

江琪,王飞,张恒德,等,2019.2016年冬季京津冀豫大气污染的时空分布及影响因子研究[J].气象,45(5):695-704. Jiang Q, Wang F, Zhang H D, et al, 2019. Analysis of spatio-temporal distribution and connecting factors of air pollution in Beijing, Tianjin, Shijiazhuang and Zhengzhou in winter of 2016[J]. Meteor Mon, 45(5):695-704(in Chinese).

2016年冬季京津冀豫大气污染的时空分布 及影响因子研究^{*}

江琪¹ 王飞² 张恒德¹ 吕梦瑶¹ 何佳宝³

1 国家气象中心,北京 100081

2 中国气象科学研究院,北京 100081

3 浙江省宁波市环境监测中心,宁波 315012

提 要: 利用2016年12月至2017年2月北京、天津、石家庄和郑州的PM_{2.5}质量浓度、反应性气体质量浓度及其相对应的气象要素资料分析了大气污染的理化特征、传输和生消规律。结果表明:北京、石家庄、天津及郑州的PM_{2.5}质量浓度分布频率均有两个较为明显的峰值,四个地区PM_{2.5}质量浓度分布频率最高时均值分别为10.1、19.2、40.0和47.1 μg·m⁻³,大气的氧化程度为北京最低,其次为石家庄、天津、郑州最高。四个研究地区的交通源对环境大气污染均有重要贡献。PM_{2.5}和CO的相关性在低相对湿度时高于高相对湿度时;而PM_{2.5}和NO₂的相关性在相对湿度较大时高于相对湿度较小时。四个研究地区的PM_{2.5}质量浓度均随风速的增大呈快速降低后趋于平缓的趋势,其中北京、石家庄和郑州的风速阈值均为3 m·s⁻¹,天津地区为4 m·s⁻¹。受上游污染地区的影响,偏南风的输送作用滞后20~30 h达到最大,而偏北风的影响作用在滞后8~12 h达到最大。

关键词: PM_{2.5}, 气象要素, 风速, 反应性气体

中图分类号: P427

文献标志码: A

DOI: 10.7519/j.issn.1000-0526.2019.05.011

Analysis of Spatio-Temporal Distribution and Connecting Factors of Air Pollution in Beijing, Tianjin, Shijiazhuang and Zhengzhou in Winter of 2016

JIANG Qi¹ WANG Fei² ZHANG Hengde¹ LÜ Mengyao¹ HE Jiabao³

1 National Meteorological Centre, Beijing 100081

2 Chinese Academy of Meteorological Sciences, Beijing 100081

3 Environment Monitoring Centre of Ningbo of Zhejiang Province, Ningbo 315012

Abstract: Based on the observations of PM_{2.5} mass concentration, reactive gases and related meteorological elements in Beijing, Tianjin, Shijiazhuang and Zhengzhou from December 2016 to February 2017, the physical and chemical characteristics of the air pollution, transmission and elimination rules are discussed. The results show that the frequency distributions of PM_{2.5} mass concentration in Beijing, Shijiazhuang, Tianjin and Zhengzhou all had two obvious peaks. The mean values of PM_{2.5} concentrations were 10.1, 19.2, 40.0 and 47.1 μg·m⁻³ in the four regions respectively at the time with the highest PM_{2.5} frequency distribution. The degree of air oxidation in Beijing was the lowest followed by Shijiazhuang, Tianjin

^{*} 国家重点研发计划项目(2016YFC0203301)、国家基金委重点研究项目(91644223)和中国气象局预报员专项(CMAYBY2018-092)共同资助

2018年2月21日收稿; 2019年3月14日收修定稿

第一作者:江琪,主要从事大气物理与大气环境研究. Email:Jiangqi89@163.com

and Zhengzhou in order. Traffic sources had important contribution to the environmental air pollution in the four study areas. The correlation between CO and PM_{2.5} at low relative humidity was higher than that with high humidity. However, the correlation between NO₂ and PM_{2.5} at low relative humidity was lower than that with high humidity. With the wind speed increasing, the PM_{2.5} mass concentration decreased rapidly and then tended to be gentle, of which the wind speed threshold was 3 m · s⁻¹ in Beijing, Shijiazhuang and Zhengzhou, and for Tianjin it was 4 m · s⁻¹. Affected by upstream pollution transport, southerly wind transport effect was about 20–30 h later than reaching the maximum and the effect of the northerly wind delayed 8–12 h before reaching the maximum.

Key words: PM_{2.5}, meteorological elements, wind speed, reactive gas

引言

近年来,全国多地霾污染频发,大气污染问题受到广泛关注。区域尺度、高浓度或污染型的大气气溶胶是引起城市大气能见度降低,产生霾天气的重要原因。大气气溶胶通过直接或间接地改变“地-气”系统的辐射收支平衡来影响环境和气候(Rosenfeld, 2000)。北京、天津、石家庄及郑州是我国中东部高污染环境代表区域,该区域是大气气溶胶和气溶胶前体物的重要来源地之一(Streets et al, 2003; Richter et al, 2005; Xu et al, 2015; 缪育聪和刘树华, 2017), Streets et al (2003) 公布的排放源清单中,上述地区为硫化物、氮氧化物、非甲烷烃类和黑碳气溶胶分布高值区。特别是在秋、冬季,煤烟型污染和光化学污染共存且相互耦合,大气表现出氧化性增强、颗粒物浓度升高,特别是细粒子(PM_{2.5})污染加重等复合型污染的特点(朱先磊等, 2005; Sun et al, 2013a)。细粒子中,硫酸盐、硝酸盐、元素碳、有机物和铵盐是最重要的化学组分,约占 PM_{2.5} 组成的 55% 以上(贺克斌等, 2011; Sun et al, 2012)。了解该区域大气气溶胶的形成、演化过程及其成因,并制定区域污染的联防联控措施是解决其大气污染问题的关键。研究表明,PM_{2.5} 质量浓度受气象和人为因素的共同影响。电力、交通、燃煤、化工、烹饪等一次源排放以及气态前体物的二次转化等均为城市大气颗粒物的主要来源。其中,交通源是城市大气中细粒子和超细粒子最主要的直接排放源(Wehner et al, 2002; Laakso et al, 2003)。大气气溶胶的时空分与输送密切相关,吴兑等(2014)和陈欢欢等(2010)研究表明,区域气流停滞是形成霾天气的主要气象条件,而垂直输送能力的减弱是加重霾天气的主要气象因素。区域间的输送对霾的生消意义重

大,王自发等(2014)研究表明,静稳天气时京津冀区域间仍存在显著的颗粒物输送作用。徐祥德等(2004)也指出北京城市重污染过程加剧的重要因素之一是南部周边城市污染外源的输入。在污染源排放相对稳定的条件下,气象条件对空气质量状况起主导作用(张裕芬等, 2006; 郑祚芳等, 2018; 何心河等, 2016)。气象因子可通过多种方式影响污染物的传播、积聚、稀释扩散和清除。特定的大气风、温、湿条件下,污染物可通过城市烟羽的形式向下风向传播,且输送范围可达数百千米(Oke, 1982)。刘端阳等(2009)发现中度及以上霾的形成和发展伴随空气相对湿度的增大;江琪等(2017a)研究表明,风速大于 3 m · s⁻¹ 后,北京 PM_{2.5} 及除 O₃ 外的气态前体物的质量浓度均已降低至较低水平,霾在 4 m · s⁻¹ 以上风速出现的概率仅有 6% (王明洁等, 2015)。

