

许建明, 阎凤霞, 潘亮, 等, 2023. 上海东滩大气颗粒物长期变化及影响源区分析[J]. 气象, 49(1): 74-86. Xu J M, Yan F X, Pan L, et al, 2023. Analysis on the long-term variation and potential source of the particulate matters observed at Dongtan Station in Shanghai[J]. Meteor Mon, 49(1): 74-86 (in Chinese).

上海东滩大气颗粒物长期变化及影响源区分析*

许建明¹ 阎凤霞² 潘亮¹ 贺芳芳³ 高伟¹

1 长三角环境气象预报预警中心, 上海 200135

2 中国民用航空华东地区空中交通管理局气象中心, 上海 200335

3 上海市气候中心, 上海 200135

提 要: 根据 2008—2015 年上海崇明东滩大气成分观测站(以下简称东滩站)大气颗粒物(PM)观测数据, 分析其浓度水平、变化趋势、影响气团和潜在源区。结果表明, 2008—2015 年东滩站 PM 质量浓度的长期变化趋势不显著, 但细粒子(PM_{2.5})比例不断升高。PM_{2.5}/PM₁₀ 从 0.84 上升至 0.92, 表明二次气溶胶占比趋于增加。对 8 年大样本数据进行后向轨迹聚类, 发现东滩站主要受大陆型、海洋型、大陆/海洋混合型气团影响, 三者所占比率分别为 32.0%、38.8%、29.3%。海洋型气团中 PM_{2.5} 本底质量浓度为 11~15 μg·m⁻³, 而大陆型气团中 PM_{2.5} 本底质量浓度的季节差异显著, 在 29~56 μg·m⁻³ 波动, 对东滩站具有明显的输入效应。东滩站 PM_{2.5} 的潜在源区随季节变化, 秋季和冬季主要受华北、黄淮、苏皖影响, 春季收缩至苏皖和浙江北部, 夏季则转换至长三角南部的浙江及浙闽沿海。总体而言, 上海及周边的苏锡常、杭嘉湖对东滩 PM_{2.5} 浓度贡献最显著, 来自渤海、黄海近海污染回流的贡献也不可忽视。

关键词: 东滩, 可吸入颗粒物, 后向轨迹, 潜在源区

中图分类号: X16, P448

文献标志码: A

DOI: 10.7519/j.issn.1000-0526.2022.020901

Analysis on the Long-Term Variation and Potential Source of the Particulate Matters Observed at Dongtan Station in Shanghai

XU Jianming¹ YAN Fengxia² PAN Liang¹ HE Fangfang³ GAO Wei¹

1 Yangtze River Delta Center for Environmental Meteorology Prediction and Warning, Shanghai 200135

2 Meteorological Center of Traffic Management Bureau of East China, Shanghai 200335

3 Shanghai Climate Center, Shanghai 200135

Abstract: Based on the particulate matter and meteorological measurements at the Dongtan Atmospheric Composition Observing Station (shortened Dongtan Station) from 2008 to 2015, the arriving air mass is classified, the PM_{2.5} concentration level and its annual variation are examined, and the potential source of higher level of PM_{2.5} is also identified in this article. The long-term variation of PM_{2.5} concentration presents an in-significant trend from 2008 to 2015, but the percentage of fine particles (PM_{2.5}) keeps increasing. The ratio of PM_{2.5}/PM₁₀ increases from 0.84 to 0.92, indicating more and more data of secondary aerosols are observed at Dongtan Station. The air mass of 8-year big sample data at Dongtan Station can be aggregated into 3 types of back trajectories, that is, land, ocean, and land/ocean mixing types, accounting for 32.0%, 38.8% and 29.3% respectively. Among them, the PM_{2.5} background mass concentration ranges stably within 11–15 μg·m⁻³ in ocean air mass, but 29–56 μg·m⁻³ in land air mass, showing largely

* 上海市科学技术委员会科研计划(19DZ1205003)、中国气象局风云三号 03 批气象卫星工程项目[FY-3(03)-AS-12.08]共同资助

2021 年 11 月 17 日收稿; 2022 年 5 月 16 日收修定稿

第一作者: 许建明, 主要从事环境气象观测和模式研究. E-mail: metxujm@163.com

通讯作者: 贺芳芳, 主要从事气候监测与灾害评估研究. E-mail: hff@sowweather.com

seasonal variability. The potential source of relatively higher $PM_{2.5}$ observed at Dongtan Station presents clear seasonal transition from areas north to Shanghai including North China and, Huanghuai regions as well as Jiangsu and Anhui provinces in autumn and winter to southern Yangtze River Delta region including northern Zhejiang Province and its seaboard extending to Fujian Province in summer by PSCF analysis. In general, higher $PM_{2.5}$ loading at Dongtan Station is mostly contributed by air mass from Shanghai and its neighboring city clusters including Suzhou, Wuxi, Changzhou, Hangzhou, Jiaxing and Huzhou etc. It is noted that air mass recycled from Yellow Sea and Bohai Sea is also an important source area for the elevated $PM_{2.5}$ observed at Dongtan Station in spring, autumn and winter.

Key words: Dongtan Station, particulate matter (PM), backward trajectory, potential source

引 言

东滩位于我国第三大岛崇明岛的最东端,南北濒临长江入海口,是长江口规模最大、发育最完善的河口型潮汐滩涂湿地,也是上海市目前仅存的优质自然资源。东滩湿地处于海洋、河流、陆地、岛屿的交汇地带,生物多样性极为复杂和独特(杨洁等, 2013),养育了上海 70%~80%的物种。它位于全球鸟类八大迁徙路线之一的“东亚—澳大利亚”路线中段(赵雨云等, 2002),是候鸟北迁的第一站和南归的最后一站。1998 年上海市政府批准成立了上海市崇明东滩鸟类自然保护区,2005 年晋升为国家级自然保护区。

东滩湿地地理位置特殊,动植物资源丰富。20 世纪 80 年代以来很多学者持续在东滩开展碳氮磷过程(钱嫦萍等, 2003;梅雪英和张修峰, 2007;杨红霞等, 2007)、土壤微生物过程(全为民等, 2006; Wang et al, 2006)、重金属特征(吕达等, 2007)、湿地演变和修复(曹牧等, 2018)等研究工作。东滩位于长三角城市群和海洋的交界处,距离上海市中心 60 km。其西南方向是杭嘉湖城市圈,西—西北方向是苏锡常及南京、合肥都市圈,南北两侧是长三角沿海城市带(盐城、南通、宁波、台州),被认为是监测长三角城市群大气成分背景浓度和海陆物质交换的理想站点(宋城和王军, 2014;井安康等, 2019)。2008 年在东滩鸟类国家级自然保护区管理委员会的支持下,上海市气象局在保护区内建立了崇明东滩大气成分综合观测站(下文简称东滩站),按照《大气成分观测业务规范(试行)》(中国气象局, 2000)开展反应性气体、气溶胶、温室气体等大气成分的在线观测,同时也为清华大学、北京大学、复旦大学、华东

师范大学等单位在此开展大气汞(李舒等, 2016)、湿地通量(顾永剑等, 2008)、沉降酸性(马琳等, 2011)等研究工作提供观测平台。东滩站是长三角最早开展大气成分观测的站点之一。观测数据用于分析区域气候环境变化,也被广泛应用于大气环境领域的分析研究。Tie et al(2013)在东滩观测到城市老化气团中的高臭氧生成。Gao et al(2017)发现东滩的 NO_x 浓度仅为上海市区的 25%,而 O_3 浓度则是市区的 2 倍。Gu et al(2020)发现东滩高温条件($>30^\circ C$)下生物 VOCs 排放能够加剧局地臭氧的生成。Zhou et al(2018)发现 O_3 浓度升高有利于促进东滩超细粒子 PM_1 的二次生成。上述工作加深了对上海及周边地区大气光化学及气溶胶理化过程的理解,改进了上海空气质量数值预报水平(Tie et al, 2009; Zhou et al, 2017)和重污染天气的应对能力。

如上所述,东滩站位于长三角主要城市圈的交汇点。Geng et al(2008)、Tie et al(2013)指出,东滩站的大气成分观测受到不同来源气团的影响,表现出不同的理化特征。因此需要基于长期的气象和大气成分观测资料,细致研究影响东滩的气团来源,分析不同性质、不同尺度气团的特征及其对区域大气成分的影响。这对深入研究上海及长三角地区 $PM_{2.5}$ 和 O_3 相互作用及协同控制、实施区域气候变化应对具有重要意义。为此本文以大气颗粒物(PM_1 、 $PM_{2.5}$ 、 PM_{10})为对象,基于 2008—2015 年东滩站的观测数据,综合利用后向轨迹聚类、潜在源区分析等方法深入分析东滩的气团来源及其特性,揭示不同类型气团影响下大气颗粒物的特征及其差异。进一步加深对东滩大气成分观测事实的理解,也为深入挖掘观测数据价值、服务崇明国际生态岛以及建设低碳示范区提供支持。

