

南京市秋季细颗粒物及臭氧生成敏感性初探

周亚端, 赵 瑜, 仇丽萍, 毛 攀

(南京大学环境学院, 江苏 南京 210023)

摘要:为考察江苏省南部地区重点排放源对南京市秋季细颗粒物($PM_{2.5}$)的贡献率及 O_3 生成敏感性,采用强力法针对特定排放源及污染物设置不同的排放情景,利用化学传输模拟系统Models-3/Community Multi-scale Air Quality(CMAQ)分析模拟区域内不同情景下地表 $PM_{2.5}$ 及 O_3 浓度变化。2012年10月,电厂、钢铁和水泥的污染物排放对南京市 $PM_{2.5}$ 浓度的平均贡献率分别为6.0%、25.5%和15.9%,对国控站点的贡献率分别为7.2%、17.7%和16.2%。钢铁对下风向区域的地表 $PM_{2.5}$ 浓度的影响显著高于电厂及水泥部门的排放。从不同情境下模拟 O_3 地表浓度变化结果看出,南京市城区及下风向区域的 O_3 浓度随VOC排放削减降低,随 NO_x 排放削减升高,因而判定南京市秋季 O_3 生成属于VOC控制区。

关键词: CMAQ; $PM_{2.5}$; 臭氧; 敏感性

中图分类号: X511; X513

文献标志码: A

DOI:10.16803/j.cnki.issn.1004-6216.2017.03.014

Sensitivity Analysis of the Formation of Fine Particle and Ozone in Autumn, Nanjing City

Zhou Yaduan, Zhao Yu, Qiu Liping, Mao Pan

(School of Environment, Nanjing University, Nanjing 210023, China)

Abstract: With the aims at analyzing the contribution of key emission sources in the south of Jiangsu Province to $PM_{2.5}$ concentration and the sensitivity of ozone formation in autumn in Nanjing City, brute-force method (BFM) is applied to set different emission scenarios for typical sources and pollutants. Chemical transport model of Models-3/Community Multi-scale Air Quality (CMAQ) is used to simulate the ground concentrations of $PM_{2.5}$ and ozone in different emission scenarios. In October 2012, the average contributions of power plants, iron & steel and cement plants to $PM_{2.5}$ in Nanjing are estimated to be 6.0%, 25.5% and 15.9% respectively. Furthermore, the contributions of the three sectors at air quality monitoring sites in Nanjing are calculated as 7.2%, 17.7% and 16.2%. Emissions from the iron & steel plants have a greater influence on the $PM_{2.5}$ concentrations in the surrounding downwind region. The results from simulating the variation of ground ozone concentrations under different scenarios show that ozone concentrations in the urban areas of Nanjing and the downwind areas reduce with the decrease of VOC emission in the modeling domain, but increase with the decrease of NO_x emission. Therefore, the formation of ozone in autumn in Nanjing is in the VOC-limited region.

Keywords: CMAQ; $PM_{2.5}$; Ozone; Sensitivity

CLC number: X511; X513

自1980年以来,江苏省霾日数总体呈增加趋势,2010~2012年增长速率显著^[1],2012年南京市灰霾总天数达到226 d(数据来源:南京市气象局)。2013年国务院发布《大气污染防治行动计划》,要求到2017年,北京天津河北(简称京津冀)、长江三角洲、珠江三角洲等区域 $PM_{2.5}$ 浓度分别下降25%、20%、15%左右。面对严格的污染控制要求,需要针对特定区域的典型时段,识

别不同环境下的主要污染来源,从而制定更有效的污染控制管理措施。

目前应用较广泛的污染源解析方法主要包括受体模型法、后向轨迹及化学传输模式法等。其中利用化学传输模式识别污染源的基本原理是通过改变输入清单中各类排放源的污染物排放量,分析模拟污染物浓度对排放变化的响应。强力法(Brute Force Method, BFM)是通过设计污染物

