

苏州郊区主要大气污染物的演变特征及其影响因素研究

鲍孟盈, 曹芳*, 刘寿东, 刘晓妍, 张园园, 张雯淇, 汤天然, 高雅琦, 章炎麟

南京信息工程大学大气环境中心, 江苏 南京 210044

摘要: 大气灰霾污染已经成为了大气环境领域的研究热点之一, 但是目前国内针对背景地区站点的大气污染形成机制和输送规律的研究仍然有限。利用 $PM_{2.5}$ 、 PM_{10} 、 CO 、 SO_2 、 O_3 、 NO_2 等 6 种大气成分质量浓度数据、常规气象要素观测资料、结合 HYSPLIT 后向轨迹模式, 对 2015 年 1 月 15—28 日发生在江苏省苏州市东山镇的一次持续十余天的空气污染过程进行了分析。结果表明, 此次污染过程东山镇经历了一次完整的灰霾生成-积聚-消散的演变过程, 其中包括两个主要污染时段, 1 月 15—19 日轻污染时段和 1 月 22—26 日重污染时段。 $\rho(PM_{2.5})/\rho(PM_{10})$ 平均值达到 62.8% (30.0%~93.4%), 表明 $PM_{2.5}$ 对东山大气颗粒物污染贡献显著。6 种大气污染物相关性分析发现 CO 和 NO_2 与 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 相关性最好, 人为燃烧源和交通源对灰霾形成贡献显著。高空较稳定的环流形势和地面弱气压场的配合以及低压高温高湿的不利气象条件, 阻碍了污染物的垂直和水平扩散, 是此次持续性灰霾天气形成的客观原因。通过风向、风速统计和后向轨迹分析发现, 此次污染过程, 在大风下颗粒物以远程输送为主, 微风下颗粒物以局地排放为主。外来源的输送和本地源排放的叠加造成了灰霾的形成和积聚。轻污染时段, 高浓度污染气团主要来自西北方向的远距离输送, 来自山东、河北等工业发达地区的排放源对东山地区灰霾的形成影响显著。重污染时段, 污染气团主要来自偏南方向的局地输送, 此外来自湖南、江西一带的大规模生物质燃烧生成的高浓度污染气团输送也是污染加重的重要原因。来自东北方向的气流对此次区域灰霾污染起到了清洁作用。

关键词: 大气污染; $PM_{2.5}$; 气象条件; 输送规律; 轨迹分析

DOI: 10.16258/j.cnki.1674-5906.2017.01.018

中图分类号: X16

文献标志码: A

文章编号: 1674-5906 (2017) 01-0119-10

引用格式: 鲍孟盈, 曹芳, 刘寿东, 刘晓妍, 张园园, 张雯淇, 汤天然, 高雅琦, 章炎麟. 2017. 苏州郊区主要大气污染物的演变特征及其影响因素研究[J]. 生态环境学报, 26(1): 119-128.

BAO Mengying, CAO Fang, LIU Shoudong, LIU Xiaoyan, ZHANG Yuanyuan, ZHANG Wenqi, TANG Tianran, GAO Yaqi, ZHANG Yanlin. 2017. Analysis on the characteristics and influencing factors of major air pollutants at a rural site in Suzhou [J]. Ecology and Environmental Sciences, 26(1): 119-128.

随着城市化的发展, 大气灰霾污染已经成为了城市和区域所面临的一个主要大气环境问题之一, 呈现出浓度高、面积大、持续性强的特点(Chen et al., 2016; Ji et al., 2016; Zhang et al., 2015a)。并且很多城市和地区呈现出大气复合污染特征, 高浓度的颗粒物($PM_{2.5}$ 和 PM_{10})和 SO_2 、 NO_x 等污染气体直接导致空气能见度降低(Zhang et al., 2015b), 使空气质量明显下降(王芳等, 2009), 还对人类健康产生严重危害(Lelieveld et al., 2015; Wang et al., 2015a)。人为源被认为是大气污染的主要来源, 例如生物质燃烧、汽车尾气排放、工业排放等等(Adame et al., 2012; Cao et al., 2015; Zhang et al., 2015c)。近年来, 大气气溶胶污染的形成机制、理化特征及气候效应、与气象条件的关系、来源解析等受到了研究学者的广泛关注(Veerabhadran et al.,

2007; Wang et al., 2014; Wang et al., 2015b; Xu et al., 2015; Zhang et al., 2012)。例如, Zhang et al. (2015b) 分析了中国 190 个城市的 $PM_{2.5}$ 浓度的时空分布特征, 发现较强的排放源和不利的天气条件导致中国北方城市的颗粒物平均污染程度明显高于南方城市, 此外边界层的变化对 $PM_{2.5}$ 日变化特征影响显著。Wang et al. (2014) 研究了中国 31 个主要省会城市的 $PM_{2.5}$ 、 PM_{10} 、 O_3 、 NO_x 、 SO_2 和 CO 等 6 种大气污染物的污染特征, 发现 $PM_{2.5}$ 对中国城市大气污染的贡献最显著, 其次是 PM_{10} 和 O_3 。Wang et al. (2015b) 讨论了 2013 年冬季长江三角洲地区一次灰霾过程形成机制和来源解析, 发现汽车尾气排放和生物质燃烧对灰霾形成贡献显著。

大气污染是一个区域性甚至全球性问题, 一个地区的空气污染水平不仅受到本地排放的影响, 还

基金项目: 国家自然科学基金项目(91644103); 江苏省青年基金项目(BK20150895); 南京信息工程大学人才启动基金项目(2243141601075; 2243141501019)

作者简介: 鲍孟盈(1991年生), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为环境科学和大气化学。E-mail: baomy@nuist.edu.cn

***通信作者:** 曹芳(1984年生), 女, 讲师, 博士, 主要研究方向为环境科学和大气化学。E-mail: caofangle@163.com

收稿日期: 2016-12-06

与周边地区的相互输送存在着密切的关系 (Yu et al., 2014; Zhang et al., 2015d)。研究表明, 确定污染物的传输路径, 对确定该地区的污染物来源非常重要, 可以为治污减排提供科学依据 (王飞等, 2012)。目前国内已经开展的关于大气气溶胶污染的研究主要集中京津冀 (Wang, 2015)、长江三角洲 (Cao et al., 2013)、珠江三角洲 (Tan et al., 2009) 的城市地区, 而对背景地区, 尤其是对于城郊之间的污染物输送规律研究得相对较少。陈加山 (2014) 对珠江三角洲背景鼎湖山站大气污染物 O_3 、 NO_x 、 SO_2 、 CO 和颗粒物 ($PM_{2.5}$ 和 PM_{10}) 进行了长期观测, 讨论了其污染特征和来源, 发现在背景地区也观测到了较高浓度的大气污染物, 珠江三角洲地区污染气团的近距离输送是鼎湖山地区的主要大气污染来源, 而来自南方的海洋气团对其具有一定的清除作用。牛彧文等 (2009) 讨论了长江三角洲地区临安本地站的 SO_2 和 NO_x 的浓度变化特征, 结果表明来自背景地区的污染物浓度更容易受到气象条件变化的影响。缪青等 (2015)、林伟立等 (2011) 分别针对黄山地区和金沙本地站讨论了其大气污染的浓度水平和潜在来源, 结果均表明污染气团的长距离输送对背景站点污染物浓度影响显著。国外也有一些学者开展了相关研究, Karaca et al. (2009) 利用 HYSPLIT 研究了远距离输送对土耳其伊斯坦堡 PM_{10} 分布的影响, 发现气团输送有着明显的季节变化规律。Kim et al. (2009) 对韩国两个背景站点的颗粒物 ($PM_{2.5}$ 和 PM_{10}) 污染进行研究, 发现气象条件和区域输送对背景地区的颗粒物污染影响显著。

东山地处长江三角洲地区, 位于苏州郊区, 太湖东南岸, 远离城市, 气候湿润, 有利于气态污染物向颗粒物转化累积, 大气污染物相互影响和输送特征明显 (王茜, 2013)。本文以江苏省苏州市东山镇为研究对象, 针对 2015 年 1 月发生在江苏省全境内的一次持续十余日的灰霾污染天气过程, 结合污染物质量浓度、天气形势、气象要素、边界层高度、水平输送、后向气流轨迹等几个方面综合分析, 研究苏州郊区空气污染水平及其形成机制, 以期为区域灰霾预报和预警提供依据, 也为其他学者有关大气污染的研究提供参考。