为了解北京及周边区域污染间的相互作用规律及大气污染的特性,本研究对 2017 年冬季高污染背景——京津冀及郑州地区的 PM_{2.5}、反应性气体及其与气象要素的相关资料进行分析,探究该区域大气污染的理化特征、传输和生消规律,以期对正确理解城市区域霾的成因和传播过程提供依据,为环境大气污染防治措施的制定提供理论支持。

1 资料来源

根据中国环境监测总站网站(<http://www.cnemc.cn/>)提供的监测点信息,选取了 2016 年 12 月至 2017 年 2 月北京(8 个)、石家庄(8 个)、天津(15 个)、郑州(8 个)四个城市的国控环境监测点,对四个地区提供的 PM₁₀、PM_{2.5}、SO₂、O₃、CO、NO₂ 的质量浓度数据进行平均,时间分辨率为 1 h。文中四个地区的气象要素数据来自中国气象局加密观测站点的平均值(包括温度、湿度、风速、风向、能见度

等,时间分辨率为1 h),选点个数与空气质量国控站点一致,通过最小半径法逐一确定与空气质量国控站点最近的气象局加密观测站点位置。

2 结果分析

2.1 大气污染概况

2016年12月至2017年2月,北京、天津、石家庄及郑州四个地区的风速、湿度和温度均值分别为 $1.5 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 、51%和 1.6°C 。该时段中,影响华北地区的冷空气次数为11次,其中强冷空气为7次,次数与2013—2015年同期时段(分别为13、14和9次)差异不大,但强度整体偏强。华北、黄淮等地冬季易出现污染物累积和清除的过程(Tao et al, 2012)。2016年12月至2017年2月,北京、石家庄、天津及郑州四个地区的大气污染形势均不容乐观,其中以石家庄污染最为严重, $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度均值达到 $212.01 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$,其次为郑州,为 $144.83 \mu\text{g}$

$\cdot \text{m}^{-3}$,北京和天津的污染水平相当,分别为 113.08 和 $110.47 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 。根据《环境空气质量标准》(GB 3095—2012;环境保护部,2016),北京、石家庄、天津及郑州四个城市中,达到国家细颗粒物空气二级标准($\text{PM}_{2.5}$ 日平均质量浓度低于 $75 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$)的比例分别为50%、43%、22%和42%。由图1可见,北京地区空气质量为优($\text{PM}_{2.5}$ 日平均质量浓度低于 $35 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$)的比例达到27%,为四个地区中最高。石家庄和郑州达优的比例最低,仅为3%。在整个研究时段,石家庄优良的总天数仅为15 d,污染时段高达80%以上,中度以上污染($\text{PM}_{2.5}$ 日平均质量浓度高于 $115 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$)占到整个研究时段的75%,严重污染($\text{PM}_{2.5}$ 日平均质量浓度高于 $250 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$)的时段亦高达28%。郑州以中和重度污染为主(47%),中度以上污染的天数达到55%,且轻度污染天数(20 d)为四个地区中最多。本次研究时段 $\text{PM}_{2.5}$ 的最高值出现在2016年12月20日(图2),郑州市 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度峰值达到 $766.2 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 。四个地区的污染曲线均表现出显著的“锯齿

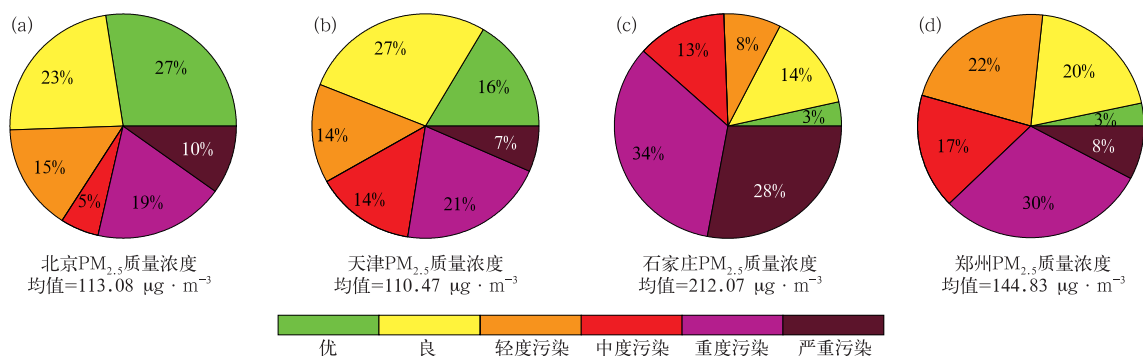


图1 2016年12月至2017年2月北京(a)、天津(b)、石家庄(c)及郑州(d)空气质量频数

Fig.1 Air quality frequency charts of Beijing (a), Tianjin (b), Shijiazhuang (c) and Zhengzhou (d) from December 2016 to February 2017

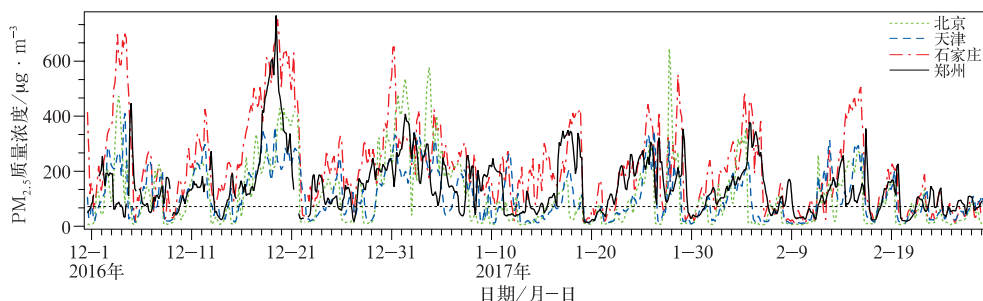


图2 2016年12月至2017年2月北京、天津、石家庄及郑州 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度时间序列

Fig.2 The time series of $\text{PM}_{2.5}$ mass concentration in Beijing, Tianjin, Shijiazhuang and Zhengzhou from December 2016 to February 2017

状”结构,污染天和清洁天交替出现,且均表现为慢积累,快清除的特点,污染过程通常持续较长的时间,如 2016 年 12 月 13—19 日,郑州市 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度由 $52.0 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 累积至峰值浓度 $766.2 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$,用时超过一周,而清洁天的持续时间通常较为短暂,一般低于 3 d,且清洁过程通常伴随着气象条件的改变,如风向的改变和风速的加大等,污染物浓度可在几个小时内降低至较低值,如上述过程,随着偏北风的加大,10 h 内郑州市 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度下降至低于 $75 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$,但这样的清洁时段维持时间仅为 1 d。