收稿日期: 2017-01-25

作者简介: 周亚端(1990-),女,硕士研究生。研究方向:大气污染控制。

排放情景,改变特定污染源排放量,考察模拟区域空气质量的变化,方法较简单。在国内主要用于研究本地和区域的排放源,对本地污染物浓度的影响,通过模拟计算获得排放源对区域内污染物的贡献率^[2-4]。因此,该项研究的目的在于基于大量本地工业污染源资料更新的省级大气污染物排放清单,利用空气质量模型针对区域内PM_{2.5}和O₃生成进行敏感性分析,以南京市为研究重点,探究不同排放源对PM_{2.5}浓度贡献,通过考察NO_x和VOC排放削减时模拟O₃的浓度变化分析其生成主控因素,为江苏省南部地区的PM_{2.5}及O₃污染控制提供初步的科学依据。

1 方法

1.1 模拟区域及时间

采用美国环保署开发的Models-3/Community Multi-scale Air Quality (CMAQ)模拟系统进行江苏省南部地区PM_{2.5}及O₃生成敏感性研究,见图1。

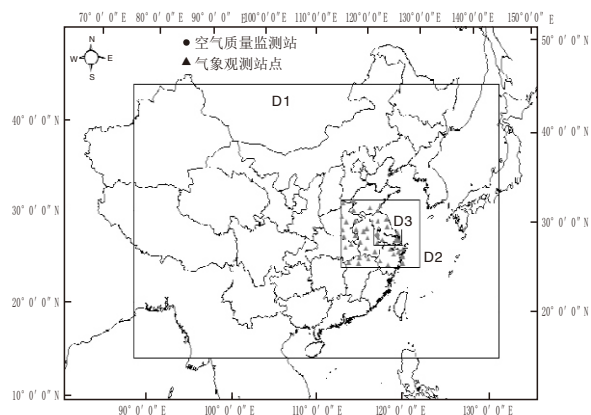


图1 模拟区域及模式验证观测站点分布

采用三层网格嵌套,网格大小分别为27、9和3 km。第一层区域(D1)覆盖了大部分东亚地区,网格数为180×130,第二层区域(D2)主要包括江苏、浙江、上海、安徽及其他省份的部分地区,网格数为118×97。嵌套的第三层区域(D3)网格数为124×70,覆盖江苏省南部的6个城市(南京、常州、镇江、无锡、苏州、南通)和上海市及其周边地区。

模拟时间选择2012年10月1日至10月31日,将10月1日至5日作为“spin-up”时段。输入气象场由中尺度气象预报和资料同化系统

(Weather Research and Forecasting, WRF)提供,采用双向嵌套,地形和地表类型采用美国地质调查局(United States Geological Survey, USGS)的全球数据,以1.0°×1.0°的6h美国国家环境预报中心(National Centers for Environmental Protection, NCEP)再分析数据作为气象模拟的初始场和边界场。

1.2 排放清单

针对图1的模拟区域D1和D2均以多尺度排放清单模型MEIC^[5]为排放输入,而对于模拟区域D3,采用长三角区域排放清单^[6]及更新的江苏排放清单进行模拟研究。江苏省排放清单基于大型工业企业现场调研资料、污染源普查、环境统计和统计年鉴等数据资料建立。通过对不同来源数

据资料的详细调研与校正,建立了2012年江苏省工业企业的排放特征信息数据库,涵盖6750家工业企业的地理经纬度、燃料类型、能源消耗量、污染物末端控制设备、去除效率等参数。该项研究的排放因子主要来源于Zhao et al^[7-11]建立的排放因子库,同时也结合了部分国内新测的本地化排放因子^[12-18]。根据估算结果,2012年江苏省SO₂、NO_x、CO、TSP、PM₁₀、PM_{2.5}、BC、OC、CO₂、NH₃及VOC的排放量分别为114.1、164.2、768.0、260.6、139.4、94.1、5.7、14.0、86 045.8、110.1和174.7万t。

天然源排放为全球天然源排放清单^[19](Model Emissions of Gases and Aerosols from Nature developed under the Monitoring Atmospheric Composition and Climate project, MEGAN-MACC),Cl、HCl和闪电排放NO_x引自全球排放清单活动^[20](Global Emissions Initiative, GEIA)。