1 数据来源与方法

1.1 观测地点

本研究地点为苏州市东山自动气象站 ($120.26^\circ E$, $31.04^\circ N$), 海拔 16.7 m。气象站地处苏州市东山镇, 位于苏州市吴中区东山半岛上, 三面环湖, 远离城区, 人口稀少, 属亚热带季风

气候, 四季分明, 气候温和。气象站建立在一片较为空旷的高地上, 四周视野开阔, 地势平坦。本文以东山为研究地点, 旨在为苏州郊区和长江三角洲背景地区空气污染水平和特征及其来源研究提供参考依据。

1.2 数据来源

空气质量指数 (AQI) 数据来源于中国环境监测总站 (<http://www.cnemc.cn/>)。利用美国 METONE 公司的 BAM-1020 粒子监测仪对东山镇 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 数据进行在线监测, 数据分辨率为 1 h, 该仪器利用 Beta 射线衰减的原理, 当 β 射线通过载有颗粒物的滤膜时, β 射线的能量衰减, 衰减量和颗粒物的质量呈正比关系, 通过对衰减量的测定便可计算出颗粒物的质量浓度。利用澳大利亚 Ecotech 公司的 EC9800 系列环境空气连续自动监测系统对 SO_2 、 NO_2 、 CO 和 O_3 进行在线监测, 数据分辨率为 1 h。该自动监测系统主要包括 EC9850 二氧化硫分析仪、EC9841 氮氧化物分析仪、EC9830 一氧化碳分析仪和 EC9810 臭氧分析仪, 分别利用紫外荧光法、化学发光法、气体过滤相关分析法和紫外分光光度法原理测得 4 种污染气体质量浓度。气象要素数据来自东山自动气象站常规地面观测资料 (包括气温、风向、风速、气压、湿度、能见度)。

1.3 后向轨迹模型

为分析气流输送规律, 本研究采用 NCEP GDAS 再分析资料, 利用 NOAA 后向轨迹模型 HYSPLIT 4.8, 综合考虑实验期间东山地区平均边界层高度和模式模拟精度影响, 选取离地面 500 m 为模拟高度, 对应冬季东山地区平均边界层中上层高度, 能够较好地反映边界层内的输送特征。本研究计算了东山站点每日逐小时气团过去 48 h 的后向气流轨迹, 并进行了轨迹聚类分析, 从而得到东山站大气污染气团路径及来源。

2 污染过程概述

2015 年 1 月 15 日—28 日苏州市全市经历了一次大范围的持续性空气污染过程, 首要污染物为 $PM_{2.5}$ 。由中国环境监测总站 (<http://www.cnemc.cn/>) 发布的数据 (图 1) 可知, 1 月 15—19 日, 苏州市平均 AQI 指数均超过轻度污染限值 (100), 20 日出现了一次短暂的下降过程, 随后苏州市平均 AQI 指数均呈现快速上升趋势; 1 月 22—26 日, 苏州市平均 AQI 指数均超过中度污染限值 (150); 25 日达到最高值 203, 为重度污染级别, 首要污染物 $PM_{2.5}$ 质量浓度达到 $162.0 \mu g \cdot m^{-3}$, 超过国家环境空气质量二级日均标准限值 ($75 \mu g \cdot m^{-3}$) (GB3095—2012) 的 1.2 倍; 1 月 27—28 日随着一场大范围的冷空气活动, 苏州市全区经历了一次降温降水和

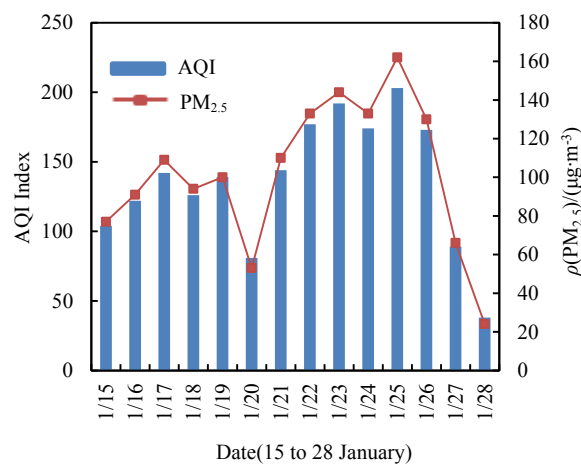


图 1 2015 年 1 月 15—28 日苏州市平均 AQI 指数和 PM_{2.5} 质量浓度变化

Fig. 1 Variation of AQI index and mass concentrations of PM_{2.5} from January 15 to 28, 2015 in Suzhou

大风天气过程，对污染物产生湿清除作用，AQI 指数快速下降，空气质量达到优。

3 结果与讨论

3.1 大气污染物质量浓度特征

3.1.1 大气污染物质量浓度水平

表 1 列出了轻污染阶段（1 月 15—19 日）和重污染阶段（1 月 22—26 日）两个污染时段各污染物质量浓度及变化范围。从表 1 中可知，轻污染阶段，东山镇 PM_{2.5} 和 PM₁₀ 平均质量浓度分别为 54.5 µg·m⁻³ 和 92.7 µg·m⁻³，而在重污染时段，分别为 81.5 µg·m⁻³ 和 118.8 µg·m⁻³，与轻污染时段相比明显升高，最大值分别达到 177.1 µg·m⁻³ 和 236.1 µg·m⁻³，分别超过国家环境空气质量二级日均标准限值（75 µg·m⁻³ 和 150 µg·m⁻³）1.4 倍和 0.6 倍。重污染时段与周边城市对比，如苏州（PM_{2.5}: 140.4 µg·m⁻³; PM₁₀, 141.0 µg·m⁻³）、无锡（PM_{2.5}: 147.8 µg·m⁻³; PM₁₀, 194.4 µg·m⁻³）和南京（PM_{2.5}: 169.2 µg·m⁻³; PM₁₀, 229.0 µg·m⁻³），大气污染程度较轻（数据来源 <http://www.cnemc.cn/>）。轻污染时段 SO₂、NO₂、CO、O₃ 平均质量浓度分别为 28.0、41.2、0.9、59.8 µg·m⁻³，重污染时段 SO₂、NO₂、CO 平均质量浓度均明显升高，分别为 51.7、59.6、1.7 mg·m⁻³，而

O₃ 平均质量浓度为 34.0 µg·m⁻³，低于轻污染时段，这可能是由于机动车尾气排放大量的 NO₂ 与 O₃ 发生反应，导致 O₃ 不容易积聚。两个时段 SO₂、NO₂、CO、O₃ 平均质量浓度均远低于国家环境空气质量标准 1 h 平均二级浓度限值（SO₂: 500 µg·m⁻³; NO₂ 和 O₃: 200 µg·m⁻³; CO: 10 mg·m⁻³）。

对 PM_{2.5} 和 PM₁₀ 进行相关性分析（图 2），结果表明两者具有良好的相关性（R²=0.77），ρ(PM_{2.5})/ρ(PM₁₀) 平均值达到 62.8%，变化范围 30.0%~93.4%，与汤蕾（2013）的研究得到的苏州 ρ(PM_{2.5})/ρ(PM₁₀) 均值 55%，南京 ρ(PM_{2.5})/ρ(PM₁₀) 均值 60%，常州 ρ(PM_{2.5})/ρ(PM₁₀) 均值 60% 的结果接近，表明 PM_{2.5} 对东山大气颗粒物污染贡献显著，东山地区以细颗粒物污染为主。

