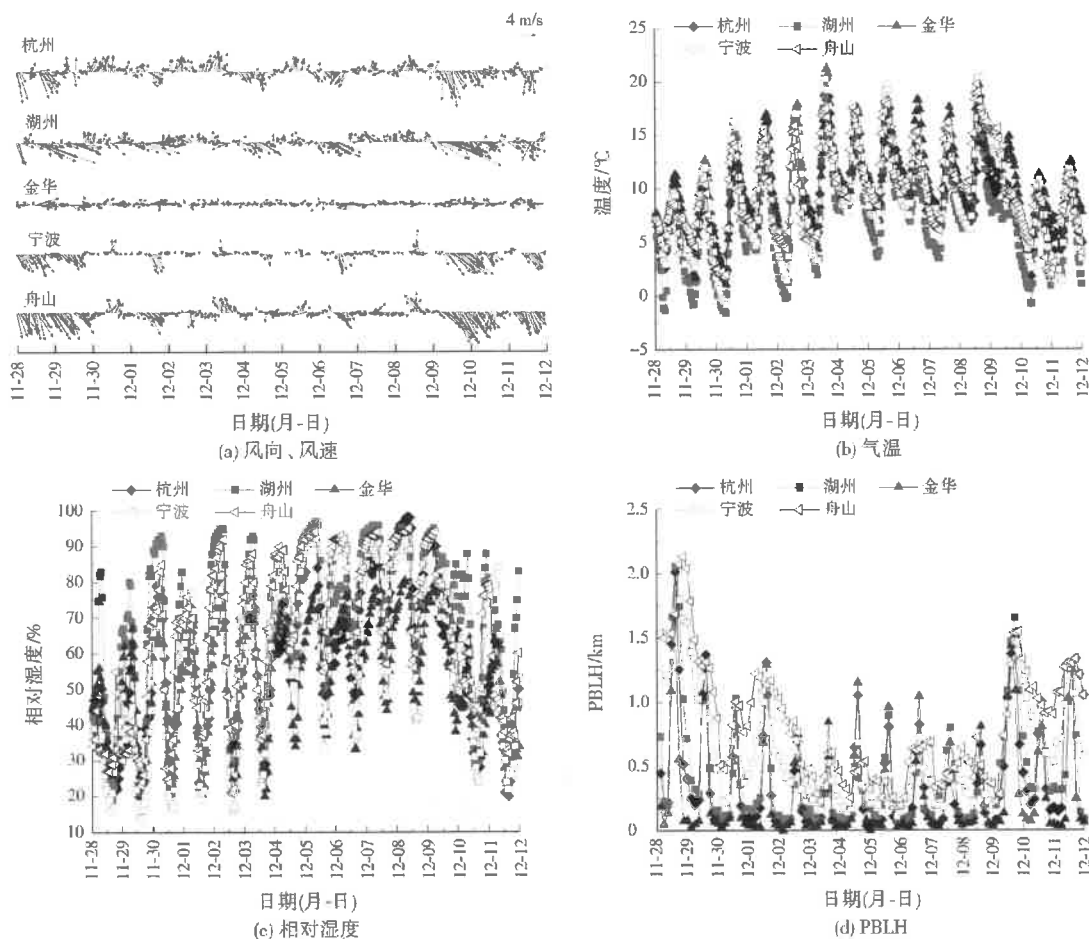


图2 各城市气象条件变化

Fig.2 Meteorological conditions variation in five cities

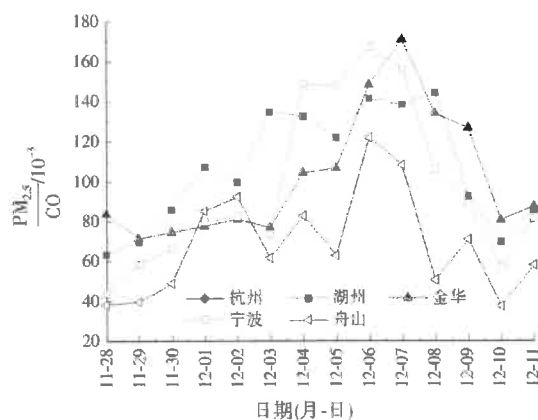
由图 2(b)和图 2(c)可见,严重污染期间,各城市的日均气温和日均相对湿度均有升高,杭州、湖州、金华、宁波、舟山 SPD 的日均气温分别为 9.6~10.9、7.5~10.9、11.2~12.9、9.8~10.8、10.4~11.6 °C,日均相对湿度分别为 66%~86%、74%~87%、58%~66%、71%~79%、80%~83%。可见,各地 SPD 均体现出暖湿特征。