2.2 日变化规律

图 3 给出了四个地区研究时段 $\text{PM}_{2.5}$ 、 CO 、 NO_2 、 O_3 、 SO_2 及 O_x 大气氧化剂 [O_x ($\text{NO}_2 + \text{O}_3$)] 浓度的日变化趋势。 O_x 的浓度能够反映区域或局地大气的氧化性特征,可作为评价大气氧化能力的指标 (Stephens et al, 2008; 王占山和潘丽波, 2014)。四个地区中,一天中大气氧化性最高值均出现在 16 时左右,最低值出现在日出前后。其中,大气氧化性最强的地区为天津,其次为石家庄,郑州地区最弱。 CO 的日变化主要与光化学作用强弱的差异、对流扩散输送及周边地区居民活动有关,冬季, CO 的光化学作用较弱,主要受居民活动影响,四个研究地区均在早上交通高峰时段 (08 时附近) 出现质量浓度的极大值,此后,边界层抬升及 O_3 质量浓度升高使得 CO 质量浓度最小值出现在 16 时附近,其中,石家庄的 CO 平均质量浓度最高,早高峰对应

的峰值为 $3.8 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-3}$,其次为天津、北京,郑州地区最低。与 CO 变化趋势相反,四个地区冬季 O_3 的质量浓度均较低,低于全年均值的 1/2 (刘洁等, 2008; 江琪等, 2017b; 张良等, 2017),且日变化曲线均呈现单峰型分布,峰值出现在 14—16 时,而谷值均出现在 07—09 时。研究时段中,四个地区均为采暖季, SO_2 浓度均值在 12 时左右出现极大值,呈现白天高夜间低的日变化趋势,其中,北京地区 SO_2 质量浓度均值低于其他三地,且日变化幅度最小,石家庄地区的 SO_2 质量浓度均值最高,平均值达 $70.6 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 。受交通源影响显著, NO_2 质量浓度均在早高峰 (08 时左右) 和晚高峰 (20 时左右) 出现峰值,且晚高峰时段的峰值高于早高峰时段,在 16 时左右均达到一日中的最低质量浓度。 $\text{PM}_{2.5}$ 的质量浓度日变化趋势整体表现为夜间高,白天低,但四个地区间有显著差异,反映出本地排放源对 $\text{PM}_{2.5}$ 贡献的差异。

各类污染物中,除 O_3 外,石家庄地区的平均浓度均为最高值。北京、天津和郑州地区 $\text{PM}_{2.5}$ 和 CO 质量浓度平均为石家庄地区的 52%~72%, SO_2 平均值仅为石家庄地区的 27%~51%,值得注意的是,四个地区之间 NO_2 质量浓度的差异较小,其中天津达到石家庄 NO_2 平均质量浓度的 96%。根据北京市和河北省 2013 年环境状况公报,单位面积中,石家庄市 SO_2 的排放强度为北京市排放量的一倍以上,而对于氮氧化物,北京和石家庄地区分别为 3.2×10^{-4} 和 $2.95 \times 10^{-4} \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$,无显著差异。

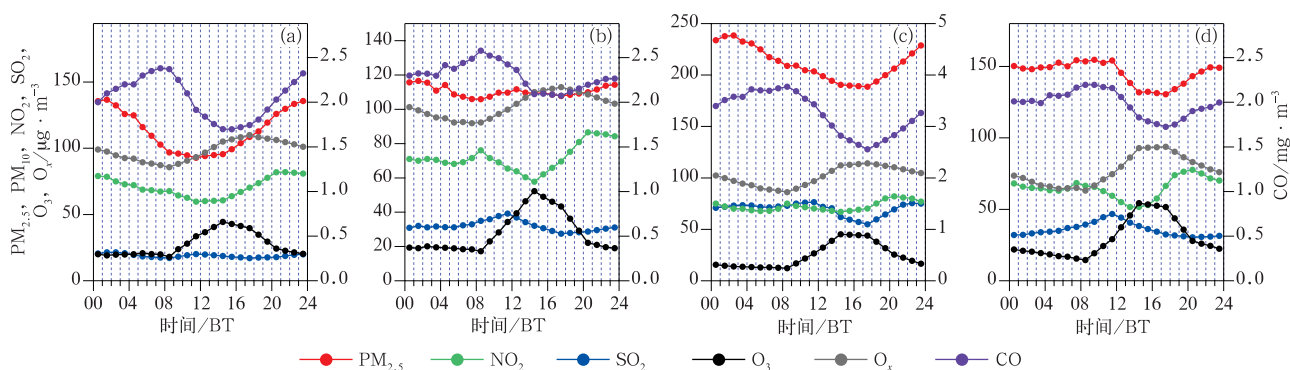


图 3 2016 年 12 月至 2017 年 2 月北京 (a)、天津 (b)、石家庄 (c) 及郑州 (d) 各反应性气体和 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度的日变化

Fig. 3 Diurnal variation of $\text{PM}_{2.5}$ mass concentration and reactive gas in Beijing (a), Tianjin (b), Shijiazhuang (c) and Zhengzhou (d) from December 2016 to February 2017

2.3 PM_{2.5} 频率分布

图 4 为四个地区的 PM_{2.5} 逐小时质量浓度分布频率。四个地区 PM_{2.5} 的变化区间均较大,其中,石

家庄地区 PM_{2.5} 可由最低十几 $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 增长至超过 $600 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 。PM_{2.5} 质量浓度频率分布均有两个较为明显的峰值:峰值 1(F1)和峰值 2(F2)对应的各类污染物浓度和相关气象要素统计值见表 1。