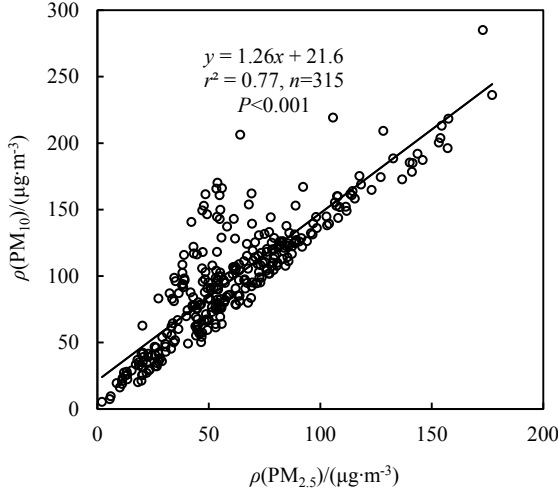


图 2 2015 年 1 月 15—28 日东山镇 PM_{2.5} 和 PM₁₀ 质量浓度散点图
Fig. 2 Scatter plots of PM_{2.5} mass concentration vs. PM₁₀ mass concentration from 15 to 28 January, 2015, at Dongshan site

3.1.2 大气污染物质量浓度变化特征

1 月 15—28 日东山镇大气 PM_{2.5}、PM₁₀、CO、SO₂、O₃ 和 NO₂ 质量浓度时间变化序列如图 3 所示。由图可见，1 月 15—28 日，东山镇经历了一次完整的灰霾生成-积聚-消散的演变过程。PM_{2.5}、PM₁₀、CO、NO₂ 等 4 种大气成分变化趋势较一致，1 月 15—26 日基本呈现出逐渐增高的趋势，由轻度污染逐渐发展成重度污染，1 月 27—28 日各大气污染物质

表 1 颗粒物及其他污染气体质量浓度统计

Table 1 Statistical summary on the mass concentrations of particulate matters and other air pollutants

Date	Project	ρ(PM _{2.5})/(µg·m ⁻³)	ρ(PM ₁₀)/(µg·m ⁻³)	ρ(O ₃)/(µg·m ⁻³)	ρ(CO)/(mg·m ⁻³)	ρ(SO ₂)/(µg·m ⁻³)	ρ(NO ₂)/(µg·m ⁻³)	ρ(PM _{2.5})/ρ(PM ₁₀)/%
Jan. 15—Jan. 19	Average	54.5	92.7	59.8	0.9	28.0	41.2	62.4
	Maximum	141.4	206.3	129.7	1.6	46.9	115.2	93.4
	Minimum	18.2	20.1	13.5	0.1	18.6	14.4	30.0
Jan. 22—Jan. 26	Average	81.5	118.8	34.0	1.7	51.7	69.6	67.9
	Maximum	177.1	236.1	121.9	3.1	186.0	238.8	84.7
	Minimum	33.3	60.1	10.6	0.6	22.0	20.1	37.0

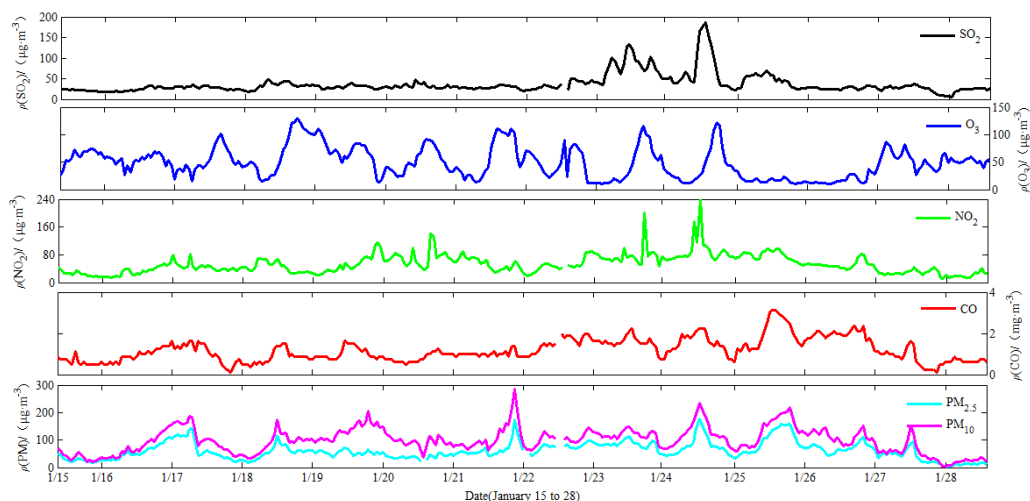


图3 2015年1月15—28日东山东站大气污染物质量浓度时间序列

Fig. 3 Time series of the mass concentrations of atmospheric pollutants from 15 to 28 January, 2015 at Dongshan site

表2 大气污染物之间的相关性

Table 2 Correlations between atmospheric pollutants

Project	PM _{2.5}	PM ₁₀	CO	NO ₂	SO ₂	O ₃
PM _{2.5}	1					
PM ₁₀	0.88**	1				
CO	0.79**	0.67**	1			
NO ₂	0.51**	0.59**	0.48**	1		
SO ₂	0.51**	0.43**	0.45**	0.59**	1	
O ₃	-0.23**	-0.16**	-0.33**	-0.37**	-0.06	1

**: Correlation is significant at the 0.01 level (2-tailed)

量浓度均开始下降。SO₂变化较缓, 仅在23—25日出现明显升高过程, 该阶段其他污染物质量浓度也表现出了明显的上升过程, 说明该阶段东山地区污染较严重, 附近可能有较强排放源。相关性分析表明(表2), CO与PM_{2.5}、PM₁₀相关性最好, 相关系数分别达到0.79、0.67, NO₂与PM_{2.5}、PM₁₀的相关性次之, 分别为0.57、0.51, SO₂与PM_{2.5}、PM₁₀

的相关系数分别为0.51、0.43, 说明颗粒物(PM_{2.5}和PM₁₀)和CO、NO₂、SO₂之间具有一定的同源性。CO作为人为燃烧源排放的指示物, 在大气中相对稳定; NO₂通常被认为来自交通源; 而SO₂主要来自燃煤源(Zhang et al., 2015b; Xu et al., 2015)。由此可知, 燃烧源和汽车尾气排放对东山灰霾形成的贡献不可忽视。O₃与PM_{2.5}、PM₁₀、CO、NO₂均呈负相关, 这可能与O₃参与NO₂在空气的光化学反应有关。此外, 大气中的颗粒物(PM_{2.5}和PM₁₀)能够吸收和散射太阳辐射, 影响光化学反应的发生, 可能也会导致O₃质量浓度出现低值(Yang et al., 2015; Cheung et al., 2001)。

3.1.3 大气污染物平均日变化特征

图4为两个时段各大气成分质量浓度平均日变化。从图中可知, 两个阶段O₃日变化规律最为明显, 均在清晨达到谷值, 下午达到峰值, 与太阳辐

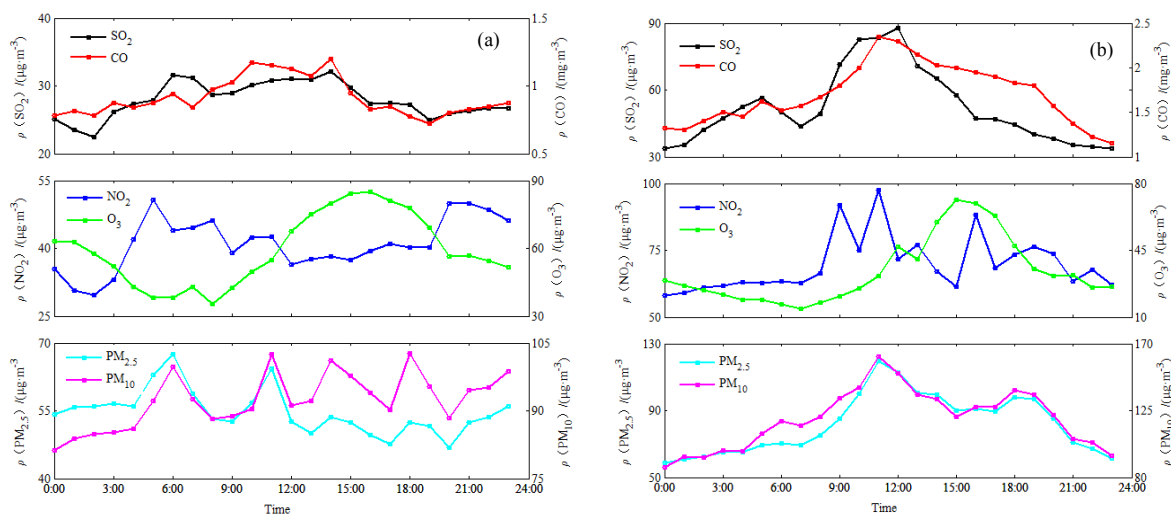


图4 2015年1月15—19日(a)和1月22—26日(b)东山东站大气污染物平均日变化

Fig. 4 Diurnal variations of atmospheric pollutants mass concentrations from 15 to 19 January (a) and from 22 to 26 January (b), 2015 at Dongshan site

