

徐晓斌. 我国霾和光化学污染观测研究进展. 应用气象学报, 2016, 27(5): 604-619.
doi:10.11898/1001-7313.20160509

我国霾和光化学污染观测研究进展

徐晓斌*

(中国气象科学研究院灾害天气国家重点实验室, 中国气象局大气化学重点开放实验室, 北京 100081)

摘 要

霾和光化学污染已成为我国最严重的环境气象灾害, 受到政府和公众广泛关注。针对我国的环境气象问题, 国内外科研人员开展了大量研究工作, 发表了一系列的研究成果。该文对近年来我国霾和光化学污染的观测、分析和影响研究方面的文献进行综述, 为将来相关研究提供基础。在霾污染方面, 主要回顾了霾的现象与判别、组成与来源、影响霾的气象因素、霾的长期趋势等方面的研究进展。在光化学污染方面, 主要回顾了污染的特征与水平、污染的区域化、臭氧垂直分布、地面臭氧影响因素、臭氧污染发展趋势等方面的研究进展。此外, 还概括了霾和光化学污染危害研究主要成果, 在文献综述的基础上, 提出了未来研究中值得关注的几方面问题, 包括进一步加强霾和雾的科学判识方法、污染物相互作用、污染-气象-化学-生态间耦合效应研究, 特别关注光化学污染发展态势, 加强长期观测资料的积累、分析与应用等。

关键词: 霾污染; 光化学污染; 气象影响; 污染危害

引 言

改革开放后, 我国经济高速发展, 人口继续膨胀, 城镇化快速发展, 生产生活方式也发生了巨变。根据国家统计局资料(<http://data.stats.gov.cn/>), 1980—2014 年我国国内生产总值增长了近 140 倍; 人口从 9.87 亿增长到 13.68 亿, 其中城镇人口从 1.91 亿增长到 7.49 亿; 能源消耗总量从 6.03 亿吨增长到 42.60 亿吨标准煤。由于我国的能源构成至今主要依赖煤炭、石油等矿物燃料, 且能源清洁利用水平低, 污染排放强度大, 加上工业生产排放以及农业、畜牧业和居民生活排放等, 我国大气污染物人为排放量出现了大幅增长^[1-2], 直到 2006 年前后二氧化硫(SO₂)和粒径小于等于 10 μm 的颗粒物(PM₁₀)浓度才在大力控制下出现下降趋势^[3-4]。

我国大气污染物长期高排放和高增长带来的大气环境后果是由人为污染引起的霾天气频发、霾污染加重, 同时也造成光化学污染和酸雨污染。这些

污染都不是单一污染物排放的结果, 而是多污染物在气象因素影响下, 经过复杂的大气化学转化形成的, 直接或间接地影响到天气和气候。在上述污染问题中, 区域性酸雨问题较早受到关注, 尽管如此, 仍然发展了相当长时间, 以至于到 2006 年达到有长期观测以来的最严重程度, 这主要与我国长期 SO₂ 高排放有关^[5]。随着 SO₂ 排放控制效果显现, 我国酸雨污染程度逐渐减轻, 范围逐渐缩小。然而, 大约进入 21 世纪以来, 我国原已存在的霾污染和光化学污染问题变得越来越突出, 受到科研人员、政府和公众的广泛关注。对霾和光化学污染主要污染物的监测、预报和对公众的服务已成为环境和气象两部门的基本业务。

本文主要针对我国霾和光化学污染两方面的研究进展进行概要性回顾和归纳。由于大气环境问题涉及多个领域和侧面, 限于篇幅, 主要侧重于霾和光化学污染的观测以及观测资料的分析研究, 同时简要回顾这些污染对健康、生态等方面的影响研究进展。有关我国霾和光化学污染的化学和物理过程研

2016-06-04 收到, 2016-07-19 收到再改稿。

资助项目: 国家自然科学基金项目(41330433), 公益性行业(气象)科研专项(GYHY201206015)

* email: xuxb@camsma.cn

究、天气与气候效应研究、模拟研究等方面可参阅早期综述^[6]。由于相关文献的数量巨大,本文以近10年部分代表性文献为主进行归纳。

1 霾现象、成因与趋势

1.1 霾的现象与判别

霾和雾均属于低能见度天气现象。根据现行国家标准和气象行业标准定义,雾是悬浮在近地层大气中的大量微细乳白色水滴和冰晶的可见集合体,其能见度低于1.0 km,能见度在1.0~10.0 km的记作轻雾(GB/T 27964-2011),而霾是大量极细微的干尘粒等均匀地浮游在空中,使能见度小于10.0 km的空气普遍混浊现象(QX/T 113-2010)。雾和霾的形成均离不开气溶胶粒子,但在雾形成过程中,气溶胶仅作为凝结核参与,只占雾滴质量的极小份额,而霾的形成则是大量气溶胶粒子积累的过程。霾的出现一定标志着高的气溶胶污染浓度,气溶胶颗粒来自人为或自然排放,而雾却完全可以出现在非常清洁的、只含背景气溶胶的条件下。此外,雾的形成需要相对湿度接近100%的条件,而霾的形成则无需这样高的相对湿度^[7]。由此可见,雾和霾在概念上有本质区别,因此,在气象观测、记录和分析中两者作为不同天气现象对待。

在人为污染排放显著的区域,尤其是大城市地区,雾和霾总伴随不同程度的气溶胶污染,因此,在业务观测的实践中,正确辨别雾和霾有时却并不容易。雾和霾区别的主要困难在于对出现雾、霾天气现象时的相对湿度界限的把握。不同机构,甚至同一机构在不同时期,采用的相对湿度参考界限不完全一致^[7]。如对于霾的相对湿度上限,世界气象组织(WMO)1984年的建议是大约低于80%,1996年的建议是比80%低某个百分数;对于轻雾的相对湿度,WMO在1984年的建议是高相对湿度,1996年的建议是比100%低,2005年的建议是大于95%^[8-10]。英国天气局认为霾的相对湿度低于95%,而轻雾的相对湿度范围为95%~100%。美国气象学会也将轻雾的相对湿度范围定义为95%~100%(<http://glossary.ametsoc.org/wiki/Mist>)。我国气象标准对于轻雾的湿度条件只表述为“空气较潮湿、稳定”,没有具体的相对湿度界限(QX/T 48-2007),而对于霾的界定是,如果排除降水、沙尘暴等因素引起的能见度低于10.0 km的情况,当相对湿度低于80%时

认为是霾,相对湿度为80%~95%时看大气成分的指标,既可能是霾,也可能是轻雾(QX/T 113-2010)。由于客观上存在霾和轻雾有时难以区分的问题,加上科学认识和统一标准的欠缺,在实践中,将霾记录为轻雾或反之时有发生。因为过去没有全国统一的标准,不同地方霾与轻雾的相对湿度界限把握也不一致,南方一些地区曾以70%甚至60%作为界限^[11]。这种情况给雾和霾相关的气候资料质量带来了显著的不确定度。在2010年的气象行业标准《霾的观测和预报等级》(QX/T 113-2010)首次引入了大气成分指标作为雾、霾的判别依据,然而由于实际业务观测中对相关要素缺乏观测,以及对气溶胶的亲水增长没有考虑,该标准在应用中还存在一些问题。随着对气溶胶及其对能见度影响的研究越来越多,人们对雾、霾成因及其与气溶胶关系的认识也越来越深入,而关于霾判别的方法和标准也随之不断改进。

近年来,对全国以及不同的区域、省乃至城市的霾和雾相关的长期趋势和特征分析的研究工作非常多。严格的数据质量控制对这些研究很有必要。然而由于缺乏统一标准,近些年不同学者在涉及雾、霾资料的质量控制方面也采用了不尽相同的方法,以至在霾和雾的相对湿度界限方面,有些采用了80%^[12-13],有些采用了90%^[14-16],还有些直接用观测员记录的天气现象资料开展分析^[17-18]。这也导致不同研究得到雾、霾趋势分析并不具有很好的可比性。此外,近年有些学者从资料分析出发,指出判别霾与雾相对湿度阈值可能有地域差异和气候变化因素的影响^[7,13,19],但目前尚未能用大气物理学理论解释。因此,有关雾与霾判别方法和标准是当前气象业务迫切需要解决的问题,未来需要开展更多的研究。

1.2 霾粒子的组成与来源

形成霾的基本条件是物质基础和外部气象条件。从物质方面讲,霾粒子也就是大气中的气溶胶粒子,它们既来自自然排放,也来自人为活动排放,既来自直接排放,也来自气体的化学转化。自然排放放在古代以及现代人为污染较少的区域是霾粒子的主要来源,如沙尘、扬尘、火山喷发、森林大火、海盐等^[15]。在当今我国的人口密集区域,尤其是东部的京津冀、长江三角洲(简称长三角)、珠江三角洲(简称珠三角)和一些大城市地区,霾主要不是自然排放造成的,而基本是人为排放的结果^[20]。近年来,在

我国开展了非常多的雾、霾期间和日常条件下气溶胶组成的观测和分析研究工作^[21-34]。由于气溶胶组分十分复杂,全面解析气溶胶中的各种化学组分目前还难以做到,但一些主要成分,或者以归类方式的解析工作已基本实现。

我国霾污染期间采集的气溶胶组成主要为硫酸盐、硝酸盐、铵盐、有机物、金属组分、矿物组分、黑碳等等。受自然条件影响,沙尘和土壤尘对我国背景气溶胶贡献相对于欧美等国更大,矿物组分在空气动力学粒径 $2.5 \mu\text{m}$ 以上的气溶胶颗粒中占比相对较高。对我国不同区域 24 个站 9 年的系统观测表明, $\text{PM}_{2.5}/\text{PM}_{10}$ 的范围为 $0.40\sim 0.90$, $\text{PM}_{1.0}/\text{PM}_{2.5}$ 的范围为 $0.66\sim 0.91$,西北、东北和高原站点比值较低,东部和南方站点比值较高^[35]。霾污染的形成主要与 $\text{PM}_{2.5}$ 有关,尤其是其中的 PM_{1} 占比最大。2007—2008 年在北京测量 PM_{1} 的组成中,最主要成分为有机物(41%),其次是硫酸盐(16%)、硝酸盐(13%)、黑碳(11%),还有少量铵盐(8%)、矿物组分(7%)和氯化物(3%)等^[36]。在不考虑矿物组分、黑碳等的情况下,可采用气溶胶质谱仪(AMS)对 PM_{1} 气溶胶进行在线测量。采用这种技术在长三角的临安大气本底站测量结果表明,有机物、硝酸盐、硫酸盐、铵盐和氯化物占比分别为 46%, 23%, 16%, 12% 和 1.8%^[27]。在泰山站的测量结果表明,边界层气团中的有机物、硫酸盐、硝酸盐、铵盐和氯化物占比分别为 30%, 31%, 19%, 18% 和 2%^[24]。由此可见,有机物、硫酸盐、硝酸盐和铵盐是 4 类最主要的气溶胶组分。气溶胶中的有机物由很多种不挥发和半挥发性的有机化合物构成,人为源和自然源对其均有一定贡献。硫酸盐和硝酸盐来自 SO_2 和氮氧化物(NO_x)的转化,而后者基本是人为排放。铵盐是大气中来自人为和自然排放的氨气(NH_3),在中和硫酸和硝酸的过程中进入到气溶胶颗粒。这 4 类物质在霾污染形成过程中往往出现所谓“爆发性增长”。如 2013 年 1 月华北地区的重度霾污染形成过程中, $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度出现爆发性增长,增长速率达到 $88 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{h}^{-1}$,有机物、硫酸盐和硝酸盐是 $\text{PM}_{2.5}$ 爆发性增长的主因,三者的增长速率分别达到 $19, 12 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{h}^{-1}$ 和 $6 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{h}^{-1}$,三者对 PM_{1} 和 $\text{PM}_{2.5}$ 的贡献约占 90% 和 42%^[37]。