分析图 2(d)可知,PM_{2.5}浓度越高,PBLH 越低。

2.3 二次颗粒物对 PM_{2.5} 污染的贡献分析

2.3.1 PM_{2.5}/CO(质量比)分析

CO 主要来自一次燃煤排放,而 PM_{2.5} 来源既包括一次燃煤排放又包括二次转化。假定研究期间各城市一次排放的 PM_{2.5} 和 CO 浓度不变,则 PM_{2.5}/CO 可用于指示一次排放与二次转化对 PM_{2.5} 贡献的大小。由图 3 可见,各城市 SPD 的 PM_{2.5}/CO 明显高于 NPD,说明严重污染期间二次颗粒物对 PM_{2.5} 的贡献率升高,二次转化是 PM_{2.5} 污染的重要来源。

图3 各城市大气 PM_{2.5}/CO 的变化Fig.3 Atmospheric PM_{2.5}/CO variation in five cities

以 NPD 的 PM_{2.5}/CO 平均值作为一次排放的 PM_{2.5}/CO,估算 SPD 时二次 PM_{2.5} 的浓度。结果显示,杭州、湖州、金华、宁波、舟山 SPD 时二次 PM_{2.5} 占总 PM_{2.5} 分别为 65%~71%、45%~54%、42%~54%、67%~70%、64%~68%,杭州、宁波、舟山 SPD 时有 60% 以上的 PM_{2.5} 来自二次转化。需要说

明的是,NPD时实际上 $PM_{2.5}$ 也有很大比例来自二次转化,因此实际大气 $PM_{2.5}$ 中二次颗粒物的占比只会更高。

2.3.2 $PM_{2.5}$ 的化学组分分析

由图4可见,杭州SPD时 $PM_{2.5}$ 中二次组分 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 NH_4^+ 急剧上升,12月1至3日 $PM_{2.5}$ 日均浓度比NPD时的 $PM_{2.5}$ 平均日均浓度高2.6~3.4倍,而SPD时比NPD时高7.3~9.7倍,相应地, NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 NH_4^+ 分别从12月1至3日的高出2.4~3.4、3.0~3.8、2.8~3.7倍上升至11.6~11.9、13.6~17.8、12.2~14.5倍。二次组分 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 NH_4^+ 浓度之和(SNA)在 $PM_{2.5}$ 中的占比显著上升,12月7至8日SNA占 $PM_{2.5}$ 的质量分数均高于40%,表明二次颗粒物的生成是杭州 $PM_{2.5}$ 污染的重要来源,需要加强其前体物的排放控制。相对而言,主要来自一次排放的 Na^+ 、 K^+ 、 Ca^{2+} 和 Mg^{2+} 的增长幅度均低于 $PM_{2.5}$,表明一次排放对此次污染的贡献相对较小。

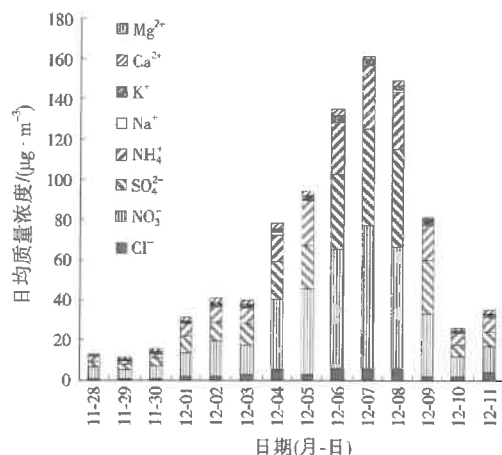


图4 杭州 $PM_{2.5}$ 中水溶性离子化学组成

Fig.4 Chemical components of water-soluble ions in $PM_{2.5}$ of Hangzhou

图5给出了杭州 $PM_{2.5}$ 中 NH_4^+ 的当量浓度(记为 $[NH_4^+]$)、 SO_4^{2-} 和 NO_3^- 的当量浓度之和(记为 $[SO_4^{2-} + NO_3^-]$)与相对湿度的关系。由图5可知,相对湿度大于60%条件下的 $[NH_4^+]$ 和 $[SO_4^{2-} + NO_3^-]$ 明显高于相对湿度小于50%条件下的 $[NH_4^+]$ 和 $[SO_4^{2-} + NO_3^-]$,可见相对湿度是影响杭州硫酸盐、硝酸盐颗粒生成的重要因素。

气态 NO_2 和 SO_2 向颗粒态 NO_3^- 和 SO_4^{2-} 的转化效率可分别用氮转化率(NOR)和硫转化率(SOR)来表征^{[5]7}。杭州 NOR 和 SOR 与相对湿度的关系如图6所示,NOR和SOR均随相对湿度升高而上