射强度密切相关。而其他污染物质量浓度在 1 月 15—19 日轻污染时段日变化相对不明显，无明显规律，但可以看出 $\text{PM}_{2.5}$ 和 NO_2 质量浓度夜间大于白天，受边界层影响较为显著，夜间边界层高度降低，大气层结稳定，不利于污染物的扩散（Zhang et al., 2015b）。而在 1 月 22—26 日重污染时段，各污染物质量浓度均表现出白天高、夜间低的日变化特征，反映了人为活动对东山地区大气污染的影响显著。 $\text{PM}_{2.5}$ 、 PM_{10} 和 NO_2 质量浓度日变化均呈现双峰型变化特征，在 11:00 达到第 1 个峰值，在 18:00 达到第 2 个峰值，反映了早晚交通高峰对大气污染物的贡献显著。 CO 和 SO_2 质量浓度日变化呈现明显单峰型特征，分别在 11:00 和 12:00 达到峰值，在 23:00 点和 24:00 降至最低值。下午 CO 和 SO_2 质量浓度降低，这可能是受到边界层变化的影响，大气对流活动增强，边界层抬升，有利于污染物充分扩散，质量浓度下降。 CO 和 SO_2 主要来自化石燃料的燃烧，燃煤或者生物质燃烧排放，它们的浓度更容易受到本地排放源的影响（Luvsan et al., 2012; Yan et al., 2015）。不同污染水平阶段下，不同的污染物日变化特征反映了两个阶段大气污染的来源可能不同。本地交通

源和燃烧源的增加很可能是导致 1 月 22—26 日污染加重的重要原因。

3.2 气象条件的影响

3.2.1 天气形势

不利于污染物扩散的天气形势和气象条件是形成大气高浓度污染的重要原因（刘兴中等，1992；史宇等，2013）。研究发现高空平稳的大气环流配合地面高压或者弱气压场的天气形势，非常不利于污染物的垂直输送和水平扩散，污染物容易累积造成污染天气（任雅斌等，2012；朱佳雷等，2011；刘厚凤等，2015）。从 1 月 16—26 日的高空 500 hPa、低层 700 hPa、850 hPa 以及地面天气图（图略）可以知，欧亚大陆高空天气系统稳定，500 hPa 以纬向环流为主，经向风弱；地面 10 d 污染过程中有 8 d 受弱高压或者均压场控制，近地层为下沉气流，水平气压梯度小，等压线稀疏，限制了污染物在垂直方向上的输送，也阻碍了污染物的水平扩散。图 5 为 1 月 23 日重污染日对应的天气形势。江苏全省高空 500 hPa 受槽后西北气流控制，存在负涡度平流，有利于地面增压；700 hPa 和 850 hPa 均受弱脊控制，无明显的冷暖平流和风切变；地面受弱高压

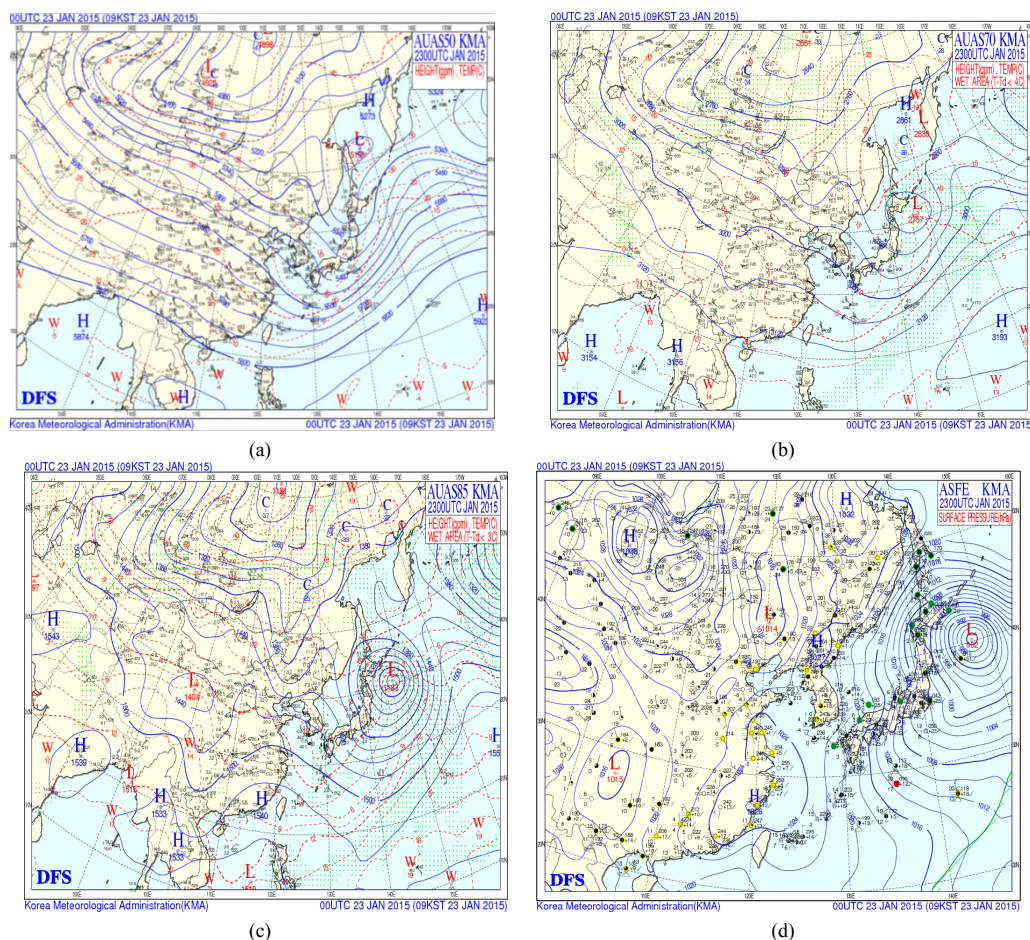


图 5 1 月 23 日 8 点 500 hPa (a)，700 hPa (b)，850 hPa (c) 和地面 (d) 天气图。

Fig. 5 500 hPa (a), 700 hPa (b), 850 hPa (c) and surface (d) weather patterns at 8:00 on January 23

控制,整个系统比较深厚,且气压场分布比较稀疏,导致地面风速降低,影响了大气水平扩散能力,再加上不利的水汽条件,导致灰霾天气持续发展。

3.2.2 气象要素

此次污染过程东山地区平均温度 6.7 ℃,平均相对湿度 74.6%,平均风速 2.6 m·s⁻¹,总体表现为相对低温高湿静小风的气象条件。能见度的降低是灰霾天气出现的最主要特征之一(刘爱霞等, 2012)。由相关性分析(表 3)可知,能见度与 PM_{2.5}、PM₁₀ 呈显著负相关关系,这表明能见度在很大程度上受到大气颗粒物的影响。颗粒物质量浓度与气压呈显著负相关,而与温度呈显著正相关,说明高温低压的气象条件有利于颗粒物的生成。当相对湿度小于 60%时,PM_{2.5}和相对湿度呈显著正相关,而当相对湿度大于 60%时,颗粒物与相对湿度不存在显著的相关关系。这与董雪玲等(2007)的研究结果相似,即在一定的湿度范围内(以不发生重力沉降