我国气溶胶直接排放量很大,仅燃煤火力发电和水泥生产两大人为排放源近些年 $\text{PM}_{2.5}$ 的排放量仍有约 $3 \times 10^6 \text{ t}$ ^[38-39],加上其他各种人为排放,总量

约为 $1 \times 10^7 \text{ t}$ ^[1]。尽管如此,在霾污染形成中,直接排放的作用可能是次要的,二次气溶胶的形成很可能起主要作用。研究表明,在北京气溶胶污染受气象条件控制周期性出现,除了少量的直接排放和区域输送之外,大气气溶胶受交替出现的成核和增长两者过程的控制;成核过程出现在污染期之前,气-粒转化产生大量的纳米级粒子,随后这些核模态粒子经过多日的粒径增长,从而可使气溶胶质量浓度积累到数百微克立方米,形成严重的霾污染^[40]。这意味着,气态污染物转化形成的二次气溶胶是重度霾污染的主要物质来源,控制这样的霾污染必须从大力削减气溶胶前体物气体入手^[40]。这些前体物气体主要是 SO_2 , NO_x , NH_3 和挥发性有机物(VOCs),而我国这些物质的排放量都是巨大的^[41-43]。

1.3 影响霾的气象因素

污染排放是霾污染形成的必要条件,而气溶胶能否在边界层积累,并最终形成显著影响能见度的霾污染,主要取决于气象条件。关于霾污染形成的气象条件,近年我国学者也有大量研究^[12,29,32,44-48]。霾粒子是大气中悬浮的气溶胶颗粒,可以从污染源地输送到相对清洁的地区,也可以在气流传输路径上由气态前体物转化产生。大气环流、天气形势、地形特征等均可以影响到气流传输,从而与污染源地分布相配合,在不同时段带来不同污染程度的气团,造成不同的输送影响^[46,49-51]。在相对小的区域,如果污染源地分布极不均匀,也会因地面风向的差异而造成污染程度的显著差异^[46-47,52]。对流层低层或近地面风速对霾污染的输送与积累也很关键。对远距离输送来讲,风速决定了污染能不能以及以多快的速度到达某地。可是对于城市、工业区等污染源地,很小的风速往往导致较严重的霾污染,需要地面风速超过某个阈值之后才能显著改善。如广州近地面风速阈值为 1.5 m/s ^[52],西安近七成的霾出现于风速 1.5 m/s 以下^[53],南京近九成霾出现于风速 4 m/s 以下^[46],杭州的霾天气主要出现于 $1\sim 4 \text{ m/s}$ 风速下^[51]。风速对污染区局地霾影响的效应实际上体现的是污染物在水平和垂直方向上的扩散输送能力。水平方向上,污染物传输越慢,则当地的污染积累越快、越多;垂直方向上,如果没有强烈的地表加热,较小的风速往往意味着较稳定的边界层、较弱的垂直混合能力和较低的混合空间。这就是所谓的静稳天气效应,往往伴随着稳定层结甚至强逆温等不利于污染物垂直混合的边界层结构^[51,54-55]。另外,

霾增加时往往对应着大气垂直风切变的减弱,所造成的天气尺度扰动减弱以及垂直混合减弱,均对霾的增强具有重要影响^[44,56]。其他一些气象因素也能影响霾污染的生消,较高相对湿度能促进气溶胶亲水增长和非均相化学转化^[28,57],从而显著降低能见度^[46,58];降水有助于清除污染物,当强度和持续时间达到一定程度时可能减轻霾污染^[52,59]。受天气形势控制,有时静稳和高湿度气象条件持续多日存在,往往造成持续性霾污染过程,其污染程度更重,影响时间更长,因而危害也更大^[8]。

1.4 霾的长期趋势与气候变化影响

由于上述气象因素与霾污染的增强或减弱密切相关,在同一个区域污染源相对稳定的情况之下,如果这些气象因子出现某种显著的长期趋势,即在气候尺度上出现倾向性变化,则霾污染的频率和强度势必也会出现长期趋势。我国因青藏高原及黄土高原等形成的西高东低的台阶式地形,使东部地区具有一定的“避风港”效应,造成东部地区大气环境容量较低,在扩散输送条件出现年代际气候波动的情况下,如果叠加上较强排放,霾污染必然增多^[60]。在气候较为异常的年份,恶劣气象条件可造成大范围的重度霾天气,如 2013 年 1 月、12 月等时段多个区域出现的重度霾污染事件^[12,44]。事实上,我国中东部冬季的霾事件具有显著的年际变化,与东亚季风的变化密切相关。东亚冬季风对我国中东部的霾事件的发生具有重要影响,冬季风弱时霾增强,冬季风强时对应着霾减弱^[56]。

我国学者在 20 世纪末之前已开始关注不同区域大气光学厚度(AOD)的分布特征和变化趋势的问题,并发现 AOD 有明显增长趋势^[61]。后期的研究表明,我国 AOD 在总体上升的趋势下也存在不同站点、不同时间段的差异^[62-63]。在这种趋势中,因为雾和轻雾等因素引起的能见度长期变化也该考虑^[64]。研究表明,AOD 与地面测量的气溶胶质量浓度存在一定的正相关关系^[65],因此,在排除了雾、轻雾等因素后,AOD 趋势在一定程度上可反映霾污染的趋势。近些年有许多对我国不同区域或全国观测到的霾日或能见度的趋势分析工作,大多揭示了非常明显的霾日或气溶胶污染增加的长期变化趋势^[14-19,66-67],但也有些地区出现不一样的特征,河北中南部霾日在 1995 年前呈明显的增加趋势,1995—2003 年相对稳定,2003—2010 年则显著减少。从全国而言,霾日大约在 1980 年之前有一个持续增加的

阶段,其后略有减少,但维持在较高水平,2005 年之后又大幅增加,近年几乎达到 1980 年前后的 2 倍左右^[19]。霾的变化趋势或多或少都有一些气候变化带来的影响,平均风速的降低、边界层高度的降低、相对湿度的下降、降水日减少等变化^[14,16-18,66]。但气候变化带来的所有不利气象条件只能是外因,高强度人为活动带来的污染排放的不断增加才是我国霾和其他污染加重的根本原因^[33,39,60]。也有一些学者研究城市化对霾污染的影响^[16,68],其本质仍是伴随城市化过程的污染排放增加、城市下垫面改变、城市气象条件的变化。

2 光化学污染

2.1 光化学污染特征与水平

光化学污染主要指大气中的气态有机物、氮氧化物和一氧化碳等,在光化学反应驱动下,在对流层,尤其是在边界层形成的以高浓度臭氧(O₃)、过氧乙酰硝酸酯、醛酮类物质以及超细颗粒为特征的污染现象。在高强度污染排放和不利的天气、地形等条件共同作用下,一些大城市和工业区及其下游地区可出现严重的光化学污染,称为光化学烟雾,美国洛杉矶烟雾就属于这种污染类型。光化学污染最重要的标志物是 O₃,因此,对光化学污染的大量测量与分析工作集中在地面 O₃ 或对流层 O₃ 方面^[69-114]。由于大气中 90% 以上的 O₃ 存在于平流层,而且自然产生的平流层 O₃ 会通过向下输送进入到对流层甚至边界层,因此,即使是对流层 O₃ 乃至地面 O₃ 也有一部分与人为污染无关。

我国的 O₃ 污染问题首先发现于兰州西固地区。20 世纪 70 年代中期开始,当地就出现居民眼睛、植物受害和低能见度事件,是由当地炼油厂和电厂等排放引起的光化学污染造成的^[115]。直到 20 世纪 80 年代初,该地区 O₃ 浓度仍然很高,甚至经常能超过 200×10^{-9} ^[106,116]。随后高浓度 O₃ 污染逐渐在北京出现,1997 年夏季 O₃ 平均峰值达到 120×10^{-9} ,极端时接近 200×10^{-9} ^[117]。当城市 O₃ 问题引起关注后,我国地面 O₃ 的观测研究工作在多地陆续展开,但主要集中在污染最为严重的华北^[72,75,94-95,98-102,110,118-119]、珠三角^[89,120-121]和长三角^[71,74,90,104,109,122-123]等地区。

过去十余年的 O₃ 观测结果表明,在我国上述地区均存在不同程度的光化学污染,在污染季节出

现 100×10^{-9} 以上的 O_3 浓度比较频繁,最严重的一次是在北京昌平观测到的小时平均值为 286×10^{-9} [95],这远远超过我国当前国家环境空气质量标准规定的小时平均 O_3 浓度限值 ($200 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 相当于 93×10^{-9}) (GB 3095-2012),也达到了光化学烟雾的等级 (QX/T 241-2014)。从区域差异来看,地面 O_3 污染最为严重的属京津冀地区,而珠三角和长三角两地区则不相上下,这与 3 个区域对流层 O_3 含量的相对高低基本一致 [96]。有些研究工作的观测数据覆盖 1 年或更长的观测时间,可探讨 O_3 的季节差异。在 O_3 污染的主要季节上,3 个区域也表现出了不同的特征。华北地区一般 6—9 月是高 O_3 污染期,月平均峰值一般出现在 6 月,9 月出现次峰,7—8 月略低于前后月份 [72,75,118]。长三角地区在 5—6 月和 9—10 月可出现水平相当的 O_3 峰值,峰值相对高低和出现月份可随年度和地点而变化,7—8 月则出现明显的低值,沿海地区尤其显著 [85,90,104,122]。珠三角地区的 O_3 峰值通常出现在秋季的 10—11 月,有时也会在初冬出现,春季出现次峰 [121,124]。在上述 3 个区域,夏季的 7—8 月平均值通常不是全年最高,一般只是比冬季略高,这是夏季风降水等因素削弱了 O_3 生成和积累的结果。

在关注城市污染地区 O_3 问题的同时,我国还关注到了偏远地区和农村地区的 O_3 问题。20 世纪末期,国家自然科学基金委设立重大项目“中国地区大气臭氧变化及其对气候环境的影响”,于 1994—1995 年在我国境内的 3 个大气本底站点(属世界气象组织全球大气观测网络(WMO/GAW))开展了跨度为 1 年的 O_3 及其前体物的系统性观测研究 [112,125-126]。结果表明,长三角地区的临安本底站夏季 O_3 浓度较高(平均峰值达到 80×10^{-9}),有光化学污染特征;东北平原的龙凤山本底站夏、秋季略高,但总体较低;青海的瓦里关全球本底站夏季平均最高且各季节的日变化均很小,体现了其高海拔全球本底站特征。在随后的国家自然科学基金重大项目“长江三角洲低层大气物理化学过程及其与生态系统的相互作用”的框架下,又于 1999—2000 年在长三角地区的本底站点和农村站点开展了 O_3 等观测 [90]。此后的一些科研项目中也在更多的农村及背景站点开展了 O_3 的观测研究 [73,86,99,102,110,118,120-121,127]。这些研究结果表明,农村地区 O_3 污染程度实际上并不比城市地区轻,有时甚至超过城区的污染。2008—2009 年观测表明,北京市 O_3 平均值(中国气象局测点)比