1 资料与方法

1.1 站点和数据

东滩站位于上海崇明东滩鸟类国家级自然保护区的核心区内,距离崇明城区约为 55 km,距离长江对岸的江苏启东市 45 km;站房高度为 12 m,站点周围地势平坦,视野开阔。根据国家级自然保护区评审委员会办公室 2020 年 7 月 31 日发布的《关于上海崇明东滩鸟类国家级自然保护区功能区调整情况的公示》,保护区总面积为 241.55 km²,周围基本为农田和散落的民居,其中核心区面积为 183.76 km²,可见东滩站周边至少 20 km 范围内没有生产和生活活动。

东滩站是长三角地区最早开展大气颗粒物观测的站点之一,2008 年被纳入中国气象局大气成分观测站网。本文采用了 2008—2015 年东滩站 PM₁₀、PM_{2.5}、PM₁ 的质量浓度观测数据。观测仪器采用德国 Grimm 公司制造的 EDM180 型环境颗粒物分析仪。该设备基于激光法分析气溶胶质量浓度,粒径测量范围为 0.25~32 μm,能够获取 31 个粒径通道的颗粒物信息,监测精度为 0.1 μg·m⁻³。仪器标定和校准工作由中国气象局气象探测中心每年统一实施。颗粒物采样口安装在站房顶部,高度为 1.5 m。主机安装在站房内。按照《大气成分观测业务规范(试行)》实施仪器设备的运行维护,包括每日巡检仪器运行数据及温湿度状况检查、每月进行滤网清洗、采样管及主进气口清洁疏通、每年进行过滤器更换及仪器校准等。根据中国环境监测总站等(2018)进行数据质量控制,包括一级数据(仪器校准、故障、人工剔除等方法)、二级数据(三倍标准偏差剔除方法)和三级数据(校准偏差系数订正方法)校正,以及对数据进行界限值检查、时间一致性检查、内部一致性检查及空间一致性检查。经统计,研究时段内 PM₁₀、PM_{2.5}、PM₁ 小时数据的有效率都超过 88%。PM 质量浓度日均值计算满足每天小时样本数超过 75%,月平均值计算满足有效日均样本数超过 85%。本文同时收集了东滩站 Milos501 自动气象站获取的小时观测数据,包括气温、风速风向、相对湿度和降雨,数据有效率为 96.8%。

1.2 Lorentz 拟合方法

东滩站周围没有局地直接排放源,观测的 PM

质量浓度代表了一定尺度范围内气团均匀混合的浓度水平。林伟立等(2011)指出大气成分的本底浓度总是相对于特定时间和空间而言,采用 Lorentz 方法对金沙区域大气本底站的观测数据进行拟合获得不同季节反应性气体的本底浓度特征。本研究同样采用 Lorentz 方法对东滩站 2008—2015 年 PM_{2.5} 观测数据进行分析,获取不同时段 PM_{2.5} 的本底浓度水平。拟合效果根据拟合方程的相关系数 R² 判断,R² 越接近 1 表示结果越显著。式(1)为 Lorentz 拟合方程:

$$y = y_0 + \frac{2A}{\pi} \frac{\omega}{4(x - x_0)^2 + \omega^2} \quad (1)$$

式中: x 为 PM_{2.5} 质量浓度, y 表示 x 的频数, y_0 是基线偏移, A 是基线上曲线包含的面积, x_0 是峰的中心点, ω 是半峰宽。

1.3 后向轨迹聚类方法

气团轨迹用于描述空气质点的运动路径(林伟立等,2011)。很多研究采用后向轨迹建立源和受体之间的关系(王茜,2013),配合解释大气成分的观测结果。本文采用美国国家海洋与大气管理局空气资源实验室开发的混合单粒子拉格朗日综合轨迹模式 HYSPLIT V5.0 计算到达受体点(东滩站)的后向轨迹。模式采用的气象格点数据 GDAS (Global Data Assimilation System)从美国国家环境预测中心下载(ftp://arlftp.arlhq.noaa.gov/pub/archives/gdas1/),水平分辨率为 1°×1°,模式的起始高度设置为 100 m。模式每 3 h 启动 1 次,计算到达东滩站的 72 h 的后向轨迹,得到研究时段内(2008—2015 年)共 22 585 条轨迹。考虑到轨迹模式计算过程中存在不确定性,李莉等(2015)、赵权威等(2021)对大量轨迹进行聚类分析,通过计算空间相异度等指标对所有轨迹进行分组,从而得到更加客观的气团轨迹类别(朱书慧等,2016)。本文采用 R 软件 openair 包的角度距离方法进行聚类分析,该方法针对不同轨迹的角度进行相似度聚类,忽略了轨迹运行速度之间的差异,聚类效果优于欧式距离法(赵权威等,2021)。

1.4 潜在源贡献因子法和权重浓度法

潜在源贡献因子法(potential source contribution function, PSCF)和权重浓度法(concentration weighted trajectory, CWT)都是通过气流轨迹识别

大气污染物潜在来源的方法(李焯等,2020;刘瑞翔等,2020;赵权威等,2021)。PSCF 通过计算特定轨迹与所有轨迹在途经区域停留时间的比值来表征每个网格对受体点大气成分浓度贡献的条件概率函数。特定轨迹是指经过某一网格的气团到达受体点所对应的大气成分观测值(本文指 $PM_{2.5}$ 质量浓度)超过设定阈值。需要指出的是阈值的设定取决于研究目的,选取不同的阈值将得到不同的受体点影响源区。细粒子污染时通常将 $PM_{2.5}$ 质量浓度设定为超过 $75 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ (李莉等,2015),从而得到造成城市 $PM_{2.5}$ 污染过程的主要源区。由于东滩站周边环境相对清洁,根据林伟立等(2011)的建议,将阈值设为 $PM_{2.5}$ 质量浓度的中值。PSCF 值越大则说明该网格中对相对高浓度轨迹所占的比例越高。由于 PSCF 的计算误差会随着网格与采样点距离的增加而增加,采用权重函数(W_{ij})来降低 PSCF 的不确定性。PSCF 值计算公式如下:

$$PSCF = W_{ij} \frac{m_{ij}}{n_{ij}} \quad (2)$$

式中: m_{ij} 为经过网格(i, j)的特定轨迹数, n_{ij} 为经过网格(i, j)的所有轨迹数, W_{ij} 为权重函数(Zeng and Hopke,1989),定义如下:

$$W_{ij} = \begin{cases} 1 & n_{ij} > 80 \\ 0.70 & 80 \geq n_{ij} > 20 \\ 0.42 & 20 \geq n_{ij} > 10 \\ 0.05 & 10 \geq n_{ij} \end{cases} \quad (3)$$

PSCF 反映的是某网格中污染轨迹所占的比例,但无法区分相同 PSCF 值的网格对受体点污染物浓度的贡献,即网格内轨迹的要素值高出设定阈值的程度范围。因此参考李莉等(2015)的研究方法,采用 CWT 计算每个网格中轨迹的污染权重浓度,反映不同网格区域对研究区域的污染程度贡献,具体计算方法如下:

$$C_{ij} = \frac{\sum_{l=1}^M C_l \tau_{ijl}}{\sum_{l=1}^M \tau_{ijl}} W_{ij} \quad (4)$$

式中: C_{ij} 为网格(i, j)的平均权重浓度,单位: $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$; l 是轨迹; M 为网格(i, j)内的轨迹数; C_l 为轨迹 l 经过网格(i, j)时对应受点的污染物浓度,单位: $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$; τ_{ijl} 为轨迹 l 在网格(i, j)所停留的时间。计算中采用落在网格内的轨迹数代替停留时间,权重函数(W_{ij})同式(3)。 C_{ij} 较大时表明经过网

格(i, j)的气团对受体点造成较高的污染物浓度,该网格所在区域是受体点污染物的主要源区。

2 颗粒物浓度及变化特征

2.1 大气颗粒物浓度及变化特征

2008—2015 年东滩站观测的 PM_1 、 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 质量浓度的均值分别为 28.80 ± 21.64 、 31.89 ± 23.37 、 $37.25 \pm 28.25 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$,方差约占均值的 75%,即观测数据的离散度较大,表明海洋气团、不同尺度的城市气团所携带的气溶胶存在明显差异。 PM_1 、 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 质量浓度的中值分别为 22.08、24.85、28.45 $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$,较均值分别偏低 23.3%、22.1%、23.6%,表明高浓度气团的频数小于低浓度气团。东滩站的 PM 浓度具有显著的季节差异。以 $PM_{2.5}$ 为例,春夏秋冬的质量浓度分别为 30.32、21.34、28.27、41.89 $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$,冬季和春季最高。这是因为冬季和春季的主导风为偏西风和偏北风,大陆/城市气团对东滩的影响相对显著(许建明等,2016)。

由图 1 可见,2008—2015 年东滩站的颗粒物质量浓度没有显著的年变化趋势,主要呈现波动变化的特点。以 $PM_{2.5}$ 为例,除 2008 年和 2012 年平均质量浓度明显偏高,分别为 39.9 $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 35.7 $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$,其余年份基本维持在 26.8~32.7 $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 波动。王跃思等(2020)指出 2015 年我国重点区域的