为界限),相对湿度越大,越有利于颗粒物的形成,由于水汽的吸湿作用,颗粒物悬浮在空气中不易扩散,容易造成颗粒物的较重污染。

一般认为,在一定的风速范围内,扩散作用占主导,风速较小不利于污染物的扩散,容易导致污染物浓度的升高;相反,风速较大时污染物浓度也会偏低(郎凤玲等, 2013; Zhang et al., 2015e)。通过相关性分析(表 3)可知,当风速大于 3 m·s⁻¹时,PM_{2.5}、PM₁₀与风速呈显著正相关;而当风速小于 3 m·s⁻¹时,颗粒物与风速不存在显著的相关关系。由此说明,在大风条件下,东山地区 PM_{2.5}和 PM₁₀主要来自其他地区的污染输送,而在微风条件下则以局地排放源为主。进一步研究不同风向上风的扩散与输送作用对颗粒物质量浓度的影响(图 6),结果表明在西北风增强的情况下,PM_{2.5}质量浓度也随之显著升高($P<0.001$),说明风速越大越有利于西北气流带来的污染气团向东山地区的输送,加重

表 3 颗粒物质量浓度和气象参数的相关性

Table 3 Correlations between particulate matters and meteorological parameters

Project	$v_{wind}(\leq 3\text{ m}\cdot\text{s}^{-1})$	$v_{wind}(>3\text{ m}\cdot\text{s}^{-1})$	Pressure	Temperature	Relative Humidity ($\leq 60\%$)	Relative Humidity ($>60\%$)	Visibility
PM _{2.5}	-0.04	0.49**	-0.31**	0.30**	0.30*	0.05	-0.60**
PM ₁₀	-0.05	0.51**	-0.28**	0.40**	-0.08	-0.07	-0.36**

** : Correlation is significant at the 0.01 level (2-tailed); * : Correlation is significant at the 0.05 level (2-tailed)

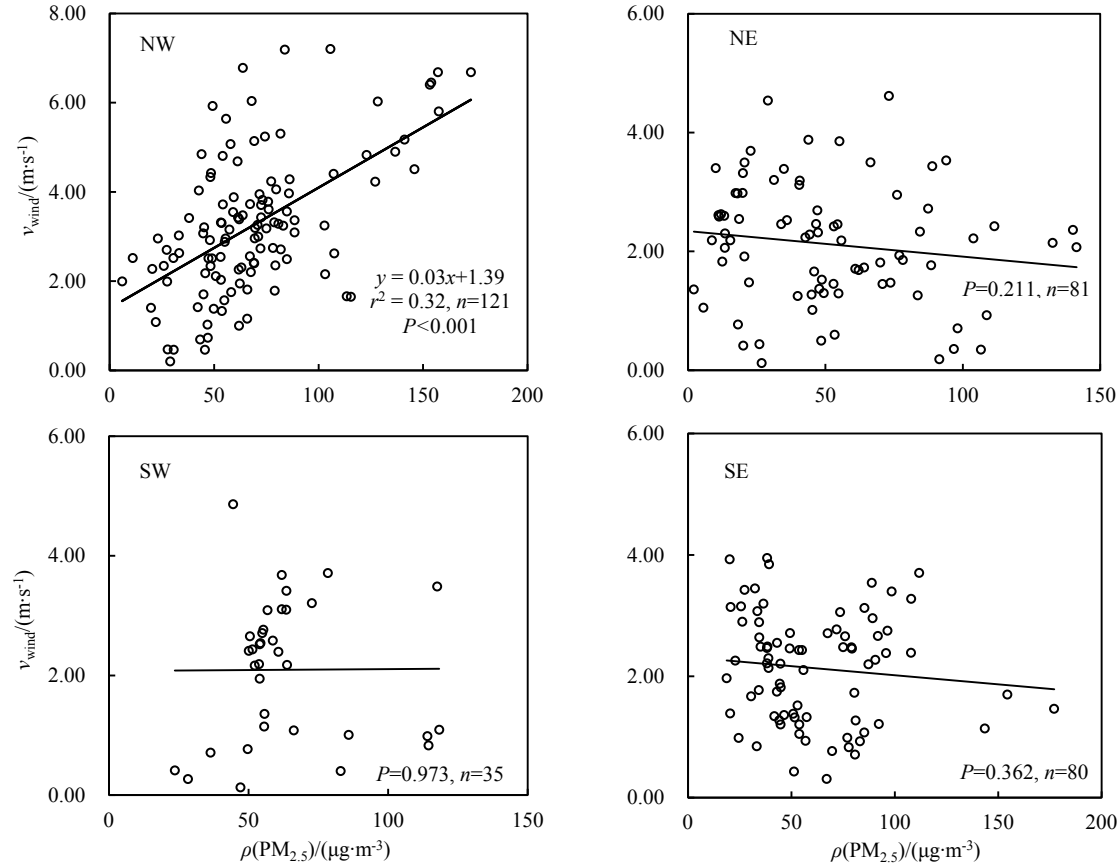


图 6 不同风向上风速和 PM_{2.5}质量浓度散点图

Fig. 6 Scatter plots of wind speed vs. PM_{2.5} mass concentration in different wind directions

了东山地区的空气污染,体现了污染气团的远距离输送对东山地区大气污染的影响。但在其他 3 个风向中,风速与 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度的关系不显著 ($P>0.001$),表明除了受外来污染气团输入影响外,本地污染源的贡献也不可忽视。

3.2.3 大气边界层

大气边界层的高度直接影响到污染物的垂直扩散(贾梦唯等, 2014)。图 7 所示为 1 月 15—28 日东山镇大气边界层高度和大气颗粒物质量浓度日变化。 $\text{PM}_{2.5}$ 和 PM_{10} 质量浓度和边界层高度呈显著负相关,相关系数分别为-0.20 和-0.24。此次污染过程,东山镇平均边界层高度为 416.2 m,最低值出现在 24 日 02:00,为 16.2 m,最高值出现在 21 日 14:00,为 1152.0 m。1 月 23—25 日污染较严重时段,边界层高度基本保持在 400 m 以下,平均为 298.2 m。较低高度的边界层导致污染物大量积累,形成了持续性的高浓度污染特征。而在 1 月 19 日以及 1 月 21—22 日同时观测到了较高的颗粒物质量浓度和边界层高度,这可能与污染物的外源输送有关。

3.3 污染物水平输送场特征

3.3.1 水平输送与扩散对颗粒物质量浓度的影响

为了深入探讨此次污染过程污染气团的不同

来源,对近地面 10 m 风向、风速进行统计分析。从风速玫瑰图(图 8a)可知,此次污染过程主导风向主要为西北风,占全部风向的 38%,其次在东北风和东南风分别约占全部风向的 26% 和 25%。不同风向上的风速差异非常明显。西北风的风速明显高于其他方向,最大风速达到了 $7.2 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$,平均风速达到 $3.3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$;而其他 3 个风向上,风速普遍较低,以“微风”为主,平均风速均为 $2.1 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ 。另外, $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度玫瑰图显示(图 8b),超过 $150 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 的高质量浓度 $\text{PM}_{2.5}$ 主要分布在西北方向上,在东南方向上也出现了几次高浓度污染,而东北和西南方向上的 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度分布则相对比较均匀。西北、西南、东南、东北 4 个方向上的 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度平均值分别为 68.1、64.1、60.7、50.9 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 。通过上述分析可知,来自西北和偏南方向的高浓度污染气团是此次东山污染过程的两个主要来源,而来自东北方向的气流起到了清洁作用。

3.3.2 后向轨迹分析

为了进一步对比两个时段污染物的输送路径和局地来源,分析其演变成因,利用 HYSPLIT 后向轨迹模型分别对两个污染时段进行过去 48 h 后向轨迹计算,并对计算结果进行聚类分析,结果如