河北固城站略低,更比北京密云境内的上甸子本底站低 [118]。北京行政区域内的共 35 个城区和郊区站点 2012—2013 年的观测表明,城区站点各个季节的 O_3 平均浓度远远低于郊区站点 [101]。由此可见, O_3 污染已经不再局限于前体物排放源地附近,已成为一种区域性的污染现象。

我国气象部门对于 O_3 等区域性污染问题很早便给予关注,1994 年已在青海境内的瓦里关本底站开展了地面 O_3 长期观测 [128]。2005 年开始,又陆续在华北的上甸子本底站、长三角的临安本底站、东北平原的龙凤山本底站、云南的香格里拉本底站和新疆的阿克达拉本底站建立了地面 O_3 等相关气体的长期观测业务 [75,83,85,129],为我国大尺度、区域性 O_3 变化研究奠定了良好的基础。

2.2 输送与臭氧污染区域化

光化学污染的区域化一方面与当今污染排放的区域化有关,另一方面也与气流传输密切相关。我国东部人口密集,生产与生活排放都很强。改革开放后污染企业也向农村地区扩散,加上交通运输和农业活动等排放的影响,我国东部,尤其是华北平原、长三角和珠三角等地区的人为排放源已呈现明显的区域分布 [41],加上 O_3 前体物还有部分来自植物和土壤等自然排放,具备了形成区域性光化学污染的客观条件。气流输送能将城市或工业区的污染物向下游传输,并在传输过程中生成更多 O_3 等光化学产物 [75,86,99,101]。定量评估表明,华北平原污染气团的输送作用可导致其北部的上甸子本底站 O_3 平均值非常显著的抬升,全年平均达 22×10^{-9} ,夏季甚至高达 29×10^{-9} [75]。华北平原由于西侧受太行山脉阻挡、北部受燕山山脉阻挡,存在平原-山地效应,再加上副热带高压等的配合,几乎常年存在周期性的西南—东北的气流输送和回流,其结果是该区域 O_3 及其前体物等污染物非常容易在区域内输送和再分配 [72,75,86,99,102,118],极端情况下甚至出现跨区域输送,可从华北平原快速输送至东北平原上空 [130]。污染输送导致的下游 O_3 抬升和 O_3 污染的区域化问题在其他地区也都明显存在,如在珠三角 [131-132] 和长三角地区 [122,133-134]。珠三角自身及周边复杂的地形以及海-陆风、气旋、城市化等带来的热力循环、季风等因素都是促进污染输送的重要因素。长三角地区输送与该地区天气系统、季风气流和沿江污染源分布和输送等因素有关。由于城市污染烟羽在向乡村地区输送过程中不断产生 O_3 等二

次污染物,而乡村地区自身排放的前体物和从污染区输送来的前体物又导致更多的局地生成,因此,在城市气流的下游地区往往能测到远高于城区的 O_3 浓度^[86,135]。

2.3 臭氧垂直分布

O_3 的垂直分布探测与研究是大气科学的一项重要内容,既关系到 O_3 总量与平流层 O_3 变化问题,也关系到对流层、边界层 O_3 分布与变化问题。从光化学污染研究的角度,对流层尤其是低对流层 O_3 的垂直分布更受关注。与地面 O_3 观测研究相比,我国在 O_3 垂直分布的探测研究方面总体仍偏少。早期 O_3 的垂直探测主要依赖于球载探空平台携带进口的 O_3 探空仪进行探测,属于比较昂贵的手段,但对于平流层 O_3 破坏和气候变化研究是值得的^[136]。随着青藏高原 O_3 低值中心的发现^[137],在该地区开展了多次 O_3 探空观测^[138-141]。在第 3 次青藏高原科学试验的推动下,这方面工作还在陆续进行中。除青藏高原地区之外,我国还在北京、浙江临安、河北香河和香港等地开展了球载 O_3 探空观测,取得了一些成果^[136,142-144],其中在北京开展的观测最为长期、系统^[142],获取了珍贵的资料。

O_3 垂直分布探测资料除了用于平流层 O_3 变化和温室效应相关的气候研究外,还对认识对流层光化学污染和大气化学模式验证有重要价值。 O_3 的垂直分布极不均匀,垂直交换很显著,即使要将近地面 O_3 模拟好,也有赖于模式对低对流层 O_3 的模拟效果。然而,即使先进的大气化学模式,由于模式参数化存在的问题,在模拟低层大气 O_3 分布时仍然会出现较大误差^[145]。因此,对流层中低层 O_3 垂直分布的观测,对于光化学污染研究和预报模式改进和优化十分重要。我国在这方面也做了一些工作:利用气象塔开展 O_3 分层观测^[146],利用系留汽艇开展边界层 O_3 廓线观测^[147-148],利用人工影响天气作业飞机或商用飞机开展中对流层以下高度的 O_3 观测^[132,149-151],以及尝试利用小型无人飞机开展 0~3 km O_3 廓线观测^[105]。此外,欧洲的商业飞机观测计划也在我国北京上空取得了珍贵的 O_3 垂直廓线资料^[152]。这些观测研究通常揭示低对流层 O_3 呈现复杂多变的垂直分布。正确模拟这些垂直分布是预报模式必需解决的问题。到目前为止,只有少量城市地区的垂直分布观测。这些观测表明,城市边界层 O_3 浓度时空变化很大。如 2001 年春季昆明边界层内 O_3 约为 $50 \times 10^{-9} \sim 60 \times 10^{-9}$,香港约为

$20 \times 10^{-9} \sim 50 \times 10^{-9}$ ^[153];2002—2010 年北京边界层 O_3 浓度冬季可低至 30×10^{-9} 以下,而夏季可达 $80 \times 10^{-9} \sim 90 \times 10^{-9}$ ^[143]。2007 年 8 月北京飞机观测结果显示,边界层 O_3 大约为 100×10^{-9} ,但在近地层却明显降低^[152]。2011 年 11 月北京五环上空飞机观测结果表明,边界层内 O_3 浓度为 $16 \times 10^{-9} \sim 25 \times 10^{-9}$,且城市不同方位差异较大^[149]。

2.4 地面臭氧影响因素

特定地区 O_3 污染程度既取决于当地的 O_3 前体物浓度水平,也与影响 O_3 形成、输送和去除的主要气象条件密切相关。在污染区域的近地层或边界层, O_3 主要前体物是 VOCs 和 NO_x 。大气中 VOCs 的种类很多,对 O_3 形成作用最强的是其中的非甲烷烃类(NMHCs),包括反应活性很强的烯烃、芳香烃和反应活性相对较弱的烷烃等。对 O_3 形成、输送和去除有影响的主要气象要素包括光化辐射通量、气温、湿度、风速和风向等。其中,光化辐射通量与紫外辐射强度相关,是大气光化学污染形成最必要的气象条件。

在 O_3 前体物的研究方面,我国学者已经做了比较多的测量、分析等工作。 NO_x 的测量相对容易,开展得也很多,在此不详述。VOCs 的测量工作比较复杂、难度大,尽管如此,也有了较好的积累。近些年,我国珠三角^[154]、长三角^[74,79,91,107,119,155-157]和华北地区^[97,119,158]等围绕 O_3 污染问题都陆续开展了 VOCs 的测量与分析研究工作。不少研究工作还从测量或模拟的 VOCs 结果,通过最大增量反应活性法或等效丙烯法等方法,计算了各种 VOCs 的 O_3 生成潜势,评估了不同类型 VOCs 对 O_3 污染形成的相对重要性^[95,156,158]。研究表明,虽然各地略有差异,但是烯烃一般都最重要。除人为排放的烯烃外,植物排放的强活性烯烃异戊二烯等贡献也较大。芳香烃在城市地区作用较大。 O_3 生成与 VOCs 和 NO_x 之间存在着非线性, O_3 生成对 VOCs 还是对 NO_x 敏感是一个无论从科学角度还是污染控制角度都希望回答的问题。在华北平原地区、珠三角和长三角地区的研究表明,城市地区基本是 VOCs 敏感^[91,93,157],在个别城郊结合区域也有对两者均敏感^[97,119]。研究计算 O_3 生成效率(消耗单位 NO_x 所产生的 O_3 量,简称 OPE)可以辅助判断 O_3 的敏感性^[105]。基于模式计算和基于观测分析取得的上述地区 OPE 均不算高,如广州市为 2~8^[93],在长三角的常熟为 7.5^[156],上海为 1~5^[159],北京市区

交通干道附近为 $1\sim 6$ ^[160-161]。在华北大气本底站上甸子测量所得 OPE 为 $0.2\sim 21$, 平均为 4.9 ^[108]。这些结果说明, 我国污染区域的城市 O₃ 生成均对 VOCs 敏感, 城郊甚至本底点位虽然向 NO_x 敏感过渡, 但仍然会出现对 VOCs 敏感的情况。

在气象因素影响方面, 除了 2.2 节所述的输送影响之外, 还有紫外辐射和气温等方面的影响。我国霾污染严重, 可大大削弱到达近地层的紫外辐射, 使得当前 O₃ 前体物产生 O₃ 的潜力没有完全展现。研究表明, 广州地区霾污染使光化辐射通量平均减少 50% (最大可到 70%~80%)^[78], 天津 AOD 与 O₃ 呈非线性关系, 在 AOD 为 2 以下时, 单位 AOD 可降低 16×10^{-9} O₃^[80]。近几十年, 我国经历了快速城市化阶段。这改变了城市的污染排放, 也影响了城市的气温、风速、湿度等, 从而也间接影响到 O₃ 的生成和积累^[162]。

2.5 臭氧污染发展趋势

由于北半球对流层 O₃ 背景变化和我国 O₃ 前体物排放变化的共同影响, 我国的 O₃ 浓度势必也存在年际差异和长期变化。然而, 由于高质量的长期观测比较缺乏, 目前只有少量文献能说明我国部分地区的 O₃ 污染发展态势。青海境内的瓦里关全球大气本底站是我国内地最早开展地面 O₃ 长期观测的站点, 已获取了 20 年以上的观测资料。对瓦里关 1994—2013 年地面 O₃ 资料的分析表明, 该站的地面 O₃ 存在 $0.25\times 10^{-9}/\text{a}$ 的增长趋势, 秋季最为显著, 增长率达 $0.28\times 10^{-9}/\text{a}$ ^[128]。需要指出的是, 瓦里关属偏远地区站点, 当地光化学污染微弱, O₃ 浓度主要受其上游地区大背景的影响。华北地区上甸子本底站 O₃ 存在更显著的增长趋势, 对 2003—2015 年的数据分析表明, 该站日最大 8 h 平均 O₃ 浓度的增长率达到 $1.13\times 10^{-9}/\text{a}$, 很可能与 VOCs 排放增加有关^[163]。对长三角的临安本底站 1991—2006 年间不完全连续的 O₃ 观测数据分析表明, 虽然 O₃ 平均值没有显著的上升趋势, 但 O₃ 高端值和低端值分别向更高和更低的方向变化, 变化幅度有加大趋势, 很可能与 NO_x 浓度增大有关^[85]。我国香港一些站 O₃ 浓度也有明显的增长趋势^[82], 其背景对照点 1994—2007 年的平均增幅达到 $0.58\times 10^{-9}/\text{a}$ 。对北京市区站点 2001—2006 年的数据分析表明, O₃ 的平均增幅达到 $1.1\times 10^{-9}/\text{a}$ ^[164]。由于时间短, 很难认为其代表可靠的长期趋势, 但这样的增幅与上甸子本底站的增长率都应引起高度重视。