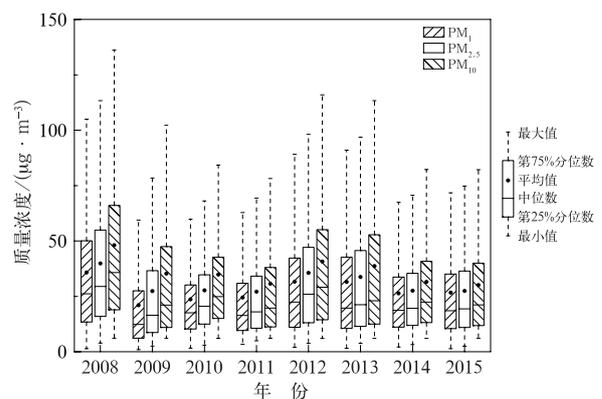


图 1 2008—2015 年东滩站 PM_1 、 $PM_{2.5}$ 、 PM_{10} 逐年质量浓度箱型图

Fig. 1 Boxplot of annual mean mass concentrations of PM_1 , $PM_{2.5}$ and PM_{10} at Dongtan Station from 2008 to 2015

PM_{2.5} 浓度较 2013 年下降了 10%~20%。2008—2015 年东滩站的 PM₁₀ 和 PM_{2.5} 浓度平均每年下降 $-1.47 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $-0.71 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 但是都没有通过 0.10 的显著性水平检验, 说明东滩站观测的颗粒物没有呈现显著的下降特征。需要指出的是, 本研究中 PM_{2.5} 质量浓度通过激光法观测获得, 而其他研究大都采用 β 射线法或者震荡天平法的观测结果, 不同观测方法得到的 PM_{2.5} 质量浓度值可能存在差异。为此对比 2018 年 7—11 月东滩站由激光法和 β 射线法平行观测的 PM_{2.5} 质量浓度, 发现激光法观测的 PM_{2.5} 浓度比 β 射线法偏低 30%~40%, 但相关系数为 0.94, 说明不同方法观测的 PM_{2.5} 的变化趋势基本一致。因此可以认为图 1 中东滩站颗粒物的年变化趋势可信。

2.2 大气颗粒物的粒径变化特征

东滩站采用的 EDM180 型环境颗粒物分析仪能同时获取 PM₁、PM_{2.5} 和 PM₁₀ 的质量浓度, 通过计算粗细粒子的浓度比例及其变化, 可以初步解析颗粒物的来源和演变特点。细粒子比例越高表明颗粒物中直接排放的一次气溶胶较少, 以气粒转化形成的二次气溶胶居多。研究发现, 上海城区 PM₁/PM_{2.5}、PM_{2.5}/PM₁₀ 的质量浓度比值分别为 0.65~0.75、0.60~0.70, 夏季最高、冬季最低(许建明等, 2017)。图 2 计算了 2008—2015 年东滩站 PM_{2.5}/PM₁₀、PM₁/PM_{2.5} 的比值变化。由于东滩站周围没有直接排放源, 下垫面为湿地, 扬尘影响较小, 因此观测的细粒子比例明显高于城市, 其中 PM_{2.5}/PM₁₀ 为 0.86, PM₁/PM_{2.5} 为 0.89。可见东滩站的观测以充分混合的老化气团为主, 二次气溶胶的比例很高。从图 2 也发现部分时段 PM_{2.5}/PM₁₀ 的第 25% 分位数也低于 0.7, 其中 2009 年最明显, 主要是受到春季沙尘过程的影响(陈镭等, 2016)。值得注意的是, 虽然东滩站观测的颗粒物浓度没有明显的年变化趋势, 但细粒子(PM_{2.5})和超细粒子(PM₁)的比例却明显升高。以 PM_{2.5}/PM₁₀ 为例, 从 2008 年的 0.84 上升至 2015 年的 0.92, 平均每年升高 0.01(通过 0.01 显著性水平检验), 表明颗粒物中细粒子的占比不断升高, 这与 Ding et al(2019) 研究结论基本一致, 即随着一次排放的降低和大气氧化性的增强, 长三角地区细粒子中二次气溶胶的比例在不断上升, 其中以硝酸盐和有机物的增加更为明显。

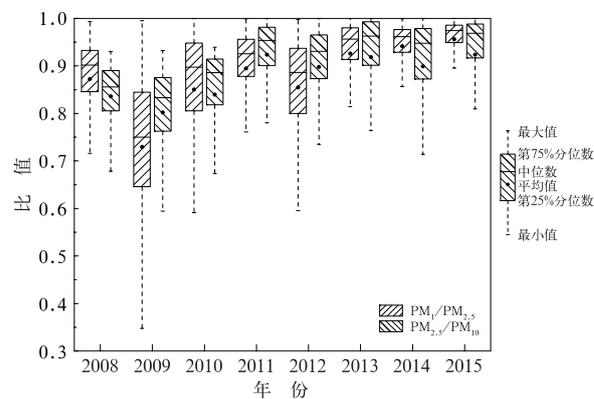


图 2 2008—2015 年东滩站 PM₁/PM_{2.5}、PM_{2.5}/PM₁₀ 逐年质量浓度比值箱型图

Fig. 2 Boxplot of the mean annual ratios of PM₁/PM_{2.5} and PM_{2.5}/PM₁₀ at Dongtan Station from 2008 to 2015

2.3 PM_{2.5} 本底浓度拟合

大气成分的本底浓度对应于不同性质的影响气团(林伟立等, 2011)。Xu et al(2016)发现上海的细粒子浓度对主导风向非常敏感, 偏东风下(海风)的 PM_{2.5} 浓度较西—西北风(区域输送)偏低了 30%~50%。东滩站位于长三角城市群和海洋的交界处, 观测结果体现了不同方向、不同来源气团中的气溶胶特征。图 3 以 PM_{2.5} 观测数据为例, 将低于观测中值的数据作为低浓度样本, 高于中值的观测数据为高浓度样本, 分别计算了两类样本随风向、风速的条件概率函数(conditional probability function, CPF), 定义 $CPF = m_{\theta,j} / n_{\theta,j}$ 。式中: $m_{\theta,j}$ 是风向区间 θ 和风速区间 j 中的低浓度或者高浓度样本数, $n_{\theta,j}$ 是该区间的样本总数。由图 3 可见, 首先低浓度 PM_{2.5} 主要分布在北—东和东—南区间, 显然来自海洋气团; 而高浓度 PM_{2.5} 主要分布在北—西和南—西区间, 和大陆/城市气团紧密联系。这种特征在每个季节都很显著, 体现了海洋气团和大陆/城市气团对东滩站 PM_{2.5} 质量浓度截然不同的影响效应。其次在图 3b 中, 春、秋、冬三个季节的高浓度样本主要分布在西南—西北区间, 表明长三角中西部城市群(上海、杭嘉湖、苏锡常及南京)对东滩 PM_{2.5} 浓度的贡献最显著。在该风向区间内, 条件概率对风速变化不敏感, 表明东滩的 PM_{2.5} 浓度受到上游不同尺度、不同距离气团的输送影响。

由于东滩站的观测受到不同尺度城市气团、海洋气团的综合影响, 并且具有显著的季节差异。函

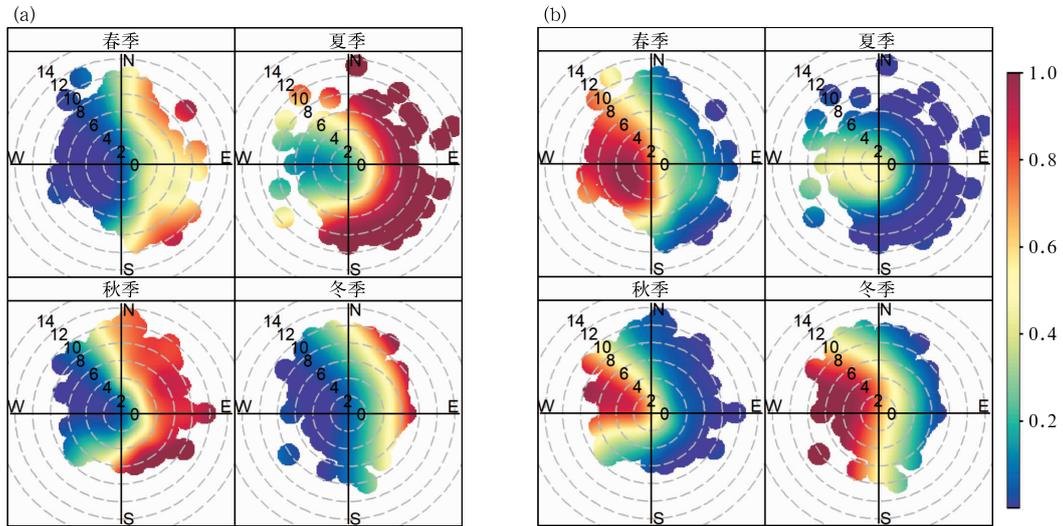


图 3 2008—2015 年东滩站四个季节(a)低于观测中值和(b)高于观测中值的 $PM_{2.5}$ 质量浓度随风速(数字,单位: $m \cdot s^{-1}$)、风向的分布条件概率函数(填色)
 Fig. 3 Conditional probability functions (colored) of (a) lower and (b) higher $PM_{2.5}$ mass concentrations relative to median value distributed with horizontal wind speed (number, unit: $m \cdot s^{-1}$) and direction at Dongtan Station in spring, summer, autumn and winter from 2008 to 2015