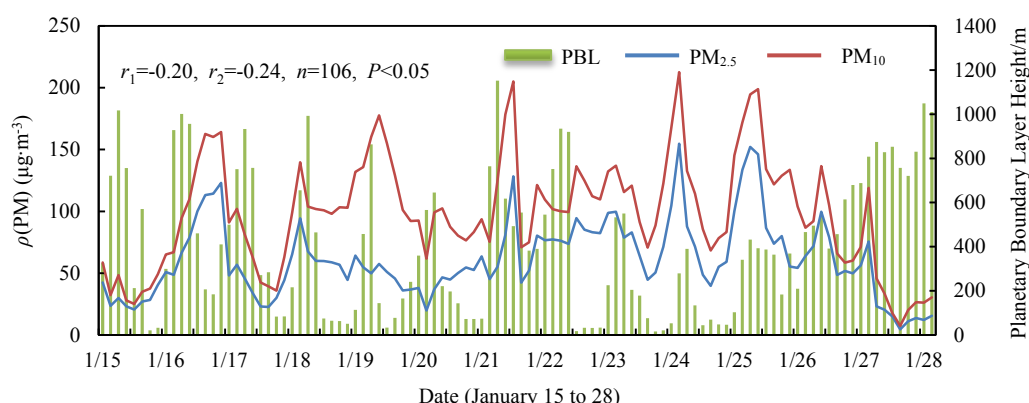


图 7 2015 年 1 月 15—28 日东山东站大气边界层高度和大气颗粒物质量浓度日变化

Fig. 7 Diurnal variations of atmospheric matter mass concentrations and planetary boundary layer height from 15 to 28 January, 2015 at Dongshan site

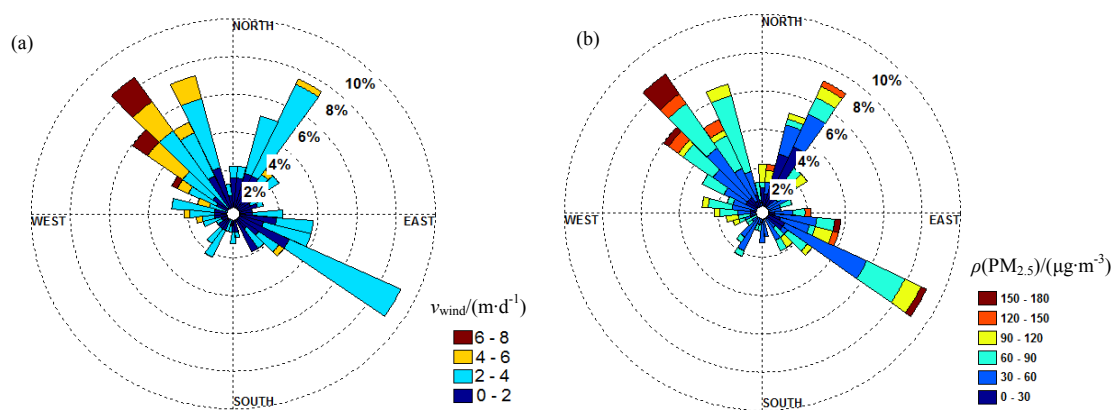


图 8 2015 年 1 月 15—28 日东山东站风玫瑰图 (a) 和 $\text{PM}_{2.5}$ 玫瑰图 (b)

Fig. 8 Wind rose (a) and $\text{PM}_{2.5}$ rose (b) from 15 to 28 January, 2015 at Dongshan site

图9所示。将聚类前每条轨迹对应时次的 $PM_{2.5}$ 质量浓度按照聚类分析后的轨迹进行分类,得到不同轨迹下对应的 $PM_{2.5}$ 质量浓度,结果如图10所示。从图9中可知,在前后两个污染时段,污染气团的来源有所差异。轻污染时段,主要有两条输送轨迹,来自河南途经安徽的区域输送轨迹(1类)占总轨迹条数的53%,是影响此阶段污染的主要轨迹;而来自内蒙古地区途经河北、山东到达江苏的远距离输送轨迹(2类)占总轨迹条数的47%。两类轨迹均反映了来自西北方向的污染气团的输送,说明外源输送对此次东山污染过程的影响不可忽视。对比两类轨迹上的 $PM_{2.5}$ 质量浓度,2类轨迹下的 $PM_{2.5}$ 质量浓度略高于1类轨迹,反映了来自河北、山东等工业发达地区的污染气团对东山地区大气污染具有重要影响。重污染时段,来自西南方向途经湖南、江西一带的长距离输送轨迹(2类)是影响此阶段的主要轨迹,占总轨迹条数的43%;其次是来

自山东途经江苏的第1类轨迹,占总轨迹条数的24%;再次是来自陕西途经河南、安徽到达江苏的长距离输送轨迹(3类)占总轨迹条数的19%;第4类轨迹占总轨迹条数的14%,距离较短,主要反映了来自偏南气流的局地输送。对比重污染时段各类轨迹上的 $PM_{2.5}$ 平均质量浓度,发现第3类>第4类>第2类>第1类,由此可知第4类轨迹虽然所占比例最小,但是高浓度污染气团出现在此轨迹下。以国家环境空气质量二级日均标准限值($75 \mu g \cdot m^{-3}$)为阈值,将高于 $75 \mu g \cdot m^{-3}$ 的轨迹定义为污染轨迹并求其 $PM_{2.5}$ 质量浓度平均值,结果表明第4类轨迹下污染轨迹对应的 $PM_{2.5}$ 质量浓度最高,为 $121.8 \mu g \cdot m^{-3}$,其次是第2类轨迹,为 $105.85 \mu g \cdot m^{-3}$ 。利用Terra卫星和Aqua卫星的MODIS遥感火点资料,结合HYSPLIT后向轨迹模型(图11),发现2015年1月21—25日,在江西、湖南、福建、广东一带监测到大量火点,正好对应第2类轨迹。研究表

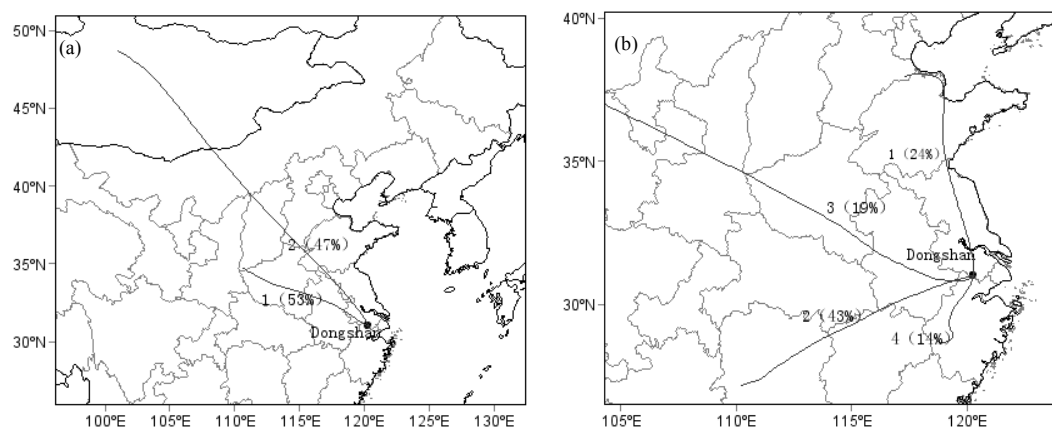
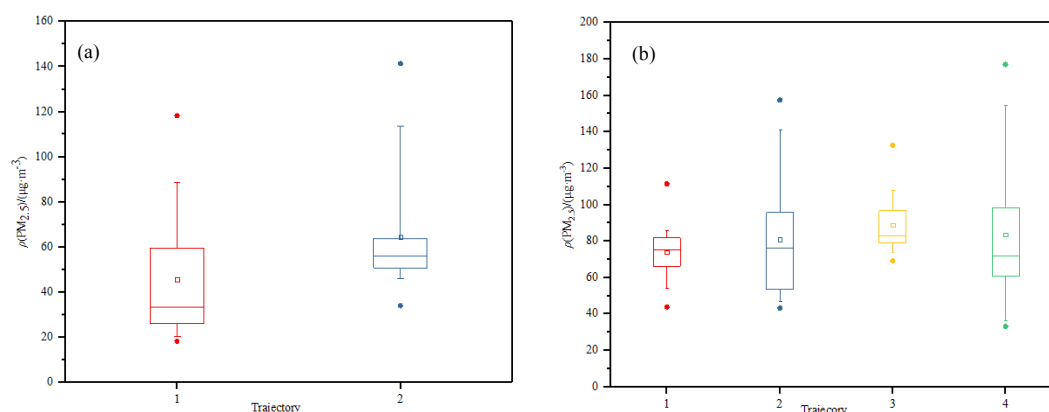