除了地面 O₃ 变化外, O₃ 在对流层的变化也应关注。对卫星反演得到的对流层 O₃ 资料显示, 在 1979—2005 年间我国华北地区对流层夏季 O₃ 增幅达到 $1.10\text{ DU}/(10\text{ a})$ ^[96]; 加入新的数据分析表明, 1979—2013 年华北地区对流层夏季 O₃ 增幅达到 $1.28\text{ DU}/(10\text{ a})$ ^[165]。华北对流层夏季 O₃ 增长很可能主要是对流层下部的边界层 O₃ 增长造成的。对欧洲民用航班在北京上空获取的 O₃ 资料分析表明, 1995—2005 年 O₃ 的主要增长出现在边界层, 全年平均增幅为 $1\times 10^{-9}/\text{a}$, 夏季增幅达到 $3\times 10^{-9}/\text{a}$ ^[152]。这些结果说明, 我国污染区域的 O₃ 长期变化值得高度关注, 尤其要特别关注华北地区的近地面和对流层 O₃ 的长期变化。

3 霾和光化学污染危害

3.1 霾的危害

霾污染的危害有多个方面, 比较直接的影响包括危害人体健康、危及交通安全、造成污闪、影响景观效果等等。霾污染的 PM_{2.5} 颗粒对健康的影响已得到国际研究证实, 但我国开展相关研究相对较晚。从相对短期的研究结果看, 霾可以造成心血管和呼吸系统疾病, 还与孕妇早产、死产和出生缺陷有统计学关联^[166]。虽然在医学层面的机理性研究有很大难度, 还有待深入, 但霾污染与健康的密切关系易通过统计分析得出。河南省南阳市的霾日的 PM₁₀ 质量浓度与呼吸系统门诊数量存在很显著的统计正相关关系^[167]。北京市是霾污染的重灾区, 2012—2013 年冬季的污染尤其严重。对 2012 年 10 月—2013 年 1 月空气污染指数 (API) 和医院就诊资料建模分析发现, API 每升高 1 个四分位数间距, 呼吸内科门诊量和内科急诊量分别增加 8.3% 和 10.1%^[168]。霾污染还可能与气象因子产生协同效应并造成健康影响。研究发现, 在北京同样的 PM_{2.5} 浓度增量, 在低温条件下可带来更高的心血管疾病死亡风险, 在高温下可带来更高的呼吸系统疾病死亡风险^[169]。长期暴露在霾污染下还可能具有其他危害, 但这方面还有待更多研究验证^[166]。虽然我国单位污染量的健康风险似乎比发达国家略低, 但污染程度严重, 且人口密度大, 总的风险远高于欧美^[170]。一项基于模式估算的全球评估结果表明, 2005 年我国 30 岁以上人口因 PM_{2.5} 引起的心血管疾病死亡达 89.8 万, 肺癌死亡达 10.8 万, 均列全

球首位^[171]。

霾和雾同为低能见度天气现象,对视距有显著影响,危及道路、水路及航运交通安全。严重的霾对航班起降可造成延误^[172]。当今高速公路成为物流和客流越来越重要的通道,雾、霾造成的恶性交通事故时常发生。尤其在一些高湿度地区,在出现霾-雾演变过程中更容易导致交通事故^[173],造成生命、财产损失。伴随霾污染过程气溶胶颗粒可在输配电设备上大量积累,降低绝缘器材的绝缘性能,从而导致电网输电线路的污闪,严重影响生产、生活用电安全^[174]。

霾污染除了影响到健康与生命,还造成很大的直接和间接经济损失。据估计,北京市2013年霾污染造成的人均健康成本超过526元,占人均GDP的0.72%,其增幅也超过了GDP的增幅^[175]。对我国111个大中城市评估表明,2004年这些城市因颗粒物健康影响导致的经济损失约为292亿美元^[176]。而其他方面经济损失也不可忽视。仅2013年1月,全国雾、霾事件造成的交通和健康直接经济损失保守估计约230亿元,其中健康损失占226亿元^[172]。可见霾污染作为一种环境气象灾害对我国的生命、财产和经济损失已相当严重。

3.2 光化学污染的危害

以O₃为代表的光化学污染物的直接危害主要包括对人体健康损害和对植物(包括自然植物、农作物等)的影响。O₃是一种强氧化性、刺激性气体,对人体的眼睛、呼吸系统和心血管系统都有明显的刺激和伤害作用^[177]。国际上有较多O₃人体健康影响的研究成果,但从定量方面对我国的适用性仍不清楚。针对我国的研究严重缺乏,只有少量综述和研究报道^[177-179]。研究表明,2008年上海地面O₃污染导致约2.6万居民住院,并使1892人早逝,全年的健康经济损失为32.42亿元^[179]。另一项针对上海2001—2004年的研究结果表明,O₃浓度与总死亡和心血管疾病死亡有联系,但主要是在较冷的季节显著;就全年而言,日平均O₃浓度增加10 μg·m⁻³可导致心血管疾病和呼吸系统疾病死亡分别增加0.53%和0.35%^[178]。目前尚不清楚这些研究结果多大程度上适用于其他地区。采用模式估算对全球污染健康影响评估的结果表明,2005年我国30岁以上人口因O₃引起的呼吸道疾病死亡达27.3万,均列全球首位,且远高于位列第二的印度^[171]。

相比O₃健康效应,我国在O₃对农作物和自然

植物影响方面已有较多研究。近10年来,在O₃对农作物影响研究包括大豆^[180-181]、小麦^[182-184]、水稻^[185-186]、蔬菜^[187-188]等。这些研究结果均表明,O₃胁迫下农作物和蔬菜出现不同程度的产量和品质下降。我国学者还尝试建立作物暴露模型,并以此分析O₃对水稻和小麦的影响^[189-190]。除了农作物外也完成了一些O₃对其他植物的影响研究,如O₃对黑麦草、毛竹、香樟、马尾松等植物的生理和生长的影响^[191-193]。

4 存在问题与展望

经过多年科学研究,我国在霾和光化学污染问题的认识上取得了不少进展。然而霾和光化学污染仍是我国当前和今后一段时间最迫切需要解决的大气环境问题,对其研究还应加强和深入。在科学和应用层面,未来需要对以下几个方面进一步关注:

①霾和雾的区别虽然清楚,但实践中的判识尚没有统一、易行的方法和标准,这成为迫切需要解决的问题。现行气象标准中虽然加入了大气成分作为能见度和相对湿度之外的判别指标^[9],而很多观测站并不具备这方面的观测。尽管目前的可操作性受到限制,但现行标准的方向是正确的。最近对华北强化观测配套资料的分析中,严格从雾和霾的物理学定义出发,利用气溶胶谱分布资料,结合吸湿增长的参数化方案,计算出了雾和霾的判别图谱,证明了基于实测的PM_{2.5}、能见度和相对湿度分辨雾和霾具有科学性、可靠性和可行性^[194]。然而,由于不同地域气溶胶的差异,该方法在应用到其他地区时可能需要做一些定量的修正,而这需要观测数据的支撑和对数据的分析利用。当前我国的PM_{2.5}观测资料越来越容易获得,但气溶胶粒子谱的资料较为缺乏,这方面观测应在气象部门加强,相关资料的应用将有助于环境气象业务的发展。

②我国的大气污染早已进入到复合污染的时代,霾污染和光化学污染不光具有同源性,且存在相互影响。严重污染使我国一些地区成为研究、认识复合污染形成与积累的化学和物理机制天然试验场所,而在一些观测数据的分析中也揭示了一些未知的现象和机制。近年研究发现,在含有沙尘气溶胶和较高NH₃浓度的条件下,SO₂向硫酸盐的转化速率均可以因NO₂的表面催化作用和光化学催化作用而得到提升,环境容量因此而显著下降^[195-196];华

北平原地区因水平输送、向下混合等因素常出现的 SO_2 午峰现象也可导致更多、更快的 SO_2 转化^[197]；由黑碳气溶胶引起的边界层上部的加热作用和地表热通量的降低可显著抑制边界层的发展，从而导致重度霾污染形成^[198]。这些新揭示的大气化学、物理过程与现象在我国不同区域的表现程度，以及对我国当前和未来重度霾污染(爆发性增长等现象)形成的作用等有待深入研究。

③大气复合污染条件的各种非均相反应不但促进了气体向气溶胶颗粒的转化，同时也影响气相光化学反应^[199]。这方面研究总体仍欠缺，尤其是室内研究结果和外场研究结果的相互印证需要加强。另一方面，气溶胶对辐射的影响也会严重影响到 O_3 的形成^[200]。因此，将霾污染和 O_3 光化学污染综合研究是非常必要的。考虑到我国经济发展和人口基数等情况，大气污染问题的解决将需要相当长的时间，这就需要在环境气象预报、预警服务方面更加精准，而要做到这一点，优秀的数值模式是关键。如何在数值模式中合理体现新认识的大气化学、物理过程和机制，也是未来需要关注的问题。

④我国的 O_3 观测资料总体还偏少，尤其是高质量的长期观测资料积累很不足，这已制约了对我国 O_3 污染历史趋势的系统评估。此外，光化学污染相关的配套资料，如 O_3 前体物VOCs和其他一些光化学产物也很缺乏。因此，资料时空覆盖度和配套性问题是光化学污染研究最需要解决的基础性问题。当前许多城市的地面 O_3 已成为环境监测的必测项目，未来应在保证 O_3 等要素观测质量的基础上做好长期资料积累和整理分析工作。另外，光化学污染除了与人体健康有关外，还与农业产量、生态系统保护和气候变化等密切相关，对其观测不能局限于城市地区，还应分层次在乡村站点和不同级别的代表性本底站开展长期观测，以便掌握不同区域大背景的变化趋势。

⑤由于存在上述霾污染和光化学污染间复杂的互相影响关系，以及 O_3 与其前体物间的复杂非线性关系，在大力治理霾污染的背景下，未来一段时间 O_3 污染加重的概率增大。事实上，近些年环保部门的监测结果表明， O_3 浓度水平已随着 $\text{PM}_{2.5}$ 及其他污染气体浓度下降而升高(http://www.cnemc.cn/publish/totalWebSite/0492/newList_1.html)。在这样的形势下，有效的综合减排措施制定将更具有挑战性，也更需要深入、系统的科学研究支撑。此

外，由于我国西部代表欧亚大陆中部中纬度地区的 O_3 背景值呈上升趋势，如果这种趋势继续下去，我国中东部 O_3 污染控制的难度有可能因此而加大。这就需要我国吸取欧美国家 O_3 污染控制的经验教训，在城市和区域尺度控制的同时考虑到宏观背景的影响。