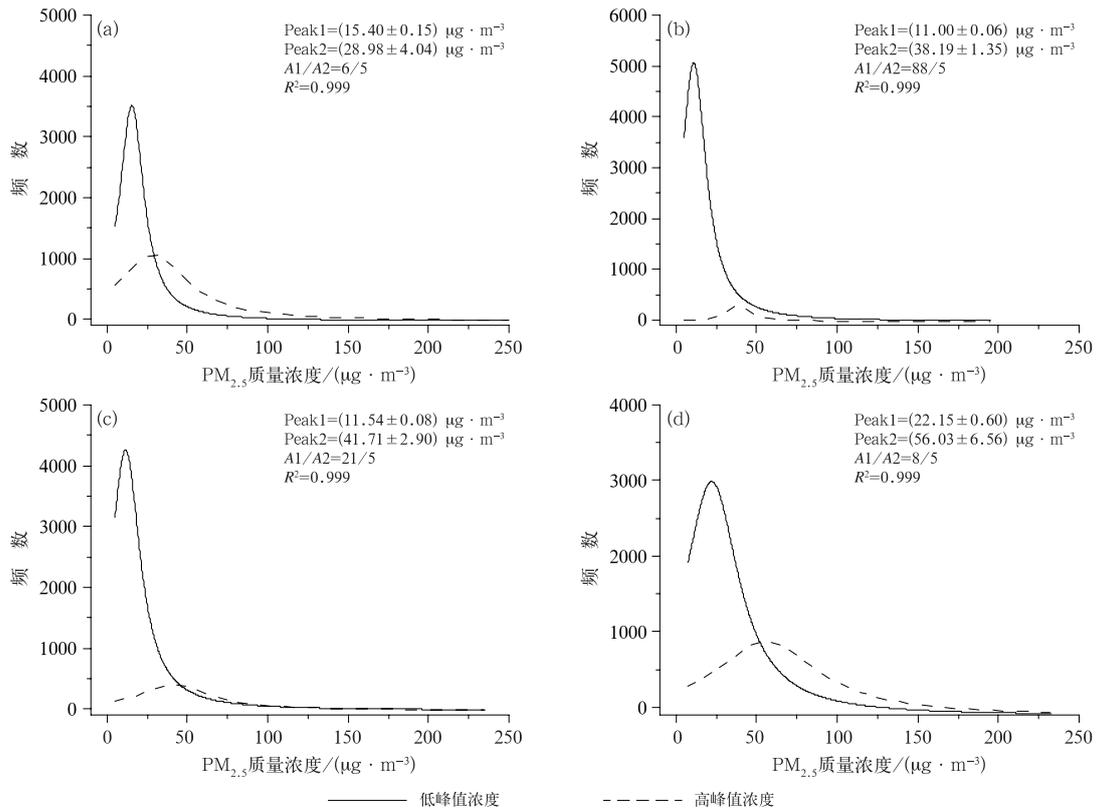


图 4 2008—2015 年(a)春、(b)夏、(c)秋、(d)冬东滩站 $PM_{2.5}$ 本底浓度的 Lorentz 拟合曲线
 Fig. 4 The $PM_{2.5}$ background concentrations fitted by Lorentz method in (a) spring, (b) summer, (c) autumn and (d) winter at Dongtan Station from 2008 to 2015

数以 $PM_{2.5}$ 为例分别计算不同季节 $PM_{2.5}$ 质量浓度小时观测数据的频率分布, 并对其进行 Lorentz 拟合。图 4 中虚线和实线分别代表 Lorentz 拟合的本底浓度高、低峰值结果, R^2 越接近 1 表示拟合效果越好, peak1、peak2 表示拟合得到的峰值浓度。A1/A2 表示不同拟合曲线所包含的面积比(即出现的频次比)。由图 4 可见, $PM_{2.5}$ 在四个季节都拟合出高、低两个峰值, 分别代表大陆/城市气团、海洋气团中的 $PM_{2.5}$ 本底浓度特征。 R^2 值都达到 0.99 以上, 表明拟合结果非常显著。低峰浓度(海洋气团)的季节差异很小, 四个季节分别为 15.4、11.0、11.5、22.2 $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 。可见春、夏、秋季的本底浓度非常接近, 冬季有所偏高可能是混合了大陆气团的信息。而高峰浓度(大陆/城市气团)在不同季节差异显著, 其中冬季最高(为 56.0 $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$), 秋季次之(为 41.7 $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$), 春、夏季较低分别为 29.0 $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 38.2 $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 。这是因为不同季节的人为排放强度以及气溶胶理化过程不同, 使得城市气团中的 $PM_{2.5}$ 浓度呈现显著的季节差异。其次从 A1/A2 面积比可以看出, 海洋气团对东滩的影响明显超过城市气团, 在秋季和夏季尤其显著, A1/A2 分别为 21/5 和 88/5, 说明海洋气团占绝对主导。第三, 秋季和夏季观测的 $PM_{2.5}$ 中值(均值)浓度分别为 20.4(28.3) $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 、16.7(21.3) $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 和均值浓度相比, 中值浓度与表征海洋气团的低峰浓度非常接近。春季和冬季 A1/A2 面积比分别为 6/5 和 8/5, 即两者对东滩的影响相对接近, 相应 $PM_{2.5}$ 的中值(均值)浓度分别为 24(30.3) $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 、35.9(41.9) $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 中值浓度介于高、低峰值浓度之间, 而均值浓度与表征大陆/城市气团的高峰浓度更接近, 可见在冬、春季相对高浓度的颗粒物对东滩影响较大。综合而言, 东滩站观测的 $PM_{2.5}$ 中值浓度能够更好地代表其本底浓度特征, 这和林伟立等(2011)对湖北金沙的分析结论相似。

3 气团轨迹及其影响分析

3.1 轨迹聚类分析

为了深入理解不同来向、不同尺度气团对东滩颗粒物的影响差异, 采用轨迹聚类的方法对 2008—2015 年东滩站 22 585 条后向轨迹进行聚类计算, 得到研究时段内影响东滩的主要气团类型及其来向和

途经区域, 并对不同类型气团的物理性质进行对比, 从而揭示其对东滩颗粒物的影响差异。

图 5 显示了聚类后得到的五类轨迹, 分别为西北型、东北型、东部型、东南型和沿海型。西北型和沿海型是典型的大陆/城市气团, 前者的运行路径包括了内蒙古、华北、黄淮、苏皖地区, 均是我国东部的高污染排放区域; 后者主要途经浙江南部及浙闽沿海地区。东部型和东南型是典型的海洋气团, 分别来自黄海和东海。东北型则是大陆/海洋混合气团, 发源于内蒙古东部和东北地区, 途经渤海、山东半岛及黄海。该类气团性质复杂, 混杂了不同源地的一次排放污染物, 以及它们之间发生的复杂物理化学过程的结果。需要指出的是, 图 5 在利用角度聚类时忽略了气团运动速度的差异。因此每条轨迹中实际包含了不同空间尺度的气团, 与不同季节的天气系统相对应。

表 1 统计了五类轨迹的发生时间/频次、气团的平均相对湿度、平均温度等信息, 由此分析不同气团对应的主要天气系统, 推测其对颗粒物可能产生的影响。

西北型和东北型轨迹主要分布在秋季至次年春季, 气团性质干冷, 平均温度分别为 9.57℃、11.89℃, 平均相对湿度为 65.40% 和 72.96%。这两种气团运行高度最高、传输距离最长, 显然和冷空气活动相

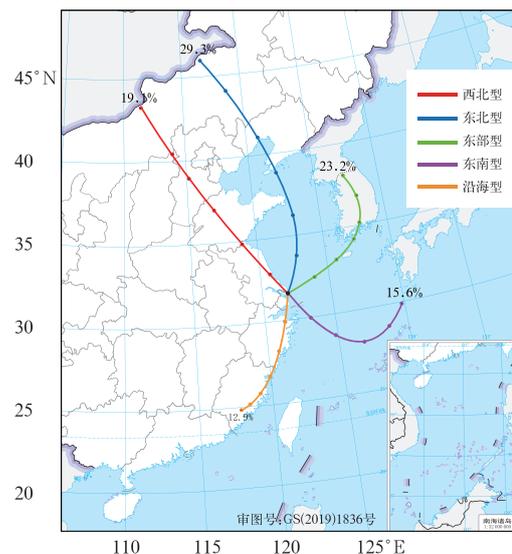


图 5 2008—2015 年东滩站后向轨迹聚类
(数字表示占比)

Fig. 5 Aggregation on the backward trajectories at Dongtan Station during 2008 to 2015
(Numbers denote the ratio)

关。不同的是从运行轨迹来看,西北型对应的冷空气路径偏中路,锋面正面经过东滩,主导风向为西北—北风,因此受到上游污染气团的直接输送。而东北型对应的冷空气路径偏东,冷空气主体向东北移动,东滩受冷空气外围底部气流影响,主导风向为东北风。东北型气团对东滩的传输影响比较复杂,首先如果气团途经山东半岛和苏北,会明显增强气团的污染强度;其次如果在海上时间较长,则被海上的清洁空气稀释从而降低气团的污染强度。许建明等(2016)研究也表明上述两类冷空气是促发上海冬季 PM_{2.5} 污染的主要天气系统。值得注意的是西北型气团的平均风速为 4.14 m·s⁻¹,低于东北型(4.54 m·s⁻¹)。这是因为由高压变性产生的高压楔、鞍型场和 L 型高压也是形成西北型轨迹的重要天气系统。但它们的空间尺度相对较小、气压场较弱,主要影响黄淮、苏皖等地(曹钰等,2021)。