1.3 模拟结果验证

1.3.1 气象场 为了验证WRF模拟气象场的准确度,对比了江苏、浙江、安徽、上海及其他地区的地面气象站资料的模拟值与观测值。观测资料来源于美国国家气候数据中心(National Climatic Data Center, NCDC),站点位置可见图1。统计分析参数^[21]包括平均偏差(Bias)、归一化平均偏差(Normalized Mean Bias, NMB)、标

准平均误差 (Normalized Mean Error, NME)、一致性指数 (Index of Agreement, IOA) 和均方根误差 (Root Mean Squared Error, RMSE)。2012年10月1日至10月31日第三层模拟区域内气象站点的风速、风向、温度和相对湿度的模拟值与观测值的对比结果, 见表1。

表1 模拟区域D3内气象因子模拟值与观测值的对比

观测项	评价参数	D3
风速	观测平均值 / $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$	2.70
	模拟平均值 / $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$	3.90
	Bias / $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$	1.20
	RMSE / $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$	1.40
	IOA	0.73
风向	观测平均值/ $^{\circ}$	131.30
	模拟平均值/ $^{\circ}$	135.00
	Bias / $^{\circ}$	3.60
温度	观测平均值/ $^{\circ}\text{C}$	19.00
	模拟平均值/ $^{\circ}\text{C}$	19.10
	Bias / $^{\circ}\text{C}$	0.10
	RMSE / $^{\circ}\text{C}$	1.10
	IOA	0.97
相对湿度	观测平均值/%	66.20
	模拟平均值/%	68.50
	Bias /%	2.30
	RMSE /%	9.30
	IOA	0.90

4项气象参数的差距均属于可接受误差范围, 温度和相对湿度的再现情况较好。风速模拟值大于观测值, 平均偏差为1.2 m/s, RMSE和IOA满足要求。

1.3.2 污染物模拟值与观测值对比 将CMAQ模拟2012年10月 O_3 和 $\text{PM}_{2.5}$ 小时浓度与南京市9个国控站点的观测资料进行对比统计。结果表明, 模拟与观测 O_3 和 $\text{PM}_{2.5}$ 的NMB分别为-24.98%、-43.64%, NME分别为44.29%和51.81%, 误差均在可接受范围。但二者均出现不同程度的低估, 这可能是由于WRF模拟的风速(平均值3.9 m/s)高于实际观测值(平均值2.7 m/s), 加剧了大气环境的水平输送和垂直扩散过程。排放清单中未包括扬尘源的排放, 也可能导致 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度被低估^[21-22]。而化学传输模式在二次污染上机理的缺陷, 例如模式中对硫酸盐、铵盐的转化和二次有机气溶胶的生成的处理较简单等, 也可能造成 $\text{PM}_{2.5}$ 模拟值低

于观测值^[23-24]。

2 $\text{PM}_{2.5}$ 敏感性分析

该项研究采用强力法, 设定4种排放情景方案, 分别针对区域内电厂、钢铁和水泥的排放进行敏感性研究, 具体见表2。

表2 强力法分析 $\text{PM}_{2.5}$ 敏感性排放情景

情景	电厂	钢铁	水泥	其他工业	交通	民用
B	On	On	On	On	On	On
S1	Off	On	On	On	On	On
S2	On	Off	On	On	On	On
S3	On	On	Off	On	On	On

其中, 方案B为基准情景, 即模拟时考虑D3内所有人为源大气污染物的排放; 方案S1、S2、S3分别为电厂、钢铁、水泥零排放情景, 即分别将D3内电力、钢铁、水泥行业所有污染物的排放均设为零, 其他排放设置及模型设置与基准情景B相同, 探究这三类重点排放源对 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度的影响, 考察其对模拟区域内 $\text{PM}_{2.5}$ 生成的贡献率, 计算公式如(1)。

$$\text{Contri}_i = \frac{C_B - C_{s,i}}{C_B} \times 100\% \quad (1)$$

式中, Contri 为 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度贡献率, %; C_B 为基准情景下 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度值, $\mu\text{g}/\text{m}^3$; i 为不同的排放源; C_s 为案例情景下 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度值, $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 。