5 小 结

通过近些年的文献回顾可以看出，以我国科研人员为主体，围绕我国霾污染和光化学污染的不同侧面开展了大量的研究工作，其中相当多是围绕观测和观测资料的分析与解释展开的。本文仅就霾污染和光化学污染的部分研究侧面进行了归纳。在霾污染研究方面，主要进展包括霾的现象与判别、霾的组成与来源、霾的长期趋势、影响霾污染的气象与气候因素等等。在光化学污染方面，研究工作主要围绕一些城市、城市群和乡村地区的地面 O_3 浓度水平和变化特征来展开的，同时也研究了 O_3 前体物和气象因素对地面 O_3 的影响，开展了 O_3 垂直分布的探测与分析，并利用所能得到的观测资料分析了地面和对流层 O_3 的趋势。霾和光化学污染都属于环境气象灾害，对其在健康、交通、生态等方面的危害研究也取得了一些成果。

各种观测数据表明，我国是霾污染的重灾区，尤其是京津冀、长三角和珠三角等地区首当其冲。频繁出现的霾污染给居民的健康带来很大危害，也严重影响到交通和电力输送等安全。我国的光化学污染从开始只在个别城市的工业区出现，发展到更多大城市，并通过污染输送向乡村蔓延，乃至目前形成了以华北平原、长三角和珠三角等为主的区域性光化学污染局面。光化学污染已显著影响到部分地区的居民健康，也威胁到我国农作物和自然植物的生长。我国霾污染目前仍处于历史最严重阶段，虽然近年在部分地区有缓解迹象，但尚未根本解决。我国光化学污染当前处于继续加重阶段，东部主要污染地区，尤其是华北平原地区，发展趋势堪忧。

我国霾污染和光化学污染是大量 SO_2 、 NO_x 和VOCs等人为排放造成的，气象要素和地理环境为污染的形成和积累提供了外部条件。气候变化和城市化等因素使我国一些地区的风速、湿度、边界层高度、大气稳定度等部分气象条件出现显著改变，更有利于污染的形成与积累，但我国污染排放强度的增

大才是霾和光化学污染加重的根本原因。因此,控制污染排放,走绿色发展之路是解决我国霾和光化学污染的必由之路。

未来研究工作中,应进一步加强霾和雾的科学判识方法的研究,从当前复合污染的特征出发,关注污染物间的相互作用,关注污染-气象-化学-生态间的耦合效应。应高度关注光化学污染发展态势,进一步完善 O₃ 及相关要素观测的覆盖度和配套性,加强长期观测资料的积累和分析,做好观测资料在健康影响、农业影响、林业影响和气候效应方面的评估。

参考文献

- [1] Lei Y, Zhang Q, He K B, et al. Primary anthropogenic aerosol emission trends for China, 1990 – 2005. *Atmos Chem Phys*, 2011, 11(3): 931-954.
- [2] Zhang Q, Streets D G, He K, et al. NO_x emission trends for China, 1995–2004: The view from the ground and the view from space. *J Geophys Res*, 2007, 112(D22306): 1-18.
- [3] Lin W, Xu X, Ma Z, et al. Characteristics and recent trends of sulfur dioxide at urban, rural, and background sites in North China: Effectiveness of control measures. *J Environ Sci*, 2012, 24(1): 34-49.
- [4] Qi H, Lin W, Xu X, et al. Significant downward trend of SO₂ observed from 2005 to 2010 at a background station in the Yangtze Delta region, China. *Science China Chemistry*, 2012, 55(7): 1451-1458.
- [5] Tang J, Xu X, Ba J, et al. Trends of the precipitation acidity over China during 1992 – 2006. *Chinese Science Bulletin*, 2010, 55(17): 1800-1807.
- [6] Ma J, Xu X, Zhao C, et al. A review of atmospheric chemistry research in China: Photochemical smog, haze pollution, and gas-aerosol interactions. *Adv Atmos Sci*, 2012, 29(5): 1006-1025.
- [7] 吴兑, 吴晓京, 朱小祥. 雾和霾. 北京: 气象出版社, 2009.
- [8] World Meteorological Organization. Aerodrome Reports and Forecasts: A user's Handbook to the Codes. WMO No. 782, Geneva: World Meteorological Organization, 2005.
- [9] World Meteorological Organization. Compendium of Lecture Notes for Training Class IV Meteorological Personnel, in Meteorology. Geneva: World Meteorological Organization, 1984.
- [10] World Meteorological Organization. Guide to Meteorological Instruments and Methods of Observation. Geneva: World Meteorological Organization, 2008.
- [11] 吴兑. 关于霾与雾的区别和灰霾天气预警的讨论. 气象, 2005, 31(4): 3-7.
- [12] 刘梅, 严文莲, 张备, 等. 2013年1月江苏雾霾天气持续和增强机制分析. 气象, 2014, 40(7): 835-843.
- [13] 杨志彪, 陈冬冬, 徐向明. 霾观测判识标准量化对雾霾观测记录的影响. 气象科技, 2014, 42(2): 198-203.
- [14] 廖国莲, 曾鹏, 郑风琴, 等. 1960—2009年广西霾日时空变化特征. 应用气象学报, 2011, 22(6): 732-739.
- [15] 吴兑, 吴晓京, 李菲, 等. 1951—2005年中国大陆霾的时空变化. 气象学报, 2010, 68(5): 680-688.
- [16] 刘端阳, 魏建苏, 严文莲, 等. 1980—2012年江苏省城市霾日的时空分布及成因分析. 环境科学, 2014, 35(9): 3247-3255.
- [17] 宋连春, 高荣, 李莹, 等. 1961—2012年中国冬半年霾日数的变化特征及气候成因分析. 气候变化研究进展, 2013, 9(5): 313-318.
- [18] 高歌. 1961—2005年中国霾日气候特征及变化分析. 地理学报, 2008, 63(7): 761-768.
- [19] 丁一汇, 柳艳菊. 近50年我国雾和霾的长期变化特征及其与大气湿度的关系. 中国科学: 地球科学, 2014, 44(1): 37-48.
- [20] 张小曳, 孙俊英, 王亚强, 等. 我国雾-霾成因及其治理的思考. 科学通报, 2013, 58(13): 1178-1187.
- [21] 颜鹏, 张养梅, 杨东贞, 等. 2003年夏季临安地区大气气溶胶离子成分的尺度分布特征. 气象学报, 2005, 63(6): 980-987.
- [22] 孟昭阳, 贾小芳, 张仁健, 等. 2010年长江三角洲临安本底站 PM_{2.5}理化特征. 应用气象学报, 2012, 23(4): 424-432.
- [23] Zhao P S, Dong F, He D, et al. Characteristics of concentrations and chemical compositions for PM_{2.5} in the region of Beijing, Tianjin, and Hebei, China. *Atmos Chem Phys*, 2013, 13(9): 4631-4644.
- [24] Zhang Y M, Zhang X Y, Sun J Y, et al. Chemical composition and mass size distribution of PM₁ at an elevated site in central east China. *Atmos Chem Phys*, 2014, 14(22): 12237-12249.
- [25] Zhao X, Wang X, Ding X, et al. Compositions and sources of organic acids in fine particles (PM_{2.5}) over the Pearl River Delta region, South China. *J Environ Sci*, 2014, 26(1): 110-121.
- [26] Qiao T, Zhao M, Xiu G, et al. Seasonal variations of water soluble composition (WSOC, hulis and wsiis) in PM₁ and its implications on haze pollution in urban Shanghai, China. *Atmos Environ*, 2015, 123: 306-314.
- [27] Zhang Y W, Zhang X Y, Zhang Y M, et al. Significant concentration changes of chemical components of PM₁ in the Yangtze River Delta area of China and the implications for the formation mechanism of heavy haze-fog pollution. *Sci Tot Environ*, 2015, 538: 7-15.
- [28] 何凌燕, 胡敏, 黄晓锋, 等. 北京市大气气溶胶 PM_{2.5} 中极性有机化合物的测定. 环境科学, 2004, 25(5): 15-20.
- [29] 颜鹏, 潘小乐, 汤洁, 等. 北京市区大气气溶胶散射系数亲水增长的观测研究. 气象学报, 2008, 66(1): 111-119.
- [30] 颜鹏, 郇宁, 张养梅, 等. 北京乡村地区分粒径气溶胶 OC 及 EC 分析. 应用气象学报, 2012, 23(3): 285-293.
- [31] 张养梅, 颜鹏, 杨东贞, 等. 临安大气气溶胶理化特性季节变化. 应用气象学报, 2007, 18(5): 635-644.
- [32] 颜鹏, 刘桂清, 周秀骥, 等. 上甸子秋冬季雾霾期间气溶胶光