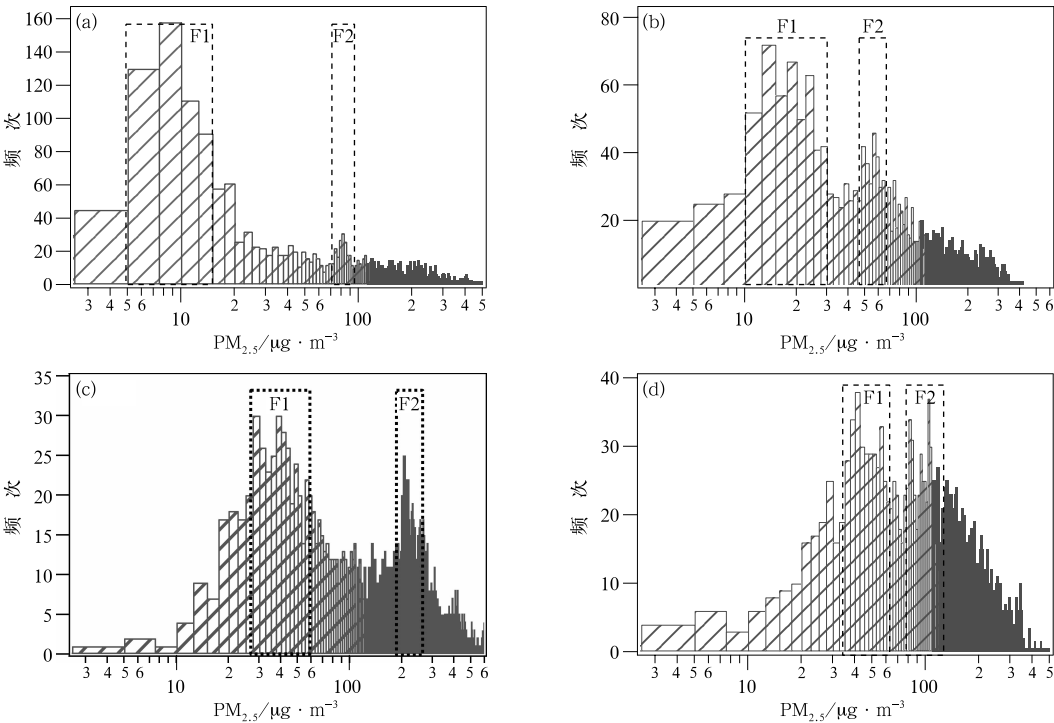


图 4 2016 年 12 月至 2017 年 2 月北京(a)、天津(b)、石家庄(c)及郑州(d)的 PM_{2.5} 质量浓度频率分布

Fig. 4 Frequency distribution of PM_{2.5} mass concentration in Beijing (a), Tianjin (b), Shijiazhuang (c) and Zhengzhou (d) from December 2016 to February 2017

表 1 北京、天津、石家庄及郑州整个研究时段、峰值 1(F1)和峰值 2(F2)对应的各类污染物浓度和气象条件统计值

Table 1 Summary of mass concentrations of PM_{2.5}, reactive gas and meteorological elements for F1, F2 and the whole study period in Beijing, Tianjin, Shijiazhuang and Zhengzhou

项目	PM ₁₀ / $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$	PM _{2.5} / $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$	气象要素						气体				
			WS/ $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$	RH/ %	T/ ℃	Vis/ km	风频/%		CO/ $\text{mg} \cdot \text{m}^{-3}$	NO ₂ / $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$	SO ₂ / $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$	O ₃ / $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$	O _x / $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$
							北	南					
北京	142.4	113.1	1.6	45.9	0.3	12.2	62	38	2.1	70.6	18.9	27.5	98.1
北京 F1	26.0	10.1	2.6	52.0	0.6	30.5	85	15	0.5	25.8	5.6	55.2	81.0
北京 F2	113.3	82.5	1.3	54.2	-0.1	5.5	44	56	1.7	71.1	22.8	17.4	88.5
天津	142.8	110.5	2.0	56.1	0.1	15.5	51	49	2.3	73.8	32.0	28.3	102.1
天津 F1	41.0	19.2	3.3	28.8	-0.2	33.1	76	24	0.9	33.8	12.0	55.7	89.5
天津 F2	85.2	59.3	1.7	50.9	-0.3	18.4	47	53	1.7	69.2	34.1	25.3	94.5
石家庄	294.1	212.0	1.1	45.9	1.3	6.0	50	50	3.2	76.8	70.6	24.5	101.3
石家庄 F1	74.9	40.0	1.6	22.6	3.4	16.7	51	49	1.0	33.0	35.8	52.9	85.9
石家庄 F2	307.3	222.2	0.8	53.0	0.01	2.6	30	70	3.6	82.0	85.6	15.0	97.0
郑州	202.	144.8	1.3	56.1	4.6	6.5	52	48	2.0	64.8	36.0	29.6	94.4
郑州 F1	96.5	47.1	1.7	44.7	5.3	13.8	56	44	1.2	53.2	35.8	39.4	92.6
郑州 F2	153.5	99.0	1.6	59.7	4.4	5.6	36	64	1.7	60.6	34.1	28.0	88.6

PM_{2.5} 质量浓度的变化取决于本地生成、消散和区域输送三者间的动力平衡(Herich et al, 2011)。四个地区中,北京地区 F1 对应的 PM_{2.5} 质量浓度为四个地区中最低,且累计出现频次最高,其次为天津,石家庄和郑州差异不大,PM_{2.5} 的平均质量浓度分别为 10.1、19.2、40.0 和 47.1 $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 。F1 段中 PM_{2.5} 在 PM₁₀ 中所占比例亦为北京最低,平均为 38.8%,其次为天津 46.8%,石家庄最高,为 53.4%。除 O₃ 外,F1 时段对应的其他污染物质量浓度北京均为最低,郑州最高,其中北京 F1 段 SO₂ 质量浓度仅为郑州地区的 15.6%。F1 段大气的氧化程度北京最低,其次为石家庄、天津,郑州最高。通过对 F1 段气象条件进行统计,四个区域 F1 段的平均风速均分别高于四个区域的总平均,且均为偏北风概率较大,其中天津地区的风速均值最高,为 3.3 $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ 。较整个研究时段,F1 时段较大的风速和更多的偏北风有利于清洁天的出现,但值得注意的是,北京地区 F1 段对应四个地区中最低的 PM_{2.5} 质量浓度,而相对湿度却为四个地区中 F1 段最高,且高于北京本地总均值,推测其主要原因可能为北京市 F1 段中,大气较为洁净,颗粒物吸湿增长作用不显著,同时,由于气体浓度较低,液相化学反应亦相对较弱,相对湿度对颗粒物浓度增长的作用在清洁时段显著弱于污染时段。

四个研究地区中,主要峰值 F1 段右侧均伴随一个附峰 F2。F2 段中,PM_{2.5} 质量浓度均值由低到高依次为天津(59.3 $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$)、北京(82.5 $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$)、郑州(99.0 $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$)和石家庄(222.2 $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$),PM_{2.5} 占 PM₁₀ 的比例较 F1 段均显著升高,其中北京地区 PM₁₀ 中 PM_{2.5} 的比例升至 72.8%。F2 污染峰值主要是由于传输或不同气象条件等因素造成,其中,石家庄地区前后两个峰值的平均质量浓度差值最大,超过 150 $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$,同时,F2 段,石家庄的平均能见度下降至 2.6 km。相较于 F1 段,四个地区 F2 段出现时均伴随相对湿度升高、温度下降、风速降低且偏南风频率增多,上述条件均为有利于建立污染物形成和发展静稳大气条件。

与其他三地不同,相较于 F1,在郑州地区 F2 段中,SO₂ 平均质量浓度不增反降,大气的氧化性呈降低趋势,CO、NO₂ 质量浓度的增加量亦显著低于其他三地。其可能原因为 F2 段,偏南风频率增大后,

有利于水汽的输送,空气中累积的污染物通过吸湿增长或液相化学反应等过程有利于大气中污染物浓度的升高,但相较于偏北风时华北重污染区域输送的污染物,偏南风频率增大后的 F2 段大气污染以本地源为主,污染物的输送作用大大减弱,两者的综合作用使得郑州地区的污染物浓度不增反降或增加量显著降低。此外,SO₂ 在相对湿度较高、温度较低的状态下极易通过液相化学反应转化为硫酸盐(Sun et al, 2013b),使得硫酸盐在 PM_{2.5} 中的比重显著增加(Sun et al, 2006),大气中 PM_{2.5} 质量浓度升高而 SO₂ 质量浓度随之降低。相较于 F1 段,F2 段郑州市平均相对湿度升高、温度降低,使得 SO₂ 平均质量浓度较低。