东部型和东南型都是典型的海洋气团,性质暖湿,平均温度分别为 18.90℃ 和 22.15℃,平均相对湿度超过 80%。由于东滩的主导风向是东北—东风,东部型气团在全年都有出现。东南型主要在春末至秋初(4—9 月)出现,东滩盛行东—东南风。这两类气团都和海上高压有关,但高压的尺度和位置不同。东部型对应的高压通常位于山东半岛附近,东滩位于高压的底后部盛行东北—东风;而东南型

则和副热带高压(以下简称副高)相关,东滩受副高控制或者副高边缘影响,主导风为东南风。此外东南型也包含了台风影响,其平均风速最大(4.98 m·s⁻¹)。需要指出的是,从轨迹上看东部型气团虽然来自海上,但由于气团随高压从大陆入海,气团中不但携带了老化的气溶胶粒子,还包含其气态前体物,可在有利的条件下通过气粒转化为二次气溶胶,对上海及周边的南通等沿海城市产生污染回流作用(张哲等,2021),进而增加东滩观测的 PM_{2.5} 浓度。

沿海型集中出现在 6—8 月,东滩主导风向为南—西南风。戴竹君等(2016)、许建明等(2016)都指出长三角通常处于低压倒槽和弱气压场控制,天气静稳。由表 1 可见此类轨迹的平均风速最小,仅为 4.06 m·s⁻¹,与许建明等(2016)研究结论一致。另外沿海型气团的平均温度最高(22.86℃),增加了生物 VOCs 排放(Gu et al,2020),有利于 O₃ 浓度升高,进而促进二次气溶胶的生成。

王茜(2013)、李莉等(2015)、许建明等(2016)、朱书慧等(2016)针对上海细粒子污染过程开展了类似的轨迹聚类研究,同样揭示了西北型、东北型、东部型三种路径特征。由于上述文献重点研究秋、冬季影响上海的污染传输路径,研究时段为数天或者几个月,因此对图 5 中春、夏季出现的东南型、沿海型轨迹则鲜有提及。

表 1 2008—2015 年东滩站后向轨迹聚类分析得到的五类轨迹的
发生频次、平均高度、相对湿度、温度和风速

Table 1 Statistics of the occurrence, height, relative humidity, temperature and wind speed of 5 types of backward trajectories at Dongtan Station based on aggregation analysis from 2008 to 2015

统计量	月份	西北型	东北型	东部型	东南型	沿海型
频次/%	1	3.06	3.87	0.72	0.31	0.53
	2	1.48	4.13	1.31	0.33	0.49
	3	1.50	4.02	1.37	0.81	0.79
	4	1.31	2.40	2.02	1.79	0.69
	5	1.00	1.65	2.38	2.57	0.89
	6	0.38	0.65	3.26	2.06	1.86
	7	0.33	0.43	1.28	2.76	3.70
	8	0.40	0.87	2.43	2.23	2.55
	9	0.66	2.43	3.61	1.28	0.23
	10	1.56	3.38	2.87	0.58	0.10
	11	2.96	2.85	1.35	0.73	0.33
	12	4.42	2.62	0.57	0.15	0.69
	合计	19.05	29.31	23.18	15.61	12.86
平均高度/m		787.67	750.44	362.93	287.30	522.09
平均温度/℃		9.57	11.89	18.90	22.15	22.86
平均相对湿度/%		65.40	72.96	82.41	86.43	82.99
平均风速/(m·s ⁻¹)		4.14	4.54	4.47	4.98	4.06

图 6a 显示了五类气团对应的 $PM_{2.5}$ 平均质量浓度。西北型和沿海型两种大陆型气团的 $PM_{2.5}$ 质量浓度较高,分别为 $48.2 \mu g \cdot m^{-3}$ 和 $35.2 \mu g \cdot m^{-3}$,其次是海陆混合的东北型($26.3 \mu g \cdot m^{-3}$)。相比之下东部型、东南型这两种海洋气团的 $PM_{2.5}$ 质量浓度较低,分别为 $20.9 \mu g \cdot m^{-3}$ 和 $23.7 \mu g \cdot m^{-3}$ 。这与前文研究结果一致,即海洋气团的颗粒物浓度明显低于大陆/城市气团。值得注意的是,从浙闽沿海传输到东滩的气团虽然出现在夏季,但 $PM_{2.5}$ 质量浓度高达 $35.2 \mu g \cdot m^{-3}$,这在以往研究中鲜有报道。此类气团传输路径上的宁波、舟山、泉州、厦门等都是港口城市。Mao et al(2020)发现近海船舶排放是造成夏季东南沿海城市 $PM_{2.5}$ 污染的原因之一。船舶排放的气态前体物在高浓度 O_3 条件下能够快速转化成二次气溶胶,因此提升了沿海城市的 $PM_{2.5}$ 浓度水平。本研究发现了沿海型气团对东滩颗粒物的重要影响,今后需要结合质谱等观测手段进一步研究该类气团的影响机制。

图 6a 中五类气团对应的 $PM_{2.5}$ 平均质量浓度是特定气团来源背景下的平均水平,相互差异本身包含了 $PM_{2.5}$ 的季节变化,因此不能剔除不同季节污染源汇差异导致的 $PM_{2.5}$ 浓度差异,不便于解释不同类型气团对受体点浓度的影响(贡献)程度。为此采用林伟立等(2011)推荐的方法,对 $PM_{2.5}$ 小时质量浓度平均值进行 30 d 滑动平均(代表季节平均态),然后用观测值减去滑动平均值进而获取每类气团与季节态差值的平均值。这种处理方法扣除了季节变化的信号,一定程度上反映了短期内排放源的空间分布和气团运动特性对受体点污染物浓度的贡献。处理后的结果如图 6b 所示,两种大陆气团对东滩 $PM_{2.5}$ 浓度的短期贡献为正,表明这两种气团中携带的颗粒物浓度高于东滩的季节平均态,颗粒物的输入通量大于输出通量,因此短期内使得观测质量浓度升高约 $10 \mu g \cdot m^{-3}$ 。其余三种气团(东北型、东部型、东南型)的贡献为负,表明气团携带的颗粒物浓度低于东滩的季节均态,从而使观测质量浓度降低约 $2 \sim 5 \mu g \cdot m^{-3}$ 。这是因为这三种气团全部或者部分来自海上,如前所述每个季节海洋气团的浓度都低于中值(季节本底浓度),因此短期内可降低东滩的观测浓度。

3.2 潜在源因子分析和浓度权重分析

轨迹聚类能够获取影响东滩的气团运行方向和

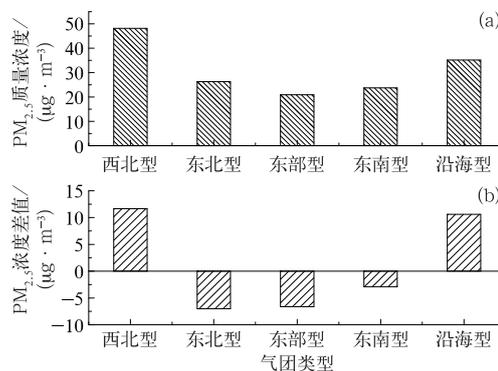


图 6 2008—2015 年东滩站后向轨迹聚类分析到的五类气团对应的 $PM_{2.5}$ (a) 平均质量浓度、(b) 30 d 平滑处理后相对季节平均的差值

Fig. 6 The mean $PM_{2.5}$ (a) mass concentrations and (b) their deviations relative to 30 d smoothing averages of each type of backward trajectory at Dongtan Station from 2008 to 2015

途经区域,但如前文所述,不能分离出空间尺度的信息。因此将基于 PSCF 和 CWT 进一步分析东滩 $PM_{2.5}$ 的主要源区及其贡献。图 7 和图 8 分别显示了 2008—2015 年东滩站四个季节的 $PM_{2.5}$ 潜在源因子分析和浓度权重分析结果。图 7 中 PSCF 值越大表明经过该网格到达东滩的相对高浓度轨迹占比越高,即可判断 $PM_{2.5}$ 潜在源区。图 7 展示了每个月东滩 $PM_{2.5}$ 潜在源区的空间分布。为了剔除季节变化的差异,阈值设置为每个月 $PM_{2.5}$ 的中值浓度,这样可以分月判别受体点的影响源区。受季风气候影响,东滩的潜在源区明显随季节转换。秋季和冬季受冷空气和变性高压影响,东滩的潜在源区主要来自西—西北方向,对应于图 5 中的西北型和东北型轨迹,包括华北、黄淮和苏皖,此外渤海、黄海近海区域也有显著贡献。春季随着冷空气势力减弱,潜在源区不断向南收缩,主要包括苏皖和浙江北部。到 6 月,潜在源区基本收缩至上海及浙北地区。受东北型轨迹影响,黄海近海仍然是显著的源区。夏季的 7—8 月,西南气流发展强盛,潜在源区从长三角北部转换至南部,主要包括浙江及浙闽沿海地区,对应于沿海型轨迹。9 月以后副高南退,潜在源区重新转到西北上游。