- 学特性. 应用气象学报, 2010, 21(3): 257-265.
- [33] 肖秀珠, 刘鹏飞, 耿福海, 等. 上海市区和郊区黑碳气溶胶的观测对比. 应用气象学报, 2011, 22(2): 158-168.
- [34] 安林昌, 孙俊英, 张养梅, 等. 天津武清地区单颗粒黑碳气溶胶特征观测分析. 应用气象学报, 2011, 22(5): 577-583.
- [35] Wang Y Q, Zhang X Y, Sun J Y, et al. Spatial and temporal variations of the concentrations of PM₁₀, PM_{2.5} and PM₁ in China. *Atmos Chem Phys*, 2015, 15(23): 13585-13598.
- [36] 张小曳, 张养梅, 曹国良. 北京 PM₁ 中的化学组成及其控制对策思考. 应用气象学报, 2012, 23(3): 257-264.
- [37] Wang Y, Yao L, Wang L, et al. Mechanism for the formation of the January 2013 heavy haze pollution episode over central and eastern China. *Science China: Earth Sciences*, 2013, 57(1): 14-25.
- [38] Hua S, Tian H, Wang K, et al. Atmospheric emission inventory of hazardous air pollutants from China's cement plants: Temporal trends, spatial variation characteristics and scenario projections. *Atmos Environ*, 2016, 128: 1-9.
- [39] Liu F, Zhang Q, Tong D, et al. High-resolution inventory of technologies, activities, and emissions of coal-fired power plants in China from 1990 to 2010. *Atmos Chem Phys*, 2015, 15(23): 3299-3317.
- [40] Guo S, Hu M, Zamora M L, et al. Elucidating severe urban haze formation in China. *PNAS*, 2014, 111(49): 17373-17378.
- [41] Zhang Q, Streets D G, Carmichael G R, et al. Asian emissions in 2006 for the nasa intex-b mission. *Atmos Chem Phys*, 2009, 9(14): 5131-5153.
- [42] Zhou Y, Cheng S, Lang J, et al. A comprehensive ammonia emission inventory with high-resolution and its evaluation in the Beijing-Tianjin-Hebei (BTH) region, China. *Atmos Environ*, 2015, 106: 305-317.
- [43] Xu P, Liao Y J, Lin Y H, et al. High-resolution inventory of ammonia emissions from agricultural fertilizer in China from 1978 to 2008. *Atmos Chem Phys*, 2016, 16(3): 1207-1218.
- [44] 张人禾, 李强, 张若楠. 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. 中国科学: 地球科学, 2014, 44(1): 27-36.
- [45] 贺千山, 毛节泰. 北京城市大气混合层与气溶胶垂直分布观测研究. 气象学报, 2005, 63(3): 374-384.
- [46] 赵子菁, 魏永杰, 张祥志, 等. 南京市霾天气与主要气象条件的相关分析. 中国环境科学, 2015, 35(12): 3570-3580.
- [47] 赵秀娟, 张小玲, 蒲维维, 等. 气象条件对上甸子地区气溶胶散射特征的影响. 环境科学, 2011, 32(11): 3153-3159.
- [48] 吴兑, 廖国莲, 邓雪娇, 等. 珠江三角洲霾天气的近地层输送条件研究. 应用气象学报, 2008, 19(1): 1-9.
- [49] 陈训来, 冯业荣, 范绍佳, 等. 离岸型背景风和海陆风对珠江三角洲地区灰霾天气的影响. 大气科学, 2008, 32(3): 530-542.
- [50] 靳军莉, 颜鹏, 马志强, 等. 北京及周边地区2013年1—3月PM_{2.5}变化特征. 应用气象学报, 2014, 25(6): 690-700.
- [51] 齐冰, 刘寿东, 杜荣光, 等. 杭州地区气候环境要素对霾天气影响特征分析. 气象, 2012, 38(10): 225-231.
- [52] 吴蒙, 范绍佳, 吴兑, 等. 广州地区灰霾与清洁天气变化特征及影响因素分析. 中国环境科学, 2012, 32(8): 1409-1415.
- [53] 金丽娜, 曲静, 张雅斌, 等. 西安霾天气时空分布特征与影响因素分析. 气象科技, 2015, 43(2): 314-330.
- [54] Wang S, Liao T, Wang L, et al. Process analysis of characteristics of the boundary layer during a heavy haze pollution episode in an inland megacity, China. *J Environ Sci*, 2016, 40: 138-144.
- [55] 张雅斌, 林琳, 吴其重, 等. “13·12”西安重污染气象条件及影响因素. 应用气象学报, 2016, 27(1): 35-46.
- [56] Li Q, Zhang R, Wang Y. Interannual variation of the winter-time fog-haze days across central and eastern China and its relation with East Asian winter monsoon. *Int J Climatol*, 2016, 36(1): 346-354.
- [57] 潘小乐, 颜鹏, 汤洁. 2006年北京春季气溶胶吸收系数的分离研究. 气候变化研究进展, 2007, 3(5): 249-254.
- [58] 赵普生, 徐晓峰, 孟伟, 等. 京津冀区域霾天气特征. 中国环境科学, 2012, 32(1): 31-36.
- [59] Zhao C, Tie X, Lin Y. A possible positive feedback of reduction of precipitation and increase in aerosols over eastern central China. *Geophys Res Lett*, 2006, 33(L11814): 1-4.
- [60] Xu X, Wang Y, Zhao T, et al. “Harbor” effect of large topography on haze distribution in eastern China and its climate modulation on decadal variations in haze. *Chinese Science Bulletin (Chinese Version)*, 2015, 60(12): 1132.
- [61] 罗云峰, 吕达仁, 周秀骥, 等. 30年来我国大气气溶胶光学厚度平均分布特征分析. 大气科学, 2002, 26(6): 721-730.
- [62] Che H, Zhang X Y, Xia X, et al. Ground-based aerosol climatology of China: Aerosol optical depths from the China aerosol remote sensing network (CARSNET) 2002—2013. *Atmos Chem Phys*, 2015, 15(13): 7619-7652.
- [63] Wu J, Luo J, Zhang L, et al. Improvement of aerosol optical depth retrieval using visibility data in China during the past 50 years. *J Geophys Res*, 2014, 119(23): 13370-13387.
- [64] 吴兑, 吴晓京, 李菲, 等. 中国大陆1951—2005年雾与轻雾的长期变化. 热带气象学报, 2011, 27(2): 145-151.
- [65] Guo J P, Zhang X Y, Che H Z, et al. Correlation between pm concentrations and aerosol optical depth in eastern China. *Atmos Environ*, 2009, 43(37): 5876-5886.
- [66] 黄健, 吴兑, 黄敏辉, 等. 1954—2004年珠江三角洲大气能见度变化趋势. 应用气象学报, 2008, 19(1): 61-70.
- [67] 刘宁微, 马雁军, 刘晓梅, 等. 1980—2009年沈阳灰霾的变化趋势研究. 干旱区资源与环境, 2010, 24(10): 92-94.
- [68] 毛敏娟, 杨续超. 霾与城市化发展的关系. 环境科学研究, 2015, 28(12): 1823-1832.
- [69] Zheng X, Sheng C, Wang G, et al. ¹⁰Be/⁷Be implies the contribution of stratosphere-troposphere transport to the winter-spring surface O₃ variation observed on the Tibetan Plateau. *Chin Sci Bull*, 2011, 56: 84-88.

- [70] 崔宏,赵春生,郑向东,等. 2001年春季临安地区对流层臭氧异常增加的一次过程分析. *大气科学*, 2005, 29(2): 259-266.
- [71] 耿福海,毛晓琴,铁学熙,等. 2006—2008年上海地区臭氧污染特征与评价指标研究. *热带气象学报*, 2010, 26(5): 584-590.
- [72] Lin W, Xu X, Ge B, et al. Characteristics of gaseous pollutants at gucheng, a rural site southwest of Beijing. *J Geophys Res*, 2009, 114: 4723-4734.
- [73] Wang Y, Hu B, Tang G, et al. Characteristics of ozone and its precursors in northern China: A comparative study of three sites. *Atmos Res*, 2013, 132-133: 450-459.
- [74] Geng F, Tie X, Xu J, et al. Characterizations of ozone, NO_x, and VOCs measured in Shanghai, China. *Atmos Environ*, 2008, 42(29): 6873-6883.
- [75] Lin W, Xu X, Zhang X, et al. Contributions of pollutants from North China Plain to surface ozone at the Shangdianzi GAW station. *Atmos Chem Phys*, 2008, 8: 5889-5898.
- [76] Zhang Y, Liu H, Crawford J H, et al. Distribution, variability and sources of tropospheric ozone over South China in spring: Intensive ozonesonde measurements at five locations and modeling analysis. *J Geophys Res*, 2012, 117(D12): 1-26.
- [77] Zhao C, Wang Y, Zeng T. East China plains: A "basin" of ozone pollution. *Environ Sci Technol*, 2009, 43(6): 1911-1915.
- [78] Deng X, Zhou X, Wu D, et al. Effect of atmospheric aerosol on surface ozone variation over the Pearl River Delta region. *Science China: Earth Sciences*, 2011, 54(5): 744-752.
- [79] Geng F, Tie X, Guenther A, et al. Effect of isoprene emissions from major forests on ozone formation in the city of Shanghai, China. *Atmos Chem Phys*, 2011, 11(20): 10449-10459.
- [80] Bian H, Han S, Tie X, et al. Evidence of impact of aerosols on surface ozone concentration in Tianjin, China. *Atmos Environ*, 2007, 41(22): 4672-4681.
- [81] Lin W, Xu X, Ge B, et al. Gaseous pollutants in Beijing urban area during the heating period 2007—2008: Variability, sources, meteorological and chemical impacts. *Atmos Chem Phys*, 2011, 11: 8157-8170.
- [82] Wang T, Wei L X, Ding A J, et al. Increasing surface ozone concentrations in the background atmosphere of southern China, 1994—2007. *Atmos Chem Phys*, 2009, 9: 6217-6227.
- [83] Ma J, Lin W L, Zheng X D, et al. Influence of air mass downward transport on the variability of surface ozone at Xianggelila regional atmosphere background station, southwest China. *Atmos Chem Phys*, 2014, 14(11): 5311-5325.
- [84] Ding A, Wang T. Influence of stratosphere-to-troposphere exchange on the seasonal cycle of surface ozone at mount Waliguan in western China. *Geophys Res Lett*, 2006, 33(3): 233-252.
- [85] Xu X, Lin W, Wang T, et al. Long-term trend of surface ozone at a regional background station in eastern China 1991—2006: Enhanced variability. *Atmos Chem Phys*, 2008, 8: 2595-2607.
- [86] Xu J, Ma J Z, Zhang X L, et al. Measurements of ozone and its precursors in Beijing during summertime: Impact of urban plumes on ozone pollution in downwind rural areas. *Atmos Chem Phys*, 2011, 11: 12241-12252.
- [87] Gao J, Wang T, Ding A, et al. Observational study of ozone and carbon monoxide at the summit of mount Tai (1534 m a. s. l.) in central-eastern China. *Atmos Environ*, 2005, 39(26): 4779-4791.
- [88] Wang Q Y, Gao R S, Cao J J, et al. Observations of high level of ozone at qinghai lake basin in the northeastern Qinghai-Tibetan Plateau, western China. *J Atmos Chem*, 2015, 72(1): 19-26.
- [89] Wang T, Cheung T T F, Anson M, et al. Ozone and related gaseous pollutants in the boundary layer of eastern China: Overview of the recent measurements at a rural site. *Geophys Res Lett*, 2001, 28(12): 2373-2376.
- [90] Wang H, Zhou L, Tang X. Ozone concentrations in rural regions of the Yangtze Delta in China. *J Atmos Chem*, 2006, 54(3): 255-265.
- [91] Ran L, Zhao C, Geng F, et al. Ozone photochemical production in urban Shanghai, China: Analysis based on ground level observations. *J Geophys Res*, 2009, 114(D15): 1-14.
- [92] Wang Y H, Hu B, Ji D S, et al. Ozone weekend effects in the Beijing-Tianjin-Hebei metropolitan area, China. *Atmos Chem Phys*, 2014, 14(5): 2419-2429.
- [93] Wang X, Zhan Y, Hu Y, et al. Process analysis and sensitivity study of regional ozone formation over the Pearl River Delta, China, during the PRIDE-PRD2004 campaign using the community multiscale air quality modeling system. *Atmos Chem Phys*, 2010, 10(9): 4423-4437.
- [94] Tang G, Wang Y, Li X, et al. Spatial-temporal variations in surface ozone in northern China as observed during 2009—2010 and possible implications for future air quality control strategies. *Atmos Chem Phys*, 2012, 12(5): 2757-2776.
- [95] Wang T, Ding A, Gao J, et al. Strong ozone production in urban plumes from Beijing, China. *Geophys Res Lett*, 2006, 33(21): 320-337.
- [96] 徐晓斌,林伟立. 卫星观测的中国地区1979—2005年对流层臭氧变化趋势. *气候变化研究进展*, 2010, 6(2): 100-105.
- [97] Ran L, Zhao C S, Xu W Y, et al. VOC reactivity and its effect on ozone production during the Hachi summer campaign. *Atmos Chem Phys*, 2011, 11: 4657-4667.
- [98] 王占山,李云婷,陈添,等. 北京城区臭氧日变化特征及与前体物的相关性分析. *中国环境科学*, 2014, 34(12): 3001-3008.
- [99] 马志强,王跃思,张小玲,等. 北京城区与下游地区臭氧对比研究. *环境科学*, 2011, 32(4): 924-929.
- [100] 李昕,安俊琳,王跃思,等. 北京气象塔夏季大气臭氧观测研