图9 2015年1月15—19日(a)和1月22—26日(b)东电站500 m高度过去48 h后向轨迹

Fig. 9 Air masses clusters obtained at 500 m with 48-hour back trajectories from 15 to 28 January (a) and from 22 to 26 January (b), 2015 at Dongshan site



盒子内的横线代表中值,空心正方形代表平均值,盒子上下边分别代表质量浓度大小在25%和75%的值,盒子上下垂直线代表质量浓度从10%到90%的值,上下两个实心圆点代表质量浓度最大值和最小值

The central box represents the values from the lower to upper quartile (25 th to 75 th percentile). The middle line represents the median. The vertical line extends from the 10 th percentile to the 90 th percentile. The hollow square represents the average value. The dots represent the maximum and minimum values

图10 轻污染时段(a)和重污染时段(b)不同轨迹下 $PM_{2.5}$ 质量浓度箱线图

Fig. 10 Box plots of $PM_{2.5}$ mass concentrations under different trajectories during slightly polluted period (a) and heavily polluted period (b)

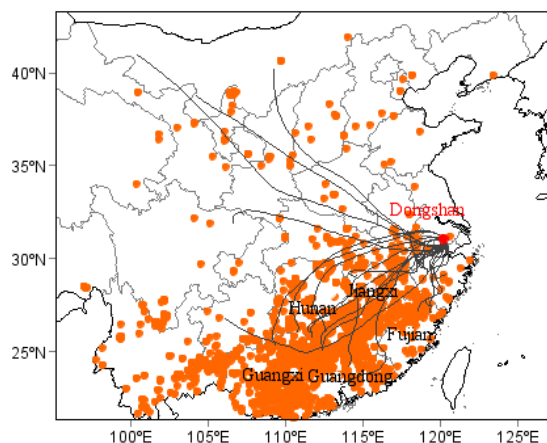


图 11 2015 年 1 月 23—25 日东山站 500 m 高度逐 3 h 过去 48 h 后向轨迹, 底图为 2015 年 1 月 21—25 日 MODIS 遥感火点地图

Fig. 11 The 48-hour backward trajectories from January 23 to 25, 2015 plotted on the fire map from January 21 to 25, 2015 obtained from the Fire Information for Resource Management System (FIRMS) derived from the Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS)

明, 生物质燃烧可以产生 O_2 、 NO_x 、 O_3 、 CO 、挥发性有机物 (VOCs) 和颗粒物等多种大气污染物 (Zhang et al., 2015a), 说明了来自西南方向的大面积生物质燃烧生成的污染气团以及来自偏南方向的局地输送气团直接导致了 1 月 22—26 日东山地区污染加重, 对大气灰霾形成具有重要影响; 加之不利的气象条件, 共同导致东山地区发生本次大气污染过程。

4 结论

(1) 此次污染过程东山镇经历了一次完整的灰霾生成-积聚-消散的演变过程, 主要经历了两个时段, 分别为 1 月 15—19 日轻污染时段和 1 月 22—26 日重污染时段。东山位于苏州郊区, 对比周边城市地区, 污染程度较轻。 $\rho(PM_{2.5})/\rho(PM_{10})$ 平均值达到 63%, 表明 $PM_{2.5}$ 对东山大气颗粒物污染贡献显著, 东山地区以细颗粒物污染为主。相关性分析结果表明 $PM_{2.5}$ 、 PM_{10} 、 CO 、 NO_2 4 种大气污染物具有同源性, 反映了人为燃烧源和交通源对此次污染过程的显著影响。

(2) 通过天气形势和颗粒物与气象参数相关性分析发现, 高空稳定的天气形势配合地面弱高压系统的控制和均压场分布, 较低的边界层高度以及高温高湿低压的不利气象条件, 严重阻碍了污染物的垂直和水平扩散, 导致污染物的大量积累, 形成了持续性的高浓度污染特征。风向、风速统计分析结果表明东山地区此次污染过程在大风条件下以远距离输送为主, 而在微风条件下以局地排放为主。外来输送源和本地排放源的叠加对此次灰霾过程影响显著。

(3) 通过 HYAPLIT 后向轨迹计算可知, 轻污染

时段, 高浓度污染气团主要来自西北方向的远距离输送, 来自山东、河北等工业发达地区的气团输送对东山地区灰霾形成影响显著; 重污染时段, 除了来自西北方向的远距离输送外, 来自湖南、江西一带的大规模生物质燃烧生成的高浓度污染气团和来自偏南方向的高浓度局地输送气团是东山地区污染加重的主要原因。

参考文献:

- ADAME J A, NOTARIO A, VILLANUEVA F, et al. 2012. Application of cluster analysis to surface ozone, NO_2 and SO_2 daily patterns in an industrial area in Central-Southern Spain measured with a DOAS system [J]. *Science of the Total Environment*, 429(7): 1-3.
- CAO F, ZHANG S C, KAWAMURA K, et al. 2015. Inorganic markers, carbonaceous components and stable carbon isotope from biomass burning aerosols in Northeast China [J]. *Science of the Total Environment*, 24(3): 671-82.
- CAO J J, ZHU C S, TIE X X, et al. 2013. Characteristics and sources of carbonaceous aerosols from Shanghai, China [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(2): 803-817.
- CHEN D, CUI H F, ZHAO Y, et al. 2016. A two-year study of carbonaceous aerosols in ambient $PM_{2.5}$, at a regional background site for western Yangtze River Delta, China [J]. *Atmospheric Research*, 183: 351-361.
- CHEUNG V T F, WANG T. 2001. Observational study of ozone pollution at a rural site in the Yangtze Delta of China [J]. *Atmospheric Environment*, 35(29): 4947-4958.
- JI D S, ZHANG He, J, WANG X J, et al. 2016. Characteristics of atmospheric organic and elemental carbon aerosols in urban Beijing, China [J]. *Atmospheric Environment*, 125: 293-306.
- KARACA F, ANIL I, ALAGHA O. 2009. Long-range potential source contributions of episodic aerosol events to PM_{10} , profile of a megacity [J]. *Atmospheric Environment*, 43(36): 5713-5722.
- KIM Y J, WOO J H, MA Y I, et al. 2009. Chemical characteristics of long-range transport aerosol at background sites in Korea [J]. *Atmospheric Environment*, 43(34): 5556-5566.
- LELIEVELD J, EVANS J S, FNAIS M, et al. 2015. The contribution of outdoor air pollution sources to premature mortality on a global scale [J]. *Israel Medical Association Journal* Imaj, 525(7569): 367-71.
- LUVSAN M E, SHIE R H., PUREVDORJ T, et al. 2012. The influence of emission sources and meteorological conditions on SO_2 , pollution in Mongolia [J]. *Atmospheric Environment*, 61(61): 542-549.
- TAN J H, DUAN J C, HE K B, et al. 2009. Chemical characteristics of $PM_{2.5}$ during a typical haze episode in Guangzhou [J]. *Journal of Environmental Sciences*, 21(6): 774-81.
- VEERABHADRAN R, RAMANA M V, GREGORY R, et al. 2007. Warming trends in Asia amplified by brown cloud solar absorption [J]. *Nature*, 448(7153): 575-8.
- WANG H. 2015. Chemical Composition and Light Extinction Contribution of $PM_{2.5}$ in Urban Beijing for a 1-Year Period [J]. *Aerosol and Air Quality Research*, DOI: 10.4209/aaqr.2015.04.0257.
- WANG J, HO S S H, CAO J, et al. 2015a. Characteristics and major sources of carbonaceous aerosols in $PM_{2.5}$ from Sanya, China [J]. *Science of the Total Environment*, 530-531C: 110-119.
- WANG M, CAO C, LI G, et al. 2015b. Analysis of a severe prolonged regional haze episode in the Yangtze River Delta, China [J]. *Atmospheric Environment*, 102: 112-121.
- WANG Y S, YAO L, WANG L L, et al. 2014. Mechanism for the formation of the January 2013 heavy haze pollution episode over central and eastern China [J]. *Science China Earth Science*, 57(1): 14-25.
- WANG Y, YING Q, HU J, et al. 2014. Spatial and temporal variations of six criteria air pollutants in 31 provincial capital cities in China during 2013—2014 [J]. *Environment International*, 73(1): 413-422.
- XU J, YAN F, XIE Y, et al. 2015. Impact of meteorological conditions on a nine-day particulate matter pollution event observed in December 2013, Shanghai, China [J]. *Particuology*, 20(3): 69-79.
- YAN R, YU S, ZHANG Q, et al. 2015. A heavy haze episode in Beijing in