模拟获得的各类排放源对 $\text{PM}_{2.5}$ 的绝对浓度贡献, 为基准情景B的模拟 $\text{PM}_{2.5}$ 与方案S1、S2和S3下模拟 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度的差值。电厂、钢铁和水泥对 $\text{PM}_{2.5}$ 的最大浓度增量分别为10.4、71.8和24.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 对南京市城区的平均浓度增量分别为2.5、10.6和6.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 分别占城区 $\text{PM}_{2.5}$ 平均浓度(41.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)的6.0%、25.5%和15.9%。对于电厂, 虽然其排放的 $\text{PM}_{2.5}$ 、 SO_2 、 NO_x 分别占其总量的4.1%、37.5%和41.4%, 但是根据环境统计和污染源普查数据, 江苏省年煤炭燃烧量超过100万t的电厂排放口高度均在100~200 m之间, 主要位于高度设置中垂直高度的第三层, 所以电厂排放污染物对地表 $\text{PM}_{2.5}$ 的贡献率较低。当置零区域内所有钢铁行业企业的排放时, 地表 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度明显下降, 其对 $\text{PM}_{2.5}$ 平均浓度的贡献明显高于电厂和

水泥。

南京市9个国控站点的基准情景 $PM_{2.5}$ 平均浓度及不同排放源的贡献率,见图2。电厂对所有站点的平均贡献率为7.2%。由于国控站点均集中在城区或城郊,空间位置较接近,估算的各类排放源对各站点的 $PM_{2.5}$ 贡献率较相近。

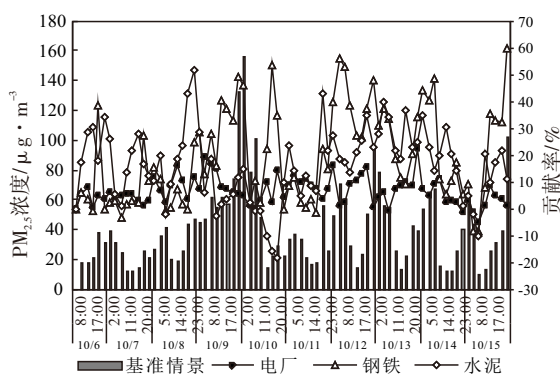


图2 情景B模拟 $PM_{2.5}$ 浓度及电厂、钢铁、水泥的 $PM_{2.5}$ 贡献

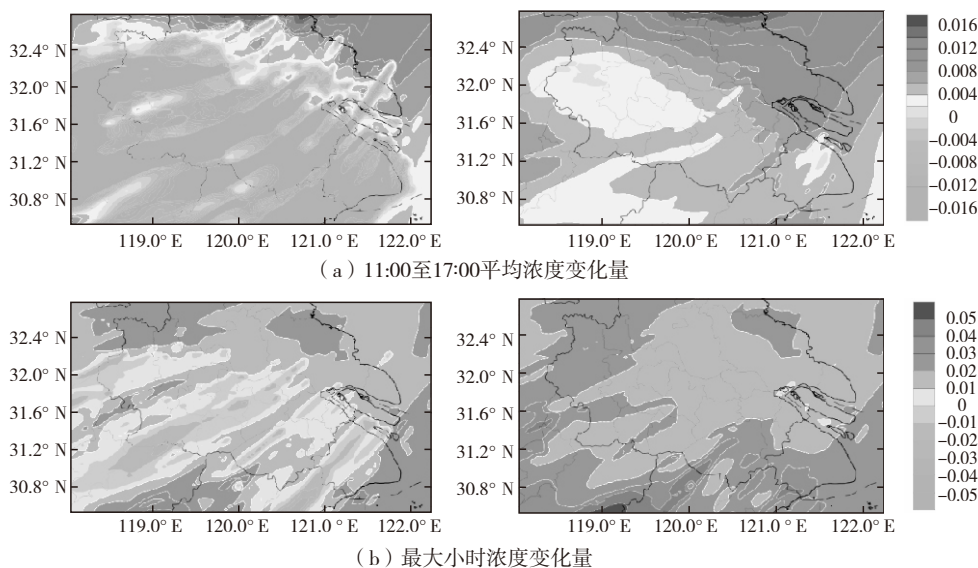
由图2可知,在10月10日20时和10月15日8时前后,水泥的 $PM_{2.5}$ 贡献率出现较大负值,即置零水泥排放后站点模拟的小时平均 $PM_{2.5}$ 浓度高于基准情景,且主要出现在城区站点(玄武湖、迈皋桥、中华门、瑞金路和草场门站)。以山西路为例,10日20时基准情景的 $PM_{2.5}$ 模拟值为 $20.9 \mu g/m^3$,而在S3下 $PM_{2.5}$ 为 $28.3 \mu g/m^3$,升高 $7.4 \mu g/m^3$ 。对比两种情境模拟SNA浓度发现,当水泥排放置零时,硫酸根离子(SO_4^{2-})和铵根离子(NH_4^+)模拟浓度分别为 9.97 和 $3.83 \mu g/m^3$,比基准情景模拟值高 6.07 和