图 8 显示了每个月 CWT 的计算结果,值越大表示对东滩 $PM_{2.5}$ 的质量浓度贡献越高。由图可见,11 月至次年 1 月东滩 $PM_{2.5}$ 受输送的贡献最显著,尤其上海及周边的苏锡常、杭嘉湖、南京、合肥都

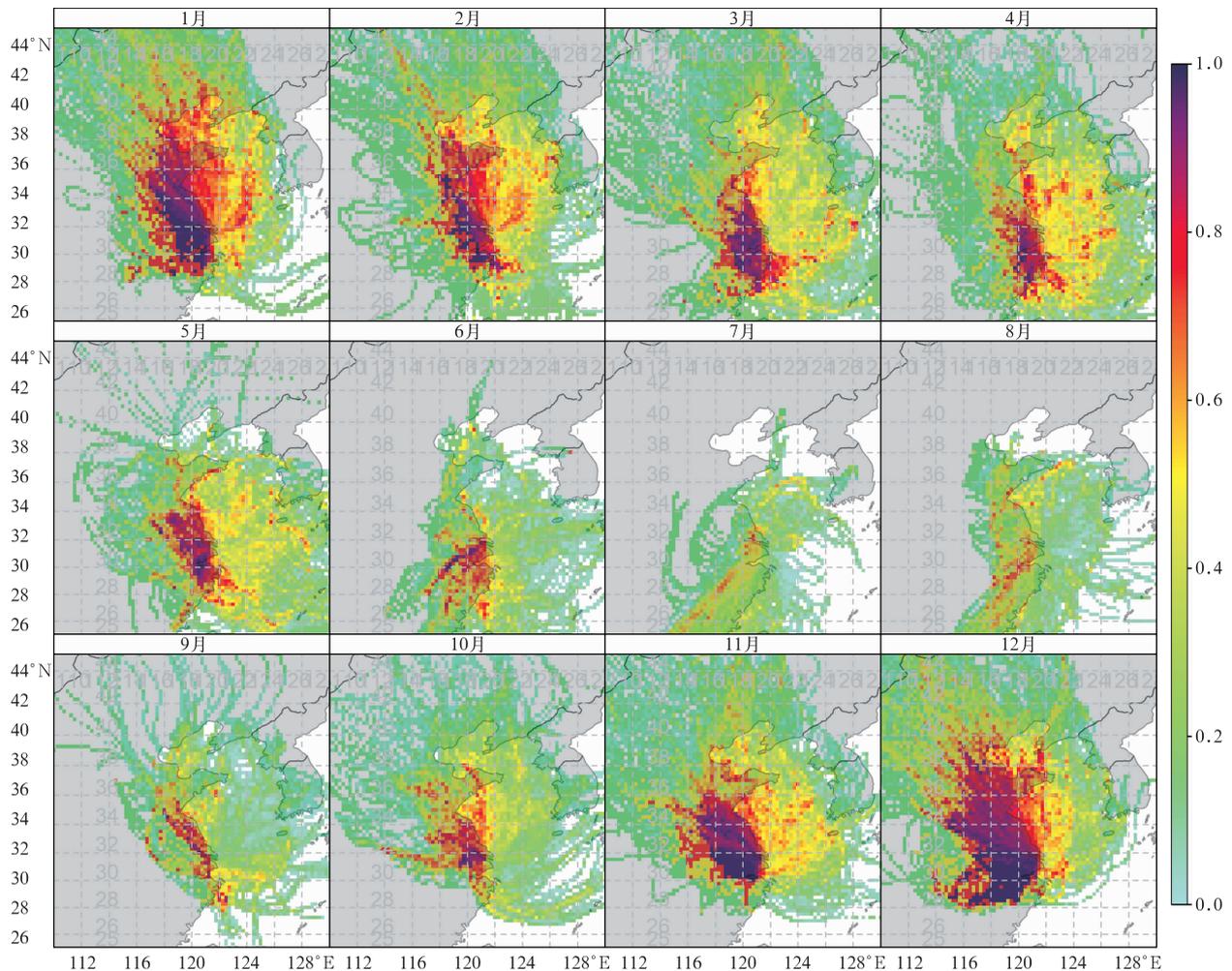


图 7 2008—2015 年东滩站高于观测中值的逐月 PSCF

Fig. 7 The PSCF of higher $PM_{2.5}$ concentrations relative to median value observed at Dongtan Station in each month from 2008 to 2015

市圈以及苏鲁豫交界处对东滩 $PM_{2.5}$ 的贡献超过 $50 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 。其中 11 月、12 月主要受长三角内陆城市(包括上海及周边苏锡常宁,以及安徽中北部城市如滁州、蚌埠、阜阳)的贡献,其主导天气系统多为 L 型高压或高压楔,容易在长三角内陆地区形成污染天气。而 1 月主要受鲁豫交界处至苏北沿海城市、杭嘉湖地区的输送贡献,前者是冷空气的长距离传输,后者受高压前部偏西气流影响。其他月份输送对东滩 $PM_{2.5}$ 浓度的贡献显著降低,主要的贡献区集中在上海及周边的苏锡常、杭嘉湖都市圈($30 \sim 40 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$)。值得注意的是除了夏季以外,黄海近海海域对东滩的 $PM_{2.5}$ 浓度都有显著贡献,冬季可达 $40 \sim 60 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$,春秋两季为 $20 \sim 30 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$,可见海上回流对东滩及长三角沿海的空气质

量具有显著影响,在今后的研究中需要加强关注。

4 结 论

(1) 2008—2015 年东滩站观测的 PM_1 、 $PM_{2.5}$ 和 PM_{10} 质量浓度均值分别为 28.80 ± 21.64 、 31.89 ± 23.37 、 $37.25 \pm 28.25 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$,颗粒物质量浓度呈现波动变化的特点,在研究时段内没有显著的年变化趋势。但细粒子($PM_{2.5}$)和超细粒子(PM_1)的比例却明显升高,其中 $PM_{2.5}/PM_{10}$ 从 2008 年的 0.84 上升至 2015 年的 0.92,表明颗粒物中细粒子的质量占比升高。

(2) 对 2008—2015 年的 $PM_{2.5}$ 浓度进行 Lorentz 拟合,在四个季节都得到高、低两个峰值,

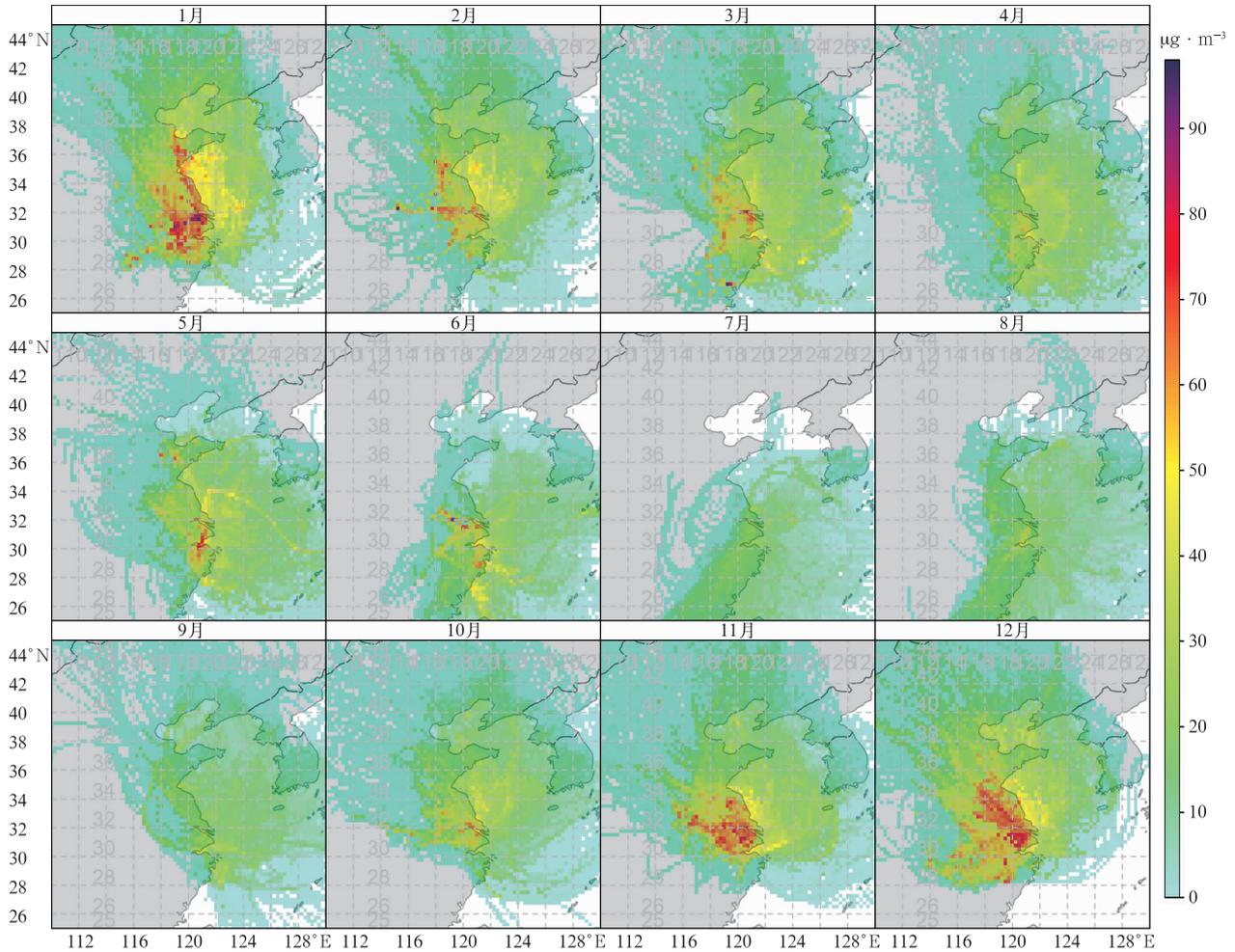


图 8 2008—2015 年东滩站 $PM_{2.5}$ 逐月权重质量浓度分布
 Fig. 8 Distribution of relatively high $PM_{2.5}$ weight mass concentration observed at Dongtan Station in each month from 2008 to 2015