- 究. 中国环境科学, 2003, 23(4): 353-357.
- [101] 王占山, 李云婷, 陈添, 等. 北京市臭氧的时空分布特征. 环境科学, 2014, 35(12): 4446-4453.
- [102] 马志强, 王跃思, 孙扬, 等. 北京市与香河县大气臭氧及氮氧化合物的变化特征. 环境化学, 2007, 26(6): 832-837.
- [103] 徐晓斌, 葛宝珠, 林伟立. 臭氧生成效率 OPE 相关研究进展. 地球科学进展, 2009, 24(8): 845-853.
- [104] 洪盛茂, 焦荔, 何曦, 等. 杭州市区大气臭氧浓度变化及气象要素影响. 应用气象学报, 2009, 20(5): 602-611.
- [105] 贾诗卉, 徐晓斌, 林伟立, 等. 华北平原夜间对流天气对地面 O₃ 混合比抬升效应. 应用气象学报, 2015, 26(3): 280-290.
- [106] 陈长和, 黄建国, 任淮海, 等. 兰州西固工业区夏季臭氧浓度变化的气象条件. 科学通报, 1986, 31(24): 1891-1893.
- [107] 林旭, 朱彬, 安俊琳, 等. 南京北郊 VOCs 对臭氧和二次有机气溶胶潜在贡献的研究. 中国环境科学, 2015, 35(4): 976-986.
- [108] 葛宝珠, 徐晓斌, 林伟立, 等. 上甸子本底站臭氧生成效率的观测研究. 环境科学, 2010, 31(7): 1444-1450.
- [109] 谈建国, 陆国良, 耿福海, 等. 上海夏季近地面臭氧浓度及其相关气象因子的分析和预报. 热带气象学报, 2007, 23(5): 515-520.
- [110] 边智, 李杰, 王喜全, 等. 泰山春季臭氧污染特征. 环境科学研究, 2006, 19(5): 36-39.
- [111] 徐晓斌, 林伟立, 王韬, 等. 长江三角洲地区对流层臭氧的变化趋势. 气候变化研究进展, 2006, 2(5): 211-216.
- [112] 丁国安, 徐晓斌, 罗超, 等. 中国大气本底条件下不同地区地面臭氧特征. 气象学报, 2001, 59(1): 88-95.
- [113] 周秀骥, 罗超, 丁国安, 等. 中国东部地区大气臭氧及前体物本底变化规律的初步研究. 中国科学: 化学, 1994, 24(12): 1323-1330.
- [114] 陆克定, 张远航, 苏杭, 等. 珠江三角洲夏季臭氧区域污染及其控制因素分析. 中国科学: 化学, 2010, 40(4): 407-420.
- [115] Tang X, Li J, Dong Z, et al. Photochemical pollution in Lanzhou, China-A case study. *Environmental Sciences (China)*, 1989, 1(1): 31-37.
- [116] 陈延智, 周舟, 唐孝炎. 西固地区夏季臭氧浓度的变化. 环境科学情报, 1985(5): 39-43.
- [117] 张远航, 邵可声, 唐孝炎, 等. 中国城市光化学烟雾污染研究. 北京大学学报: 自然科学版, 1998, 34(2): 392-400.
- [118] 刘希文, 徐晓斌, 林伟立. 北京及周边地区典型站点近地面 O₃ 的变化特征. 中国环境科学, 2010, 30: 946-953.
- [119] Ran L, Zhao C S, Xu W Y, et al. Ozone production in summer in the megacities of Tianjin and Shanghai, China: A comparative study. *Atmos Chem Phys*, 2012, 12(16): 7531-7542.
- [120] Zhang Y H, Su H, Zhong L J, et al. Regional ozone pollution and observation-based approach for analyzing ozone-precursor relationship during the PRIDE-PRD2004 campaign. *Atmos Environ*, 2008, 42: 6203-6218.
- [121] Zheng J, Zhong L, Wang T, et al. Ground-level ozone in the Pearl River Delta region: Analysis of data from a recently established regional air quality monitoring network. *Atmos Environ*, 2010, 44: 814-823.
- [122] 安俊琳, 杭一纤, 朱彬, 等. 南京北郊大气臭氧浓度变化特征. 生态环境学报, 2010, 19(6): 1383-1386.
- [123] 沈琰, 杨卫芬, 蔡惠文. 常州市典型臭氧污染天气过程及成因分析研究. 环境科学与管理, 2013, 38(12): 173-182.
- [124] Wang T, Wu Y Y, Cheung T F, et al. A study of surface ozone and the relation to complex wind flow in Hong Kong. *Atmos Environ*, 2001, 35: 3203-3215.
- [125] 徐晓斌, 丁国安, 李兴生, 等. 龙凤山大气近地层 O₃ 浓度变化及其与其它因素的关系. 气象学报, 1998, 56(6): 560-572.
- [126] 颜鹏, 李兴生, 罗超, 等. 我国地面 O₃, NO_x, SO₂ 背景值的观测研究. 应用气象学报, 1997, 8(1): 53-61.
- [127] Wang T, Wong H L A, Tang J, et al. On the origin of surface ozone and reactive nitrogen observed at a remote mountain site in the northeastern Qinghai-Tibetan Plateau, western China. *J Geophys Res*, 2006, 111(D8): 1-15.
- [128] Xu W, Lin W, Xu X, et al. Long-term trends of surface ozone and its influencing factors at the Mt Waliguan GAW station, China-Part 1: Overall trends and characteristics. *Atmos Chem Phys*, 2016, 16(10): 6191-6205.
- [129] 林伟立, 徐晓斌, 王力福, 等. 阿克达拉区域大气本底站反应性气体在线观测. 气象科技, 2010, 38(6): 661-667.
- [130] Ding A, Wang T, Xue L, et al. Transport of north China air pollution by midlatitude cyclones: Case study of aircraft measurements in summer 2007. *J Geophys Res*, 2007, 114(D08304): 1-16.
- [131] Ding A, Wang T, Fu C. Transport characteristics and origins of carbon monoxide and ozone in Hong Kong, south China. *J Geophys Res*, 2013, 118(16): 9475-9488.
- [132] Wang T, Cheung V T F, Lam K S, et al. The characteristics of ozone and related compounds in the boundary layer of the south China coast: Temporal and vertical variations during autumn season. *Atmos Environ*, 2001, 35: 2735-2746.
- [133] Ding A J, Fu C B, Yang X Q, et al. Ozone and fine particle in the western Yangtze River Delta: An overview of 1 yr data at the sorpes station. *Atmos Chem Phys*, 2013, 13(11): 5813-5830.
- [134] Tang H, Liu G, Zhu J, et al. Seasonal variations in surface ozone as influenced by asian summer monsoon and biomass burning in agricultural fields of the northern Yangtze River Delta. *Atmos Res*, 2013, 112: 67-76.
- [135] Ge B Z, Xu X B, Lin W L, et al. Impact of the regional transport of urban Beijing pollutants on downwind areas in summer: Ozone production efficiency analysis. *Tellus B*, 2012, 64(64): 1-13.
- [136] 石广玉, 许黎, 郭建东, 等. 大气臭氧与气溶胶垂直分布的高空气球探测. 大气科学, 1996, 20(4): 401-407.
- [137] 周秀骥, 罗超, 李维亮, 等. 中国地区臭氧总量变化与青藏高原低值中心. 科学通报, 1995, 40(15): 1396-1398.
- [138] Yan X L, Wright J S, Zheng X D, et al. Validation of Au-

- ramls Retrievals of Temperature, Water Vapour and Ozone in the Upper Troposphere and Lower-middle Stratosphere over the Tibetan Plateau during Boreal Summer. *Atmos Meas Techniq Discuss*, 2016.
- [139] 陈闯,田文寿,田红璜,等.青藏高原东北侧臭氧垂直分布与平流层/对流层物质交换. *高原气象*, 2012, 31(2): 295-303.
- [140] 郑向东,汤洁,李维亮,等.拉萨地区1998年夏季臭氧总量及垂直廓线的观测研究. *应用气象学报*, 2000, 11(2): 173-179.
- [141] 郑向东,周秀骥,秦瑜,等.西宁夏季对流层臭氧垂直分布变化与气象要素的关系. *气象学报*, 2002, 60(1): 47-53.
- [142] Wang Y, Konopka P, Liu Y, et al. Tropospheric ozone trend over Beijing from 2002 - 2010: Ozone-sonde measurements and modeling analysis. *Atmos Chem Phys*, 2012, 12(18): 8389-8399.
- [143] 郑向东,陈尊裕,崔宏,等.长江三角洲地区春季低空大气臭氧垂直分布特征. *中国科学:地球科学*, 2004, 34(12): 1184-1192.
- [144] 郑永光,朱佩君,陈尊裕,等.东南亚地区生物体燃烧影响华南地区对流层臭氧垂直分布的个例分析. *地球物理学报*, 2004, 47(5): 767-775.
- [145] 徐敬,马志强,赵秀娟,等.边界层方案对华北低层 O₃ 垂直分布模拟的影响. *应用气象学报*, 2015, 26(5): 567-577.
- [146] 修天阳,孙扬,宋涛,等.北京夏季灰霾天臭氧近地层垂直分布与边界层结构分析. *环境科学学报*, 2013, 33(2): 321-331.
- [147] 郑向东,丁国安,于海青,等.十三陵“清洁区”秋季 O₃ 在地面及近地边界层垂直分布变化的探测研究. *中国科学:地球科学*, 2005, 35(增刊 I): 45-52.
- [148] Ma Z, Zhang X, Xu J, et al. Characteristics of ozone vertical profile observed in the boundary layer around Beijing in autumn. *J Environ Sci*, 2011, 23(8): 1316-1324.
- [149] Chen P, Zhang Q, Quan J, et al. Ground-high altitude joint detection of ozone and nitrogen oxides in urban areas of Beijing. *J Environ Sci*, 2013, 25(4): 758-769.
- [150] Chen Y, Zhao C, Zhang Q, et al. Aircraft study of mountain chimney effect of Beijing, China. *J Geophys Res*, 2009, 114(D08306): 1-10.
- [151] Ma J Z, Wang W, Chen Y, et al. The IPAC-NC field campaign: A pollution and oxidization pool in the lower atmosphere over Huabei, China. *Atmos Chem Phys*, 2012, 12(9): 3883-3908.
- [152] Ding A J, Wang T, Thouret V, et al. Tropospheric ozone climatology over Beijing: Analysis of aircraft data from the MOZAIC program. *Atmos Chem Phys*, 2008, 8(1): 1-13.
- [153] Chan C Y, Chan L Y, Chang W L. Characteristics of a tropospheric ozone profile and implications for the origin of ozone over subtropical China in the spring of 2001. *J Geophys Res*, 2003, 108(D20): 1-14.
- [154] 解鑫,邵敏,刘莹,等.大气挥发性有机物的日变化特征及在臭氧生成中的作用——以广州夏季为例. *环境科学学报*, 2009, 29(1): 54-62.
- [155] 崔虎雄,吴迺名,高松,等.上海城区典型污染过程 VOCs 特征及臭氧潜势分析. *环境科学*, 2011, 32(12): 3537-3542.
- [156] 胡建林,张远航.长江三角洲地区臭氧生成过程分析. *环境科学研究*, 2005, 18(2): 13-18.
- [157] 王红丽.上海市光化学污染期间挥发性有机物的组成特征及其对臭氧生成的影响研究. *环境科学学报*, 2015, 35(6): 1603-1611.
- [158] 卢学强,韩萌,冉靓,等.天津中心城区夏季非甲烷有机化合物组成特征及其臭氧产生潜力分析. *环境科学学报*, 2011, 31(2): 373-380.
- [159] 朱帅,马建中,王堰,等.长江三角洲地区春季臭氧异常高值的数值模拟研究. *环境科学研究*, 2006, 19(6): 1-8.
- [160] Ge B, Sun Y, Liu Y, et al. Nitrogen dioxide measurement by cavity attenuated phase shift spectroscopy (CAPS) and implications in ozone production efficiency and nitrate formation in Beijing, China. *J Geophys Res*, 2013, 118(16): 9499-9509.
- [161] 安俊岭.北京近交通主干道地区的臭氧生成效率. *环境科学学报*, 2006, 26(4): 652-657.
- [162] Zhang Y N, Xiang Y R, Chan L Y, et al. Procuring the regional urbanization and industrialization effect on ozone pollution in Pearl River Delta of Guangdong, China. *Atmos Environ*, 2011, 45(28): 4898-4906.
- [163] Ma Z, Xu J, Quan W, et al. Significant increase of surface ozone at a rural site, north of eastern China. *Atmos Chem Phys*, 2016, 16(6): 3969-3977.
- [164] Tang G, Li X, Wang Y, et al. Surface ozone trend details and interpretations in Beijing, 2001 - 2006. *Atmos Chem Phys*, 2009, 9(22): 8813-8823.
- [165] Chen X, Huang F, Xia X, et al. Analysis of tropospheric ozone long-term changing trends and affecting factors over northern China. *Chin Sci Bull (Chinese Version)*, 2015, 60(27): 2659.
- [166] 潘小川.关注中国大气灰霾(PM_{2.5})对人群健康影响的新常态. *北京大学学报:医学版*, 2015, 47(3): 377-379.
- [167] 陈燕,薛旭,陈建新,等.南阳市灰霾天气污染特征及其健康效应. *气象科技*, 2010, 38(6): 738-740.
- [168] 邹天森,吴虎兵,黄万玉,等.2013年北京灰霾事件对医院成人门急诊量影响的定量研究. *环境与健康杂志*, 2014, 31(10): 860-863.
- [169] Li Y, Ma Z, Zheng C, et al. Ambient temperature enhanced acute cardiovascular-respiratory mortality effects of PM_{2.5} in Beijing, China. *Int J Biometeorol*, 2015, 59: 1761-1770.
- [170] Kan H, Chen R, Tong S. Ambient air pollution, climate change, and population health in China. *Environ Int*, 2012, 42: 10-19.
- [171] Lelieveld J, Barlas C, Giannadaki D, et al. Model calculated global, regional and megacity premature mortality due to air pollution. *Atmos Chem Phys*, 2013, 13(14): 7023-7037.
- [172] 穆泉,张世秋.2013年1月中国大面积雾霾事件直接社会经济损失评估. *中国环境科学*, 2013, 33(11): 2087-2094.
- [173] 田小毅,袁成松,吴震.高速公路上雾霾演变及其对能见度的影响. *气象科技*, 2010, 38(6): 673-678.