2.4 PM_{2.5} 和 CO 及 NO₂ 的相关关系

CO 是导致气候变化的一种间接温室气体,是主要的也是排放量最大的大气污染物之一,并间接影响着 CO₂、CH₄ 和 O₃ 等在大气中浓度的分布和变化(Keppler et al, 2006, Miller et al, 2007)。由于 CO 在大气中较为稳定,其浓度变化主要反映了排放源和动力输送趋于平衡时的浓度;NO 及 NO₂ 是大气中主要的含氮污染物,其人为源主要为化石燃料燃烧。城市大气中的 NO_x(NO、NO₂)一般 2/3 来自汽车等流动源的排放,1/3 来自固定源的排放。图 5 为四个地区 PM_{2.5} 与 NO₂ 和 CO 在相对湿度高于 60%和低于 60%两种条件下的相关关系。在两种相对湿度条件下,四个地区 PM_{2.5} 和 CO 都呈现出较好的相关性,相关系数(r^2)均高于 0.5,其中,北京地区的相关性最高,相对湿度高于和低于 60%条件下的 r^2 分别达到 0.86 和 0.89。PM_{2.5} 和 NO₂ 的相关关系中,北京的相关性仍为四个地区中最高。除郑州在相对湿度较低时 NO₂ 和 PM_{2.5} 的相关性较差($r^2=0.15$),四个研究区域,特别是北京地区,PM_{2.5} 与 CO 和 NO₂ 的高相关性反映出交通源对环境大气污染贡献的重要性。

在低相对湿度时,PM_{2.5} 和 CO 的相关性均不同程度的高于高相对湿度条件时,其中以郑州地区最为显著,相对湿度低于 60%时较高于 60%时的 r^2 由 0.54 升高至 0.80。PM_{2.5} 和 NO₂ 的相关性则呈相反的趋势,相对湿度较大时的相关性高于相对湿度较小时,相对湿度高于 60%时,北京地区 PM_{2.5} 和 NO₂ 达到 $r^2=0.81$ 的正优度相关。

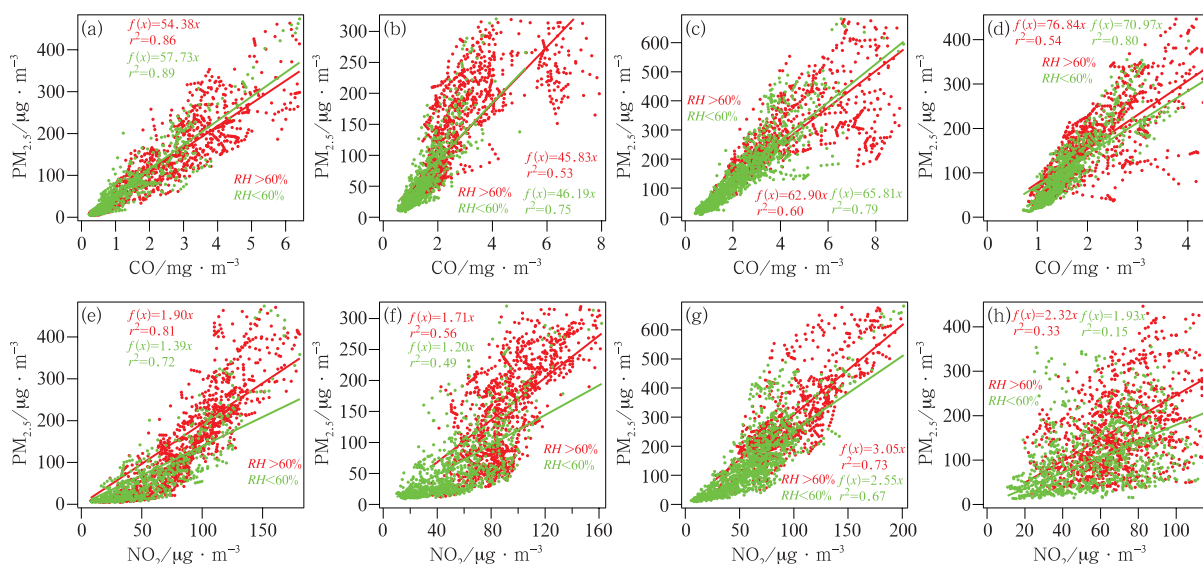


图5 2016年12月至2017年2月在相对湿度 $\geq 60\%$ 和 $< 60\%$ 时,北京(a,e)、天津(b,f)、石家庄(c,g)

及郑州(d,h) $PM_{2.5}$ 与CO(a,b,c,d)和 $PM_{2.5}$ 与 NO_2 (e,f,g,h)的相关关系

Fig. 5 The correlation of $PM_{2.5}$ with CO (a, b, c, d) and NO_2 (e, f, g, h) during relative humidity $\geq 60\%$ and $< 60\%$ in Beijing (a, e), Tianjin (b, f), Shijiazhuang (c, g) and Zhengzhou (d, h) from December 2016 to February 2017

2.5 气象要素对 $PM_{2.5}$ 的影响

气象因素通过累积、稀释、二次生成和气粒转化等多种方式影响和改变大气气溶胶的形成和发展(江琪等,2017a;2017b)。通常,在相对湿度较大和风速较低等不利于污染物扩散、稀释的静稳天气条件下,污染物浓度不断累积;当有明显降水或冷空气影响作用时,将有利于污染物的扩散和稀释作用,污染物浓度迅速降低(Sun et al,2013b)。表2对比了四个地区清洁时段($PM_{2.5} < 75 \mu g \cdot m^{-3}$)和污染时段($PM_{2.5} \geq 75 \mu g \cdot m^{-3}$)风速、相对湿度和温度的均值。四个地区污染时段相对湿度显著高于清洁时段,其中相对湿度增大对北京区域颗粒物浓度升高的影响作用最为显著,污染时段(67.6%)的相对湿度均值为清洁时段(37.4%)的1.8倍。风速的增大有利于污染物的稀释和扩散。本文研究的四个地区中,天津地区风速均值最高,清洁时段风速均值达到 $2.5 m \cdot s^{-1}$ 。北京、天津及石家庄三地,清洁时段的风速值均为污染时段的1.4倍,郑州地区略高,为1.6倍。与此同时,温度的降低均有利于污染过程的发生发展,污染时段较清洁时段平均温度升高 $0.2 \sim 0.9^\circ C$ 。