分别代表大陆/城市气团、海洋气团中的 $PM_{2.5}$ 本底浓度特征。海洋气团中 $PM_{2.5}$ 本底浓度的季节差异很小,拟合浓度分别为 15.4 、 11.0 、 11.5 、 $22.2 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 。而城市气团的 $PM_{2.5}$ 本底浓度存在显著的季节差异,冬季最高为 $56.0 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$,秋季次之为 $41.7 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$,春、夏季较低(分别为 $29.0 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $38.2 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$)。

(3)对 2008—2015 年东滩站 22585 条后向轨迹进行聚类得到五类轨迹类型,其中西北型和沿海型是典型的大陆/城市气团, $PM_{2.5}$ 质量浓度较高,分别为 $48.2 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $35.2 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$;东部型和东南型是典型的海洋气团, $PM_{2.5}$ 质量浓度较低,分别为 $20.9 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $23.7 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$;而东北型则是大陆/海洋混合气团, $PM_{2.5}$ 质量浓度介于之间,为 $26.3 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 。剔除季节信号后发现,两种大陆/城市气团对东滩站 $PM_{2.5}$ 具有输入效应,使得 $PM_{2.5}$ 浓度上升约 $10 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 。

(4)受季风气候影响,2008—2015 年东滩站 $PM_{2.5}$ 的潜在源区明显随季节转换。秋季和冬季受西北型和东北型轨迹影响,主要来自华北、黄淮和苏皖,此外渤海、黄海近海区域也有显著贡献。春季潜在源区不断向南收缩,主要包括苏皖和浙江北部。到 6 月潜在源区基本收缩至上海及浙北地区。夏季的 7—8 月受沿海型轨迹影响,潜在源区从长三角北部转换至南部,主要包括浙江及浙闽沿海地区。9 月以后副高南退,潜在源区重新转到西北上游地区。

(5)权重浓度计算结果显示 11 月至次年 1 月东滩 $PM_{2.5}$ 受输送的贡献最显著,尤其是上海及周边的苏锡常、杭嘉湖、南京、合肥都市圈以及苏鲁豫交界处。其他月份输送对东滩 $PM_{2.5}$ 浓度的贡献显著降低,主要集中在上海及周边的苏锡常、杭嘉湖都市圈。值得注意的是除了夏季以外,黄海近海海域对东滩 $PM_{2.5}$ 浓度有显著贡献,表明海上回流对东滩

及长三角沿海的空气质量具有显著影响。

参考文献

- 曹牧,蒋劭妍,陈婷媛,等,2018. 崇明东滩自然与人工修复湿地鸟类种群特征对比研究[J]. 南京林业大学学报:自然科学版,42(6):113-120. Cao M, Jiang S Y, Chen T Y, et al, 2018. Characteristics of the avian communities in the natural wetland and artificially restored wetland in Chongming Dongtan, Shanghai[J]. J Nanjing Forest Univ: Nat Sci Ed, 42(6):113-120(in Chinese).
- 曹钰,楼晟荣,王茜,等,2021. 长三角区域性 PM_{2.5} 污染的空间分型及其大气环流特征研究[J]. 环境科学学报,41(5):1665-1679. Cao Y, Lou S R, Wang Q, et al, 2021. Spatial classifications on the regional PM_{2.5} pollution and their dominant synoptic circulations over the Yangtze River Delta Region[J]. Acta Sci Circumst, 41(5):1665-1679(in Chinese).
- 陈镭,马井会,耿福海,等,2016. 上海地区一次典型连续颗粒物污染过程分析[J]. 气象,42(2):203-212. Chen L, Ma J H, Geng F H, et al, 2016. Analysis of a typical air pollution event in Shanghai[J]. Meteor Mon, 42(2):203-212(in Chinese).
- 戴竹君,刘端阳,王宏斌,等,2016. 江苏秋冬季重度霾的分型研究[J]. 气象学报,74(1):133-148. Dai Z J, Liu D Y, Wang H B, et al, 2016. The classification study of the heavy haze during autumn and winter of Jiangsu[J]. Acta Meteor Sin, 74(1):133-148(in Chinese).
- 顾永剑,高宇,郭海强,等,2008. 崇明东滩湿地生态系统碳通量贡献区分析[J]. 复旦学报(自然科学版),47(3):374-379,386. Gu Y J, Gao Y, Guo H Q, et al, 2008. Footprint analysis for carbon flux in the wetland ecosystem of Chongming Dongtan[J]. J Fudan Univ (Nat Sci), 47(3):374-379,386(in Chinese).
- 井安康,朱彬,丁德平,等,2019. 中国长江三角洲地区黑碳特征和来源分析[J]. 中国环境科学,39(9):3585-3594. Jing A K, Zhu B, Ding D P, et al, 2019. Characteristics and source apportionment of black carbon in the Yangtze River Delta Region of China[J]. China Environ Sci, 39(9):3585-3594(in Chinese).
- 李烜,盛黎,宋振鑫,等,2020. 基于多种 TSM 方法的北京国家奥林匹克体育中心 2 月颗粒物来源解析[J]. 气象,46(5):687-694. Li D, Sheng L, Song Z X, et al, 2020. Analysis of Beijing National Olympic Sports Center pollutants source in February based on multiple-TSMs[J]. Meteor Mon, 46(5):687-694(in Chinese).
- 李莉,蔡莹琳,周敏,2015. 2013 年 12 月中国中东部地区严重灰霾期间上海市颗粒物的输送途径及潜在源区贡献分析[J]. 环境科学,36(7):2327-2336. Li L, Cai J L, Zhou M, 2015. Potential source contribution analysis of the particulate matters in Shanghai during the heavy haze episode in eastern and middle China in December, 2013[J]. Environ Sci, 36(7):2327-2336(in Chinese).
- 李舒,高伟,王书肖,等,2016. 上海崇明地区大气分形态汞污染特征[J]. 环境科学,37(9):3290-3299. Li S, Gao W, Wang S X, et al, 2016. Characteristics of speciated atmospheric mercury in Chongming Island, Shanghai[J]. Environ Sci, 37(9):3290-3299(in Chinese).
- 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. Lin W L, Xu X B, Sun J Y, et al, 2011. Background concentrations of reactive gases and the impacts of long-range transport at the Jinsha Regional Atmospheric Background Station[J]. Sci China Earth Sci, 41(4):573-582(in Chinese).
- 刘瑞翔,刘端阳,姚雷,等,2020. 近十年连云港市霾变化特征及其气象条件分析[J]. 气象,46(7):959-970. Liu R X, Liu D Y, Yao L, et al, 2020. Analysis on the variation characteristics and meteorological conditions of haze in Lianyungang City in recent decade[J]. Meteor Mon, 46(7):959-970(in Chinese).
- 吕达,郑祥民,周立旻,等,2007. 崇明东滩湿地沉积物重金属污染的磁诊断[J]. 环境科学研究,20(6):38-43. Lv D, Zheng X M, Zhou L M, et al, 2007. Magnetic diagnosis of heavy metal pollution in sediments of Chongming Wetland[J]. Res Environ Sci, 20(6):38-43(in Chinese).
- 马琳,杜建飞,闫丽丽,等,2011. 崇明东滩湿地降水化学特征及来源解析[J]. 中国环境科学,31(11):1768-1775. Ma L, Du J F, Yan L L, et al, 2011. Chemical characteristics and source apportionment of precipitation at Dongtan Wetland, Chongming[J]. China Environ Sci, 31(11):1768-1775(in Chinese).
- 梅雪英,张修峰,2007. 崇明东滩湿地自然植被演替过程中储碳及固碳功能变化[J]. 应用生态学报,18(4):933-936. Mei X Y, Zhang X F, 2007. Carbon storage and carbon fixation during the succession of natural vegetation in wetland ecosystem on east beach of Chongming Island[J]. Chin J Appl Ecol, 18(4):933-936(in Chinese).
- 钱嫦萍,陈振楼,胡玲珍,等,2003. 崇明东滩沉积物再悬浮对沉积物-水界面氮、磷交换行为的影响[J]. 环境科学,24(5):114-119. Qian C P, Chen Z L, Hu L Z, et al, 2003. Effects of sediment re-suspension on nitrogen and phosphate exchange at the sediment-water interface in East Chongming Tidal Flat[J]. Environ Sci, 24(5):114-119(in Chinese).
- 全为民,李春鞠,沈益绿,等,2006. 崇明东滩湿地营养盐与重金属的分布与累积[J]. 生态学报,26(10):3324-3331. Quan W M, Li C J, Shen A L, et al, 2006. Distribution and accumulation of nutrients and heavy metals in Dongtan Wetlands on Chongming Island, China[J]. Acta Ecol Sin, 26(10):3324-3331(in Chinese).
- 宋城城,王军,2014. 近 30 年来长江口水下三角洲地形演变与受控因素分析[J]. 地理学报,69(11):1683-1696. Song C C, Wang J, 2014. Erosion-accretion changes and controlled factors of the submerged delta in the Yangtze Estuary in 1982-2010[J]. Acta Geogr Sin, 69(11):1683-1696(in Chinese).
- 王东启,陈振楼,许世远,等,2006. 长江口崇明东滩沉积物反硝化作用研究[J]. 中国科学 D 辑:地球科学,36(6):544-551. Wang D Q, Chen Z L, Xu S Y, et al, 2006. Denitrification in Chongming east tidal flat sediment, Yangtze estuary, China[J]. Sci China Ser D: Earth Sci, 36(6):544-551(in Chinese).
- 王茜,2013. 利用轨迹模式研究上海大气污染的输送来源[J]. 环境科学研究,26(4):357-363. Wang Q, 2013. Study of air pollution transportation source in Shanghai using trajectory model[J]. Res Environ Sci, 26(4):357-363(in Chinese).
- 王跃思,李文杰,高文康,等,2020. 2013~2017 年中国重点区域颗粒物质量浓度和化学成分变化趋势[J]. 中国科学:地球科学,50(4):453-468. Wang Y S, Li W J, Gao W K, et al, 2020. Trends in particulate matter and its chemical compositions in China from 2013-2017[J]. Sci China Earth Sci, 50(4):453-468(in Chinese).