- [174] 宋明月,刘光远,王建城,等. 气温变化对石家庄市供暖式雾霾的影响及防污闪潜力分析. 电力建设, 2015, 36(6): 119-123.
- [175] 曹彩虹,韩立岩. 雾霾带来的社会健康成本估算. 统计研究, 2015, 32(7): 19-23.
- [176] Zhang M, Song Y, Cai X, et al. Economic assessment of the health effects related to particulate matter pollution in 111 Chinese cities by using economic burden of disease analysis. *J Environ Manag*, 2008, 88: 947-954.
- [177] 晋乐飞,冯斐斐,段丽菊,等. 臭氧对呼吸系统影响研究进展. 中国公共卫生, 2015, 31(5): 685-689.
- [178] Zhang Y, Huang W, London S J, et al. Ozone and daily mortality in Shanghai, China. *Environ Health Perspect*, 2006, 114(8): 1227-1232.
- [179] 陈仁杰,陈秉衡,阚海东. 上海市近地面臭氧污染的健康影响评价. 中国环境科学, 2010, 30(5): 603-608.
- [180] 白月明,王春乙,温民. 大豆对臭氧、二氧化碳及其复合效应的响应. 应用生态学报, 2005, 16(3): 545-549.
- [181] 张巍巍,王光华,王美玉,等. 东北春大豆品种东生1号对臭氧胁迫的响应. 环境科学, 2014, 35(4): 1474-1478.
- [182] 耿春梅,王宗爽,任丽红,等. 大气臭氧浓度升高对农作物产量的影响. 环境科学研究, 2014, 27(3): 239-245.
- [183] 郭建平,王春乙,白月明,等. 大气中臭氧浓度变化对冬小麦生理过程和籽粒品质的影响. 应用气象学报, 2001, 12(2): 254-256.
- [184] 寇太记,刘德鸿,徐晓峰,等. 近地层臭氧污染对不同品种小麦钾素吸收与分配的影响. 土壤学报, 2014, 51(3): 531-537.
- [185] 梁晶,曾青,朱建国,等. 开放式臭氧浓度升高对水稻叶片气体交换和荧光特性的影响. 光谱学与光谱分析, 2010, 30(4): 991-995.
- [186] 郑飞翔,王效科,侯培强,等. 臭氧胁迫对水稻生长以及C、N、S元素分配的影响. 生态学报, 2011, 31(6): 1479-1486.
- [187] 白月明,王春乙,温民,等. 臭氧浓度和熏气时间对菠菜生长和产量的影响. 中国农业科学, 2004, 37(12): 1971-1975.
- [188] 郭建平,王春乙,温民,等. 大气中臭氧浓度变化对蔬菜的影响研究. 中国生态农业学报, 2003, 11(2): 18-20.
- [189] 刘建栋,周秀骥,于强,等. 近地层大气臭氧对作物光合作用影响的数值模拟研究. 大气科学, 2004, 28(1): 59-68.
- [190] 佟磊,王效科,毕力格,等. 水稻气孔臭氧通量拟合及通量与产量关系的比较分析. 农业环境科学学报, 2011, 30(10): 1930-1938.
- [191] 黄玉源,黄益宗,李秋霞,等. 臭氧对南方3种木本植物的急性伤害症状及其生理指标变化. 生态环境, 2006, 15(4): 674-681.
- [192] 赵诣,徐胜,何兴元,等. 黑麦草属2草种对臭氧浓度倍增的生理响应. 草地学报, 2015, 23(5): 1013-1020.
- [193] 庄明浩,李迎春,郭子武,等. 臭氧浓度升高对毛竹叶片光合色素和抗性生理的影响. 生态科学, 2011, 30(6): 607-612.
- [194] 马桶,赵春生,陈静,等. 基于实测PM_{2.5}、能见度和相对湿度分辨雾霾的新方法. 中国科学:地球科学, 2015, 45(2): 227-235.
- [195] He H, Wang Y, Ma Q, et al. Mineral dust and nox promote the conversion of SO₂ to sulfate in heavy pollution days. *Scientific Reports*, 2014, 4(4172): 1-5.
- [196] Xie Y, Ding A, Nie W, et al. Enhanced sulfate formation by nitrogen dioxide: Implications from in situ observations at the SORPES station. *J Geophys Res*, 2015, 120(24): 12679-12684.
- [197] Xu W Y, Zhao C S, Ran L, et al. SO₂ noontime-peak phenomenon in the North China Plain. *Atmos Chem Phys*, 2014, 14(15): 7757-7768.
- [198] Ding A, Huang X, Nie W, et al. Enhanced haze pollution by black carbon in megacities in China. *Geophys Res Lett*, 2016, 43: 2873-2879.
- [199] 朱彤,尚静,赵德峰. 大气复合污染及灰霾形成中非均相化学过程的作用. 中国科学:化学, 2010, 40(12): 1731-1740.
- [200] Deng X, Zhou X, Tie X, et al. Attenuation of ultraviolet radiation reaching the surface due to atmospheric aerosols in Guangzhou. *Chin Sci Bull*, 2012, 57(21): 2759-2766.

Observational Study Advances of Haze and Photochemical Pollution in China

Xu Xiaobin

(State Key Laboratory of Severe Weather & Key Laboratory of Atmospheric Chemistry of CMA,
Chinese Academy of Meteorological Sciences, Beijing 100081)

Abstract

In recent decades, haze pollution and photochemical pollution in China have become severe environment-meteorological disasters, causing broad and deep concern of government and public. Many research projects focusing on China's haze and photochemical pollution have been carried out by Chinese scientists

in collaboration with scientists from abroad. A large number of peer-reviewed papers have been published to report results and outcomes from these projects. A review of reported results and outcomes from the study of haze and photochemical pollution in China is given. To limit the length, the paper can only include a concise review of the literature published mainly in the last decade and summarize the outcomes from observations, observation-based analyses, with impact and damage studies. Studies of haze pollution are reviewed, with foci on the haze phenomenon and haze-fog differentiation, the major compositions of haze particles and their sources, meteorological factors influencing haze formation, long-term trends of haze and potential causes. Advances in the study of photochemical pollution are summarized, in terms of characteristics and extent of photochemical pollution, the regional extension of photochemical pollution, the vertical distribution of ozone, factors influencing surface ozone, long-term trends of surface and tropospheric ozone. In addition, it introduces impacts of haze and ozone pollution on human health, impacts of haze on the safety of traffic and electricity transfer, and impacts of ozone pollution on crops, vegetables and natural vegetation. Methods to differentiate haze from fog or mist have been questioned for a long time. The major issue has been the upper limit of relative humidity (RH) for haze, which have influenced the data quality of historical haze and fog records. Recent studies suggest that the RH upper limits for haze (80%) and haze-fog mixture (95%), which are given in the current meteorological standard, should be lowered. Including PM_{2.5} data may facilitate the haze-fog differentiation. However, more studies are necessary in different regions. Although impacted by mineral dust, the major compositions of PM_{2.5} are from anthropogenic sources, including organic compounds, sulfate, nitrate, ammonium, etc. Secondary aerosols dominate the formation severe haze. There have been long-term increases in haze days over many regions of China. These trends can more or less be attributed to factors related with climate change, such as lower wind-speed, lower RH, lower boundary layer height, etc., but should mainly be caused by increased emissions of air pollutants. After the discovery of photochemical smog in Lanzhou, western China, high levels of surface ozone have been often observed in other cities, particularly those in the North China Plain (NCP), Yangtze River Delta (YRD) and Pearl River Delta (PRD) regions. In recent decades, even higher ozone levels have been observed at rural and regional background sites in the above regions, indicating that photochemical pollution in China has become a regional or super-regional phenomenon. Only a few sites in China have been collecting long-term data of surface ozone and ozone profiles are observed only at one site for a longer time. Limited datasets show that levels of ozone in the NCP and PRD regions have been significantly increasing, and there has also been an increase trend in surface ozone at Mt Waliguan, a baseline station in western China. Ozone formation at most urban and rural sites in the NCP, YRD and PRD has been found to be more sensitive to VOCs, species that have been increasingly emitted. It implies that photochemical pollution would become even more severe in the above regions and take a long time to control. In future studies, more attention should be paid to photochemical pollution, to interactions between haze and photochemical pollution, and to coupling among pollutants, meteorology, chemistry and ecosystem.

Key words: haze pollution; photochemical pollution; meteorological influences; impacts of pollution