- February of 2014: characteristics, origins and implications [J]. *Atmospheric Pollution Research*, 6(5): 867-876.
- YANG Y, LIU X, QU Y, et al. 2015. Formation mechanism of continuous extreme haze episodes in the megacity Beijing, China, in January 2013 [J]. *Atmospheric Research*, 155: 192-203.
- YU S, ZHANG Q, YAN R, et al. 2014. Origin of air pollution during a weekly heavy haze episode in Hangzhou, China [J]. *Environmental Chemistry Letters*, 12(4): 543-550.
- ZHANG H, WANG Y, HU J, et al. 2015e. Relationships between meteorological parameters and criteria air pollutants in three megacities in China [J]. *Environmental Research*, 140: 242-254.
- ZHANG Q Y, YAN R C, FAN J W, et al. 2015d. A heavy haze episode in Shanghai in December of 2013: characteristics, origins and implications [J]. *Aerosol and Air Quality Research*, DOI: 10.4209/aaqr.2015.03.0179.
- ZHANG X Y, WANG Y Q, NIU T, et al. 2012. Atmospheric aerosol compositions in China: spatial/temporal variability, chemical signature, regional haze distribution and comparisons with global aerosols [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12(2): 779-799.
- ZHANG Y L, CAO F. 2015a. Is it time to tackle PM_{2.5} air pollution in China from biomass-burning emissions? [J]. *Environmental Pollution*, 202: 217-219.
- ZHANG Y L, CAO F. 2015b. Fine particulate matter (PM_{2.5}) in China at a city level [J]. *Scientific Reports*, DOI: 10.1038/srep14884.
- ZHANG Y L, SCHNELLEKREIS J, ABBASZADE G, et al. 2015c. Source apportionment of elemental carbon in Beijing, China: insights from radiocarbon and organic marker measurements [J]. *Environmental Science and Technology*, 49(14): 8408-8415.
- 陈加山. 2014. 珠江三角洲区域背景大气污染特征和气溶胶光学特性的综合分析[D]. 南京: 南京信息工程大学.
- 董雪玲, 刘大猛, 袁杨森, 等. 2007. 北京市 2005 年夏季大气颗粒物污染特征及影响因素[J]. *环境工程学报*, 1(9): 100-104.
- 贾梦唯, 康娜, 赵天良. 2014. 南京秋冬季典型霾污染过程及边界层特征分析[J]. *环境科学与技术*, S2:105-110.
- 郎凤玲, 闫伟奇, 张泉, 等. 2013. 北京大气颗粒物数浓度粒径分布特征及与气象条件的相关性[J]. *中国环境科学*, 33(7): 1153-1159.
- 林伟立, 徐晓斌, 孙俊英, 等. 2011. 金沙大气本底站反应性气体本底浓度及长距离输送的影响[J]. *中国科学: 地球科学*, 41(4): 573-582.
- 刘爱霞, 韩素芹, 蔡子颖, 等. 2012. 天津地区能见度变化特征及影响因素研究[J]. *生态环境学报*, 21(11): 1847-1850.
- 刘厚凤, 杨欣, 陈义珍, 等. 2015. 中国重霾过程污染气象研究进展[J]. *生态环境学报*, 24(11): 1917-1922.
- 刘兴中, 严从路, 牛玉琴, 等. 1992. 南京大气高浓度污染的特征及与气象条件的关系[J]. *气象科学*, 12(1): 107-112.
- 缪青, 张泽锋, 李艳伟, 等. 2015. 黄山夏季大气颗粒物中碳粒径分布特征及其输送潜在源区[J]. *中国环境科学*, 35(7): 1938-1946.
- 牛晓文, 顾骏强, 浦静姣, 等. 2009. 长三角区域背景地区 SO₂ 和 NO_x 本底特征[J]. *环境化学*, 28(4): 590-593.
- 任雅斌, 苏继锋, 朱彬, 等. 2012. 南京市一次连续空气污染过程的气象条件分析[J]. *环境监控与预警*, 4(1): 6-10.
- 史宇, 张建辉, 罗海江, 等. 2013. 北京市 2012—2013 年秋冬季大气颗粒物污染特征分析[J]. *生态环境学报*, 22(9): 1571-1577.
- 汤蕾. 2013. 苏南三市大气颗粒物污染特征研究[D]. 南京: 南京信息工程大学.
- 王芳, 陈东升, 程水源, 等. 2009. 基于气流轨迹聚类的大气污染输送影响[J]. *环境科学研究*, 22(6): 637-642.
- 王飞, 朱彬, 康汉清, 等. 2012. 影响南京地区的两次典型空气污染过程分析[J]. *环境科学*, 33(10): 3647-3655.
- 王茜. 2013. 利用轨迹模式研究上海大气污染的输送来源[J]. *环境科学*, 26(4): 357-363.
- 朱佳雷, 王体健, 邢莉, 等. 2011. 江苏省一次重霾污染天气的特征和机理分析[J]. *中国环境科学*, 31(12): 1943-1950.

Analysis on the Characteristics and Influencing Factors of Major Air Pollutants at A Rural Site in Suzhou

BAO Mengying, CAO Fang, LIU Shoudong, LIU Xiaoyan, ZHANG Yuanyuan, ZHANG Wenqi,
TANG Tianran, GAO Yaqi, ZHANG Yanlin

Yale-NUIST Center on Atmospheric Environment, Nanjing University of Information Science and Technology, Nanjing 210044, China

Abstract: China has frequently suffered regional-scale haze pollution in recent years, however, only a few studies have been conducted at rural sites in China, especially on the transport characteristics of air pollutants between rural sites and surrounded urban areas. Based on the observation of air pollutants (PM_{2.5}, PM₁₀, SO₂, NO₂, CO and O₃) and conventional meteorological parameters, air pollution problems from January 15 to 28, 2015 at a rural site (Dongshan) in Suzhou, China were analyzed in this study. The air mass back trajectory model (HYSPLIT) was used to identify source of PM_{2.5}. There were two major pollution periods observed corresponding to slighted polluted period during January 15 to 19 and heavily polluted period during January 22 to 26 during the whole generation-accumulation-dissipation process of the haze formation. PM_{2.5} accounted for 62.8% of PM₁₀ with the range of 30.0%~93.4%, indicating the significant fine particulate matter pollution in Dongshan. Better correlations were found among CO, NO₂, PM_{2.5} and PM₁₀, reflecting the common origin of these species from fossil fuel combustion and vehicle emission. Our analysis also showed that steady circumfluence and weak pressure on the surface with the meteorological condition of high humidity, high temperature and low pressure prevented pollutants from dispersing and caused the high pollution level. The analysis on the wind direction and speed showed that PM_{2.5} concentrations in Dongshan under different wind speed conditions showed different source features. Under high wind speed conditions, strong long-range transport was found, while under low wind speed conditions strong local emissions were found. The HYSPLIT model analysis showed that both long-range transport from the northwest of Dongshan and local emissions from the southeast of Dongshan could significantly contribute to heavy air pollution at Dongshan. During slightly polluted period, high polluted air masses often originated from industrial provinces (i.e., Shandong and Hebei) in eastern China. During heavily polluted period, strong local emissions from the southern Dongshan were found. In addition, open biomass-burning emissions in Jiangxi and Hunan may also significantly decrease regional air quality, which was supported by MODIS fire spots and receptor models. Clean air masses reaching the Dongshan site were mostly from the northeast area of Dongshan.

Key words: air pollution; PM_{2.5}; meteorological conditions; transport characteristics; trajectory analysis