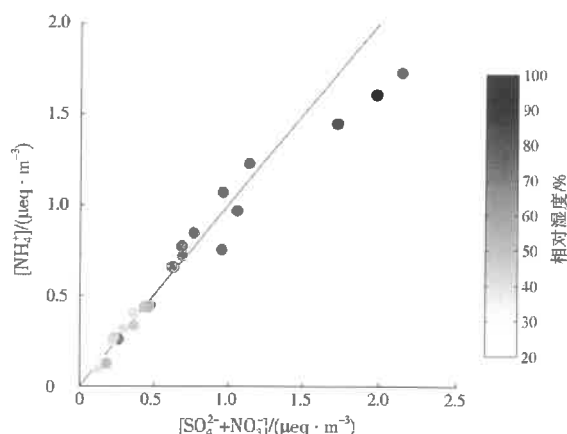


图5 杭州 $PM_{2.5}$ 中 $[NH_4^+]$ 和 $[SO_4^{2-} + NO_3^-]$ 与相对湿度的关系

Fig.5 Relationship of $[NH_4^+]$ and $[SO_4^{2-} + NO_3^-]$ with relative humidity in $PM_{2.5}$ of Hangzhou

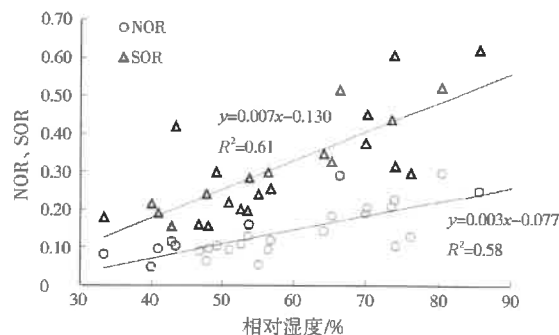


图6 杭州 SOR 和 NOR 与相对湿度的关系

Fig.6 Relationship of NOR and SOR with relative humidity of Hangzhou

升,SOR 的增长更加明显,说明在相对湿度较高的条件下,气态 SO_2 向颗粒态 SO_4^{2-} 的转化效率更高。严重污染期间杭州相对湿度较高而风速较低,NOR 和 SOR 较高,可导致二次颗粒物浓度急剧上升。

2.4 区域传输的影响

杭州和湖州的后向轨迹分布在长三角地区,主要受江苏、安徽以及浙江省内其他城市的影响,其中6至7日主要受偏北方向气团的影响,而8日主要受偏南方向气团的影响,南北气团交汇导致外来输送及本地污染物叠加, $PM_{2.5}$ 污染程度急剧上升。金华的后向轨迹分布在杭州、绍兴、湖州以及江苏西南部和安徽东南部,金华的后向轨迹较短,主要受本地及邻近的杭州、绍兴的影响。宁波和舟山的后向轨迹较为相似,4至5日主要受东海海洋气团影响;而6至7日SPD受到上海、江苏、安徽及东海上空气团传输的影响,期间宁波的风速低于舟山、气团轨迹更短,因此 $PM_{2.5}$ 污染受本地排放的影响相对更大;8日宁波和舟山均受东海海洋气团的影响,污染物浓度开始下降。

3 结 论

2013 年 12 月 4 至 8 日长三角地区出现一次大范围的 PM_{2.5} 严重污染。浙江典型城市杭州、湖州、金华、宁波、舟山 SPD 的风速和 PBLH 明显低于 NPD, 而气温和相对湿度则相反, SPD 呈暖湿特征, 有利于二次颗粒物的生成和增长。各城市的 PM_{2.5}/CO 与 PM_{2.5} 变化规律一致, 说明二次颗粒物对 PM_{2.5} 的贡献显著。SPD 时杭州 NO₃⁻、SO₄²⁻、NH₄⁺ 的增长幅度显著高于 PM_{2.5}, 且 NOR 和 SOR 随相对湿度升高而上升, 表明硫酸盐和硝酸盐颗粒的生成是 PM_{2.5} 污染的重要来源。改善 PM_{2.5} 污染需要加强颗粒物前体物的排放控制。气团后向轨迹研究结果显示, SPD 时杭州和湖州主要受江苏、安徽及浙江省内其他城市气团传输的影响, 宁波和舟山主要受上海、江苏、安徽及东海上空气团传输的影响, 而地处浙中盆地的金华主要受本地及邻近的杭州、绍兴的影响。

参考文献:

- [1] HUANG K, ZHUANG G S, LIN Y F, et al. Typical types and formation mechanisms of haze in an Eastern Asia megacity, Shanghai[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2012, 12(1): 105-124.
- [2] LI W J, SHAO L Y, BUSECK P R. Haze types in Beijing and the influence of agricultural biomass burning[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2010, 10(17): 8119-8130.
- [3] SUN Y L, WANG Z F, DONG H B, et al. Characterization of summer organic and inorganic aerosols in Beijing, China with an Aerosol Chemical Speciation Monitor[J]. Atmospheric Environment, 2012, 51: 250-259.
- [4] SUN Y L, WANG Z F, FU P Q, et al. Aerosol composition, sources and processes during wintertime in Beijing, China[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2013, 13(9): 4577-4592.
- [5] SUN Y L, JIANG Q, WANG Z F, et al. Investigation of the sources and evolution processes of severe haze pollution in Beijing in January 2013[J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2014, 119(7).
- [6] KANG H Q, ZHU B, SU J F, et al. Analysis of a long-lasting haze episode in Nanjing, China[J]. Atmospheric Research, 2013, 120: 78-87.
- [7] QUAN J N, TIE X X, ZHANG Q, et al. Characteristics of heavy aerosol pollution during the 2012-2013 winter in Beijing, China[J]. Atmospheric Environment, 2014, 88: 83-89.
- [8] LIN Y F, HUANG K, ZHUANG G S, et al. A multi-year evolution of aerosol chemistry impacting visibility and haze formation over an Eastern Asia megacity, Shanghai[J]. Atmospheric Environment, 2014, 92: 76-86.
- [9] 童尧青, 银燕, 钱凌, 等. 南京地区霾天气特征分析[J]. 中国环境科学, 2007, 27(5): 584-588.
- [10] 陶俊, 柴发合, 高健. 16 届亚运会期间广州城区 PM_{2.5} 化学组分特征及其对霾天气的影响[J]. 环境科学, 2013, 34(2): 409-415.
- [11] WANG Q Z, ZHUANG G S, HUANG K, et al. Probing the severe haze pollution in three typical regions of China: characteristics, sources and regional impacts[J]. Atmospheric Environment, 2015, 120.
- [12] WANG Z F, LI J, WANG Z, et al. 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, 2014, 57(1): 3-13.
- [13] 王肖肖, 程真, 赵斌, 等. 长三角区域霾污染特征、来源及调控策略[M]. 北京: 科学出版社, 2016.
- [14] 徐昶, 沈建东, 何曦, 等. 杭州无车日大气细颗粒物化学组成形成机制及光学特性[J]. 中国环境科学, 2013, 33(3): 392-401.
- [15] 李莉, 蔡盈琳, 周敏. 2013 年 12 月中国中东部地区严重灰霾期间上海市颗粒物的输送途径及潜在源区贡献分析[J]. 环境科学, 2015, 36(7): 2327-2336.
- [16] CHENG Y F, ZHENG G J, WEI C, et al. Reactive nitrogen chemistry in aerosol water as a source of sulfate during haze events in China[J]. Science Advances, 2016, 2(12): e1601530.
- [17] PENG Z R, WANG D S, WANG Z Y, et al. A study of vertical distribution patterns of PM_{2.5} concentrations based on ambient monitoring with unmanned aerial vehicles: a case in Hangzhou, China[J]. Atmospheric Environment, 2015, 123: 357-369.
- [18] LIU X G, LI J, QU Y, et al. Formation and evolution mechanism of regional haze: a case study in the megacity Beijing, China[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2013, 13(9): 4501-4514.
- [19] WANG M Y, CAO C X, LI G H, et al. Analysis of a severe prolonged regional haze episode in the Yangtze River Delta, China[J]. Atmospheric Environment, 2015, 102: 112-121.
- [20] SUN Y L, WANG Z F, FU P Q, et al. The impact of relative humidity on aerosol composition and evolution processes during wintertime in Beijing, China[J]. Atmospheric Environment, 2013, 77: 927-934.
- [21] ZHANG R H, LI Q, ZHANG R N. Meteorological conditions for the persistent severe fog and haze event over eastern China in January 2013[J]. Science China Earth Sciences, 2014, 57(1): 26-35.
- [22] ZHANG Q, QUAN J N, TIE X X, et al. Effects of meteorology and secondary particle formation on visibility during heavy haze events in Beijing, China[J]. Science of the Total Environment, 2014, 502: 578-584.
- [23] ZHANG H L, WANG Y G, HU J L, et al. Relationships between meteorological parameters and criteria air pollutants in three megacities in China[J]. Environmental Research, 2015, 140: 242-254.

编辑: 陈锡超 (收稿日期: 2018-09-14)