各类气象要素中,风通过影响污染物的水平输送扩散能力对污染物的质量浓度有重要影响。由于四个区域重污染出现概率最高的路径均为偏南路径

(花丛等,2017;2016),而污染的减弱和消散多伴随偏北路径冷空气的影响,因而将风向分为偏南风 and 偏北风两种条件下探讨风速对 $PM_{2.5}$ 质量浓度的影响作用。如图6可见,全风向、偏南风 and 偏北风时,风速的增大均伴随 $PM_{2.5}$ 质量浓度的降低,其中偏北风和全风向时, $PM_{2.5}$ 质量浓度均随风速的增大先快速降低后趋于平缓,其中北京、石家庄和郑州对应这一风速的阈值均为 $3 m \cdot s^{-1}$,天津地区为 $4 m \cdot s^{-1}$,当风速小于这一阈值时,全风向时四个地区中随风速增大 $PM_{2.5}$ 的下降率最大的为石家庄,约为 $37.7 \mu g \cdot m^{-3}/(m \cdot s^{-1})$,其次为北京,下降率约为 $35.2 \mu g \cdot m^{-3}/(m \cdot s^{-1})$,郑州最低,约为 $16.7 \mu g \cdot m^{-3}/(m \cdot s^{-1})$ 。当风速高于这一阈值后, $PM_{2.5}$ 质量浓度变化随风速增大逐渐趋于平缓,其中北京地区 $PM_{2.5}$ 浓度均值跌落至 $35 \mu g \cdot m^{-3}$ 后随风速增大变化不大,而郑州地区 $PM_{2.5}$ 质量浓度在风速达到阈值后仍高于 $75 \mu g \cdot m^{-3}$ 。除郑州外,偏南风的清除作用显著地弱于偏北风,而对于郑州,不同风向的清除作用无明显区别。

四个地区间污染物的生消具有密切的关联性。当某一站点为偏南风时,如果上游区域出现污染,偏南风的输送作用对本地污染物的累积有重要的贡献,同理,当上游为清洁条件时,偏北风亦有利于本地大气污染的改善。本地和上游区域的 $PM_{2.5}$ 质量浓度的相关性可以反映两者的同源性,相关性越高,

则表示两地同源性的比例越大,由于风对污染物的输送有一定的滞后性,通过两地间实时及下游地区滞后时效的 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度间的相关性关系可以判断污染同源性和传输作用。当上游地区出现污染时

($\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度高于 $75 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$),在持续偏南风作用下,如图 7a 可见,天津和郑州地区实时及天津时效滞后的 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度间无明显相关关系 ($r^2 < 0.1$),因而郑州的污染对天津地区的影响可以

表 2 2016 年 12 月至 2017 年 2 月北京、石家庄、天津及郑州清洁时段 ($\text{PM}_{2.5} < 75 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$) 和污染时段 ($\text{PM}_{2.5} \geq 75 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$) 风速、相对湿度和温度均值

Table 2 The means of wind speed, relative humidity and temperature during cleaning period ($\text{PM}_{2.5} < 75 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$) and pollution period ($\text{PM}_{2.5} \geq 75 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$) in Beijing, Tianjin, Shijiazhuang and Zhengzhou from December 2016 to February 2017

	北京		天津		石家庄		郑州	
	污染	清洁	污染	清洁	污染	清洁	污染	清洁
湿度/%	67.6	37.4	61.2	42.3	50.5	32.7	61.2	42.3
风速/ $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$	1.4	1.9	1.8	2.5	1	1.4	1.1	1.8
温度/ $^{\circ}\text{C}$	0	0.8	0	0.2	1	1.9	4.4	5.2

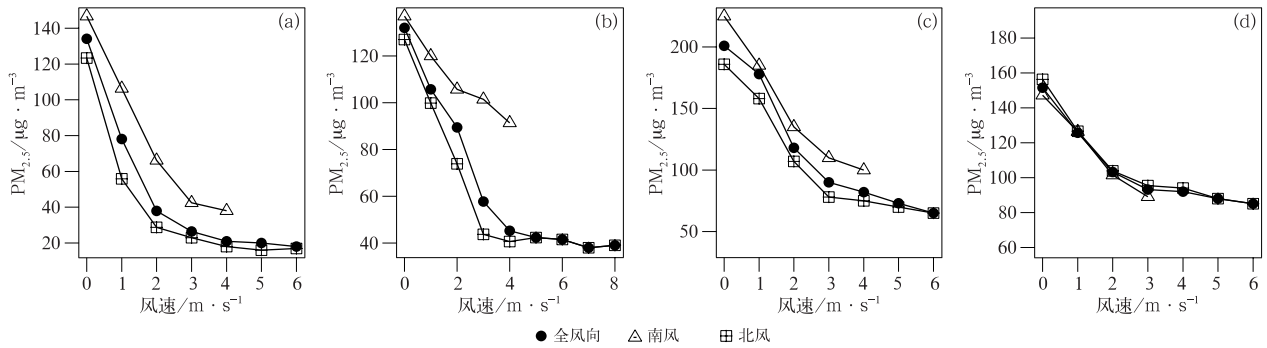


图 6 2016 年 12 月至 2017 年 2 月北京(a)、天津(b)、石家庄(c)和郑州(d)在不同风向时 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度随风速的变化

Fig. 6 Variation of $\text{PM}_{2.5}$ mass concentration as a function of wind speed increasing with different wind directions in Beijing (a), Tianjin (b), Shijiazhuang (c) and Zhengzhou (d) from December 2016 to February 2017

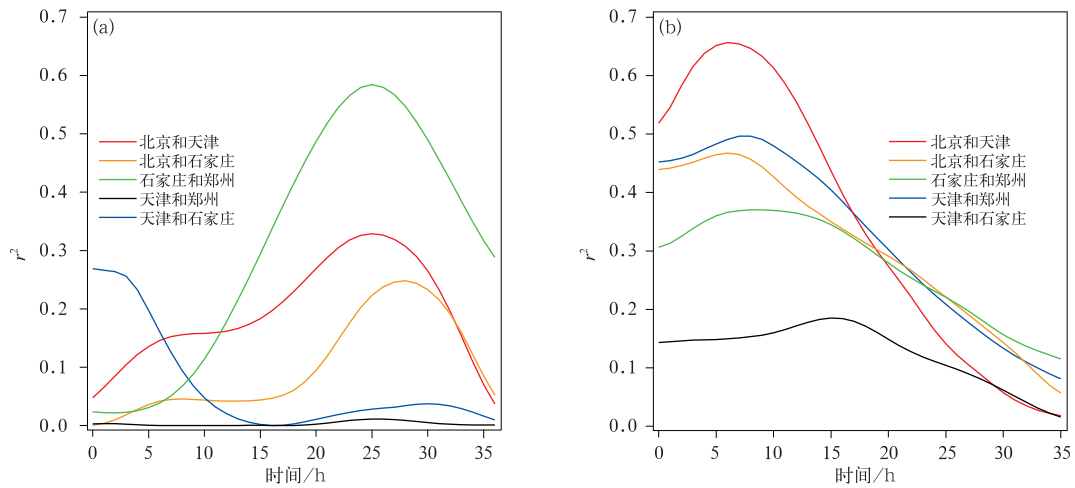


图 7 两个地区间 $\text{PM}_{2.5}$ 滞后相关系数
(a)污染累积,(b)污染清除

Fig. 7 Time lag correlation indexes of $\text{PM}_{2.5}$ between two regions
(a) pollution accumulation, (b) pollution removal