- 许建明,常炉予,马井会,等,2016.上海秋冬季 $PM_{2.5}$ 污染天气形势的客观分型研究[J].环境科学学报,36(12):4303-4314. Xu J M, Chang L Y, Ma J H, et al, 2016. Objective synoptic weather classification on $PM_{2.5}$ pollution during autumn and winter seasons in Shanghai[J]. Acta Sci Circumst, 36(12):4303-4314 (in Chinese).
- 许建明,高伟,瞿元昊,2017.上海地区降雨清除 $PM_{2.5}$ 的观测研究[J].环境科学学报,37(9):3271-3279. Xu J M, Gao W, Qu Y H, 2017. Observation of the wet scavenging effect of rainfall on $PM_{2.5}$ in Shanghai[J]. Acta Sci Circumst, 37(9):3271-3279 (in Chinese).
- 杨红霞,王东启,陈振楼,等,2007.长江口崇明东滩潮间带甲烷(CH_4)排放及其季节变化[J].地理科学,27(3):408-413. Yang H X, Wang D Q, Chen Z L, et al, 2007. Seasonal variation of CH_4 emission from Chongming east intertidal flat of Yangtze River Estuary[J]. Sci Geogr Sin, 27(3):408-413 (in Chinese).
- 杨洁,余华光,徐凤洁,等,2013.崇明东滩围垦区草本植物群落组成及物种多样性[J].生态学杂志,32(7):1748-1755. Yang J, Yu H G, Xu F J, et al, 2013. Species composition and diversity of herb communities in Dongtan reclamation areas of Chongming Island, Shanghai[J]. Chin J Ecol, 32(7):1748-1755. (in Chinese)
- 张哲,乔利平,周敏,等,2021.输送、滞留叠加海上回流的长时间沙尘天气影响判断及贡献分析[J].环境科学,42(2):584-594. Zhang Z, Qiao L P, Zhou M, et al, 2021. Time-determination and contribution analysis of transport, retention, and offshore backflow to long-term sand-dust coupling[J]. Environ Sci, 42(2):584-594 (in Chinese).
- 赵权威,何清,王慧琴,等,2021.阿克达拉大气本底站 NO_2 输送路径及潜在源分析[J].环境科学学报,41(3):874-885. Zhao Q W, He Q, Wang H Q, et al, 2021. Identification of transport pathways and potential source areas of NO_2 in Akedala[J]. Acta Sci Circumst, 41(3):874-885 (in Chinese).
- 赵雨云,马志军,陈家宽,2002.崇明东滩越冬白头鹤食性的研究[J].复旦学报(自然科学版),41(6):609-613. Zhao Y Y, Ma Z J, Chen J K, 2002. Food habits of hooded crane (*Grus monacha*) in winter at the east tidelands of Chongming Island[J]. J Fudan Univ (Nat Sci), 41(6):609-613 (in Chinese).
- 中国环境监测总站,苏州市环境监测中心站,济南市环境监测中心站,等,2018.环境空气颗粒物(PM_{10} 和 $PM_{2.5}$)连续自动监测系统运行和质控技术规范:HJ 817-2018[S].北京:中国环境出版社. China Environmental Monitoring Centre, Suzhou Environmental Monitoring Centre, Jinan Environmental Monitoring Centre, et al, 2018. Standard of continued auto-monitoring system and quality control of particulate matter (PM_{10} , $PM_{2.5}$) in environment; HJ 817-2018[S]. Beijing: China Environmental Science Press (in Chinese).
- 中国气象局,2000.大气成分观测业务规范(试行)[M].北京:气象出版社. China Meteorological Administration, 2000. Atmospheric Composition Observing Business Rules [M]. Beijing: China Meteorological Press (in Chinese).
- 朱书慧,周敏,乔利平,等,2016.2015年12月气流轨迹对长三角区域细颗粒物浓度和分布的影响[J].环境科学学报,36(12):4285-4294. Zhu S H, Zhou M, Qiao L P, et al, 2016. Impact of the air mass trajectories on $PM_{2.5}$ concentrations and distribution in the Yangtze River Delta in December 2015[J]. Acta Sci Circumst, 36(12):4285-4294 (in Chinese).
- Ding A J, Huang X, Nie W, et al, 2019. Significant reduction of $PM_{2.5}$ in eastern China due to regional-scale emission control: evidence from SORPES in 2011-2018[J]. Atmos Chem Phys, 19(18):11791-11801.
- Gao W, Tie X X, Xu J M, et al, 2017. Long-term trend of O_3 in a mega city (Shanghai), China: characteristics, causes, and interactions with precursors[J]. Sci Total Environ, 603-604:425-433.
- Geng F H, Tie X X, Xu J M, et al, 2008. Characterizations of ozone, NO_x , and VOCs measured in Shanghai, China[J]. Atmos Environ, 42(29):6873-6883.
- Gu Y X, Yan F X, Xu J M, et al, 2020. A measurement and model study on ozone characteristics in marine air at a remote island station and its interaction with urban ozone air quality in Shanghai, China[J]. Atmos Chem Phys, 20(22):14361-14375.
- Mao J B, Zhang Y, Yu F Q, et al, 2020. Simulating the impacts of ship emissions on coastal air quality: importance of a high-resolution emission inventory relative to cruise- and land-based observations[J]. Sci Total Environ, 728:138454.
- Tie X X, Geng F, Guenther A, et al, 2013. Megacity impacts on regional ozone formation: observations and WRF-Chem modeling for the MIRAGE-Shanghai field campaign[J]. Atmos Chem Phys, 13(1):1673-1716.
- Tie X X, Geng F H, Peng L, et al, 2009. Measurement and modeling of O_3 variability in Shanghai, China: application of the WRF-Chem model[J]. Atmos Environ, 43(28):4289-4302.
- Wang D Q, Chen Z L, Xu S Y, et al, 2006. Denitrification in Chongming east tidal flat sediment, Yangtze Estuary, China[J]. Sci China Ser D: Earth Sci, 49(10):1090-1097.
- Wang Y S, Li W J, Gao W K, et al, 2019. Trends in particulate matter and its chemical compositions in China from 2013-2017[J]. Sci China Earth Sci, 62(12):1857-1871.
- Xu J M, Chang L Y, Qu Y H, et al, 2016. The meteorological modulation on $PM_{2.5}$ interannual oscillation during 2013 to 2015 in Shanghai, China[J]. Sci Total Environ, 572:1138-1149.
- Zeng Y, Hopke P K, 1989. A study of the sources of acid precipitation in Ontario, Canada[J]. Atmos Environ, 23(7):1499-1509.
- Zhou G Q, Xu J M, Gao W, et al, 2018. Characteristics of PM_{10} over Shanghai, relationships with precursors and meteorological variables and impacts on visibility[J]. Atmos Environ, 184:224-232.
- Zhou G Q, Xu J M, Xie Y, et al, 2017. Numerical air quality forecasting over eastern China: an operational application of WRF-Chem[J]. Atmos Environ, 153:94-108.

(本文责编:何晓欢)