忽略。天津与石家庄实时 $PM_{2.5}$ 质量浓度的相关性最高,天津时效滞后,相关系数逐渐降低至较低值(<0.1),因而两者间污染物有一定的同源性,但石家庄的传输作用对天津的影响作用较小。石家庄与郑州 $PM_{2.5}$ 的相关性在石家庄时效滞后 24 h 时达到最大,且相关系数达到 0.59,因而石家庄受郑州污染传输作用影响显著,约滞后 24 h。石家庄和天津的传输作用对北京均有一定影响,分别在北京地区时效滞后 28 和 23 h 后相关性达到最高,相关系数分别为 0.25 和 0.34。在偏北风的作用下,上游为清洁条件条件($PM_{2.5}$ 质量浓度小于 $75 \mu g \cdot m^{-3}$) (图 7b),除天津和郑州的相关性较小($r^2 < 0.2$),下游地区在滞后 8~12 h,和上游的相关性达到最大,其中北京和天津滞后 8 h 可以达到 $r^2 = 0.67$ 的正优度相关。因而,受上游污染地区的影响,偏南风的输送作用约滞后 20~30 h 达到最大,而偏北风的影响时效在滞后 8~12 h 达到最大。

3 结 论

(1) 2016 年 12 月至 2017 年 2 月,北京、石家庄、天津及郑州四个地区的大气污染形势均不容乐观,其中以石家庄污染最为严重, $PM_{2.5}$ 均值达到 $212.01 \mu g \cdot m^{-3}$ 。四个研究地区中,污染和清除过程通常相伴随,污染曲线呈“锯齿状”结构,污染天和清洁天交替出现,清洁天的持续时间通常较为短暂,一般低于 3 d。

(2) 北京、石家庄、天津及郑州 $PM_{2.5}$ 的分布频率均有两个较为明显的峰值,其中 $PM_{2.5}$ 分布频率最高时四个地区 $PM_{2.5}$ 浓度均值分别为 10.1、19.2、40.0 和 $47.1 \mu g \cdot m^{-3}$,大气的氧化程度北京最低,其次为石家庄、天津、郑州最高。

(3) 北京、石家庄、天津及郑州四地中交通源对环境大气污染有重要贡献。低相对湿度时 $PM_{2.5}$ 和 CO 的相关性均不同程度地高于高相对湿度条件时。而 $PM_{2.5}$ 和 NO_2 的相关性则呈相反的趋势,相对湿度较大时的相关性高于相对湿度较小时。

(4) 除郑州外,偏南风的清除作用显著的弱于偏北风;四个研究地区中, $PM_{2.5}$ 质量浓度均随风速的增大先快速降低后趋于平缓,其中北京、石家庄和郑州对应这一风速阈值均为 $3 m \cdot s^{-1}$,天津地区为 $4 m \cdot s^{-1}$ 。受上游污染地区的影响,偏南风的输送作用约滞后 20~30 h 达到最大,而偏北风的影响时效在滞后 8~12 h 达到最大。

参考文献

- 陈欢欢,吴兑,谭浩波,等,2010. 珠江三角洲 2001—2008 年灰霾天气过程特征分析[J]. 热带气象学报,26(2):147-155. Chen H H, Wu D, Tan H B, et al, 2010. Study on the character of haze weather process from the year 2001 to 2008 over the Pearl River Delta[J]. J Trop Meteor, 26(2):147-155(in Chinese).
- 贺克斌,杨沫沫,段凤魁,等,2011. 大气颗粒物与区域复合污染[M]. 北京:科学出版社. He K B, Yang F M, Duan F K, et al, 2011. Atmospheric Particulate Matter and Regional Compound Pollution[M]. Beijing: Science Press(in Chinese).
- 何心河,马建中,徐敬,等,2016. 2014 年 10 月京津冀地区一次 $PM_{2.5}$ 污染过程的数值模拟[J]. 气象,42(7):827-837. He X H, Ma J Z, Xu J, et al, 2016. Simulation of a heavy $PM_{2.5}$ pollutant event over Beijing-Tianjin-Hebei Region in October 2014[J]. Meteor Mon, 42(7):827-837(in Chinese).
- 花丛,刘超,张恒德,等,2017. 京津冀地区冬半年污染传输特征及传输指数的改进[J]. 气象,43(7):813-822. Hua C, Liu C, Zhang H D, et al, 2017. Characteristics of air pollution transport over Beijing-Tianjin-Hebei Region during winter months and improvement of transport weather index[J]. Meteor Mon, 43(7):813-822(in Chinese).
- 花丛,张恒德,张碧辉,2016. 2013—2014 冬半年北京重污染天气气象传输条件分析及预报指数初建[J]. 气象,42(3):314-321. Hua C, Zhang H D, Zhang B H, 2016. Analysis on advective transport condition for heavy air pollution processes in Beijing during the 2013—2014 winter months and design of transmission weather index[J]. Meteor Mon, 42(3):314-321(in Chinese).
- 环境保护部,2016. 环境空气质量标准:GB 3095—2012[S]. 北京:中国环境科学出版社. Ministry of Ecology and Environment of the People's Republic of China, 2016. Ambient Air Quality Standards: GB 3095-2012[S]. Beijing: China Environmental Science Press(in Chinese).
- 江琪,王飞,张恒德,等,2017a. 北京市 $PM_{2.5}$ 和反应性气体浓度的变化特征及其与气象条件的关系[J]. 中国环境科学,37(3):829-837. Jiang Q, Wang F, Zhang H D, et al, 2017a. Analysis of temporal variation characteristics and meteorological conditions of reactive gas and $PM_{2.5}$ in Beijing[J]. China Environ Sci, 37(3):829-837(in Chinese).
- 江琪,王飞,张恒德,等,2017b. 2013—2015 年北京市 $PM_{2.5}$ 、反应性气体和气溶胶粒径的特性分析[J]. 中国环境科学,37(10):3647-3657. Jiang Q, Wang F, Zhang H D, et al, 2017b. The characteristics of $PM_{2.5}$, reactive gas and aerosol size distributions of Beijing from 2013 to 2015[J]. China Environ Sci, 37(10):3647-3657(in Chinese).
- 刘端阳,濮梅娟,杨军,等,2009. 2006 年 12 月南京连续 4 天浓雾的微物理结构及演变特征[J]. 气象学报,67(1):147-157. Liu D Y, Pu M J, Yang J, et al, 2009. Microphysical structure and evolution of four-day persistent fogs around Nanjing in December 2006[J]. Acta Meteor Sin, 67(1):147-157(in Chinese).
- 刘洁,张小玲,徐晓峰,等,2008. 北京地区 SO_2 、 NO_x 、 O_3 和 $PM_{2.5}$ 变化特征的城郊对比分析[J]. 环境科学,29(4):1059-1065. Liu J,

- Zhang X L, Xu X F, et al, 2008. Comparison analysis of variation characteristics of SO_2 , NO_x , O_3 and $\text{PM}_{2.5}$ between rural and urban areas, Beijing[J]. *Environ Sci*, 29(4): 1059-1065 (in Chinese).
- 缪育聪, 刘树华, 2017. 雄安新区大气污染的气象特征分析[J]. *科学通报*, 62(23): 2666-2670. Miao Y C, Liu S H, 2017. Meteorological characteristics associated with air pollution in Xiong'an, China[J]. *Chin Sci Bull*, 62(23): 2666-2670 (in Chinese).
- 王明洁, 张蕾, 张琳琳, 等, 2015. 基于精细观测资料的深圳不同季节霾及其污染特征分析[J]. *中国环境科学*, 35(12): 3562-3569. Wang M J, Zhang L, Zhang L L, et al, 2015. Seasonal characteristics and pollution of haze in Shenzhen based on meticulous observation data[J]. *China Environ Sci*, 35(12): 3562-3569 (in Chinese).
- 王占山, 潘丽波, 2014. 火电厂大气污染物排放标准实施效果的数值模拟研究[J]. *环境科学*, 35(3): 853-863. Wang Z S, Pan L B, 2014. Implementation results of emission standards of air pollutants for thermal power plants; a numerical simulation[J]. *Environ Sci*, 35(3): 853-863 (in Chinese).
- 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): 3-13. DOI: 10.1007/s11430-013-4793-0. Wang Z F, Li J, Wang Z, 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]. *Sci China: Earth Sci*, 44(1): 3-13. DOI: 10.1007/s11430-013-4793-0 (in Chinese).
- 吴兑, 廖碧婷, 吴蒙, 等, 2014. 环首都圈霾和雾的长期变化特征与典型个例的近地层输送条件[J]. *环境科学学报*, 34(1): 1-11. Wu D, Liao B T, Wu M, et al, 2014. The long-term trend of haze and fog days and the surface layer transport conditions under haze weather in North China[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 34(1): 1-11 (in Chinese).
- 徐祥德, 周丽, 周秀骥, 等, 2004. 城市环境大气重污染过程周边源影响域[J]. *中国科学: 地球科学*, 34(10): 958-966. Xu X D, Zhou L, Zhou X J, et al, 2004. Influencing domains of peripheral sources in heavy air pollution process of urban environment[J]. *Sci China: Earth Sci*, 34(10): 958-966 (in Chinese).
- 张良, 王晓利, 王占山, 等, 2017. 2014年石家庄市 O_3 污染特征[J]. *环境科学与技术*, 40(7): 1-8. Zhang L, Wang X L, Wang Z S, et al, 2017. Ozone Pollution characteristics of Shijiazhuang in 2014[J]. *Environ Sci Technol*, 40(7): 1-8 (in Chinese).
- 张裕芬, 朱坦, 冯银厂, 等, 2006. 气象因素对环境空气质量达标的影响分析[J]. *城市环境与城市生态*, 19(4): 33-36. Zhang Y F, Zhu T, Feng Y C, et al, 2006. Meteorological effects on ambient air quality to come up to national standard[J]. *Urban Environ Urban Ecol*, 19(4): 33-36 (in Chinese).
- 郑祚芳, 任国玉, 高华, 2018. 北京地区局地环流观测分析[J]. *气象*, 44(3): 425-433. Zheng Z F, Ren G Y, Gao H, 2018. Analysis of the Local Circulation in Beijing Area[J]. *Meteor Mon*, 44(3): 425-433 (in Chinese).
- 朱先磊, 张远航, 曾立民, 等, 2005. 北京市大气细颗粒物 $\text{PM}_{2.5}$ 的来源研究[J]. *环境科学研究*, 18(5): 1-5. Zhu X L, Zhang Y H, Zeng L M, et al, 2005. Source identification of ambient $\text{PM}_{2.5}$ in Beijing[J]. *Res Environ Sci*, 18(5): 1-5 (in Chinese).
- Herich H, Hueglin C, Buchmann B, 2011. A 2.5 year's source apportionment study of black carbon from wood burning and fossil fuel combustion at urban and rural sites in Switzerland[J]. *Atmos Meas Tech*, 4(7): 1409-1420.
- Keppler F, Hamilton J T G, Braß M, et al, 2006. Methane emissions from terrestrial plants under aerobic conditions[J]. *Nature*, 439(7073): 187-191.
- Laakso L, Hussein T, Aarnio P, et al, 2003. Diurnal and annual characteristics of particle mass and number concentrations in urban, rural and Arctic environments in Finland[J]. *Atmos Environ*, 37(19): 2629-2641.
- Miller J B, Gatti L V, D'Amelio M T S, et al, 2007. Airborne measurements indicate large methane emissions from the eastern Amazon Basin[J]. *Geophys Res Lett*, 34(10): L10809.
- Oke T R, 1982. The energetic basis of the urban heat island[J]. *Quart J Roy Meteor Soc*, 108(455): 1-24.
- Richter A, Burrows J P, Nüß, et al, 2005. Increase in tropospheric nitrogen dioxide over China observed from space[J]. *Nature*, 437(7055): 129-132.
- Rosenfeld D, 2000. Suppression of rain and snow by urban and industrial air pollution[J]. *Science*, 287(5459): 1793-1796.
- Stephens S, Madronich S, Wu F, et al, 2008. Weekly patterns of México City's surface concentrations of CO , NO_x , PM_{10} and O_3 during 1986-2007[J]. *Atmos Chem Phys*, 8(17): 5313-5325.
- Streets D G, Bond T C, Carmichael G R, et al, 2003. An inventory of gaseous and primary aerosol emissions in Asia in the year 2000[J]. *J Geophys Res*, 108(D21): 30-31.
- Sun Y L, Wang Z F, Dong H B, et al, 2012. Characterization of summer organic and inorganic aerosols in Beijing, China with an aerosol chemical apportionment monitor[J]. *Atmos Environ*, 51(5): 250-259.
- Sun Y L, Wang Z F, Fu P Q, et al, 2013a. Aerosol composition, sources and processes during wintertime in Beijing, China[J]. *Atmos Chem and Phys*, 13(9): 4577-4592.
- Sun Y L, Wang Z F, Fu P Q, et al, 2013b. The impact of relative humidity on aerosol composition and evolution processes during wintertime in Beijing, China[J]. *Atmos Environ*, 77(3): 927-934.
- Sun Y L, Zhuang G S, Tang A H, et al, 2006. Chemical characteristics of $\text{PM}_{2.5}$ and PM_{10} in haze-fog episodes in Beijing[J]. *Environ Sci Technol*, 40(10): 3148-3155.
- Tao M H, Chen L F, Su L, et al, 2012. Satellite observation of regional haze pollution over the North China Plain[J]. *J Geophys Res*, 117(D12): D12203.
- Wehner B, Birmili W, Gnauk T, et al, 2002. Particle number size distributions in a street canyon and their transformation into the urban-air background; measurements and a simple model study[J]. *Atmos Environ*, 36(13): 2215-2223.
- Xu J W, Martin R V, van Donkelaar A, et al, 2015. Estimating Ground-Level $\text{PM}_{2.5}$ in eastern China using aerosol optical depth determined from the GOCI satellite instrument[J]. *Atmos Chem Phys*, 15(22): 13133-13144.