$2.33 \mu g/m^3$,与模拟 $PM_{2.5}$ 升高浓度相近。但由于观测数据有限,无法对模拟的各无机组分浓度进行验证,因此猜想S3模拟 $PM_{2.5}$ 高于基准情景的原因在于关闭水泥排放会使区域内 NO_x 总排放量减少,而由于长江三角洲区域为富氮区域^[25],减少 NO_x 会促进 SO_2 向硫酸盐的转化,导致硫酸盐和铵盐浓度升高。

3 O_3 敏感性分析

一般认为 O_3 的生成机制主要包括两种: NO_x 控制和VOC控制。当 O_3 生成属于 NO_x 控制情景时, O_3 随 NO_x 浓度的升高而升高,对VOC的敏感性较低;当 O_3 生成属于VOC控制(或 NO_x 富余)时, O_3 随VOC浓度的升高而升高,对 NO_x 敏感性较小,当 NO_x 浓度超过一定限值时, O_3 与 NO_x 呈负相关关系^[26]。

采用情景分析法针对2012年10月苏南地区 O_3 生成敏感性进行模拟,根据不同情景下 O_3 地表浓度变化进行初步判定。文章针对 NO_x 和VOC的排放设定3个情景方案:方案B仍为基准情景,考虑模拟区域内所有人为源排放;方案P1和P2分别为VOC控制和 NO_x 控制情景,即将模拟区域D3内的所有人为源VOC和 NO_x 排放量降低50%,其他设置与基准情景B相同。P1和P2排放情境下模拟 O_3 浓度与基准情景下模拟 O_3 浓度的差值,见图3。



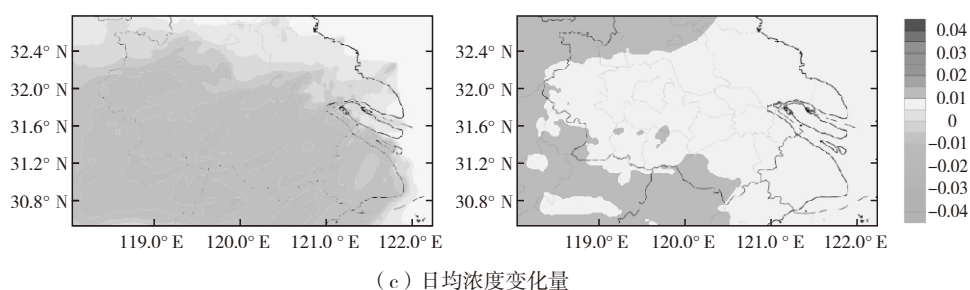


图3 P1、P2与基准情景B模拟O₃地面浓度差值, mg/m³

图3a为下午时段(北京时间11:00~17:00)O₃平均浓度变化情况。当VOC排放降低50%时, O₃浓度出现显著降低, 下风向区域的浓度变化大于上风向; 当NO_x排放降低50%时, 模拟区域内O₃浓度普遍升高, 最大浓度变化为19.4 μg/m³, 在南京和上海主城区的升高幅度较小, 为6 μg/m³左右³。图3b为O₃最大小时浓度的变化, 可以看出, 对于O₃最大小时浓度, 削减VOC排放时, 南京主城区浓度会有10~20 μg/m³的降低, 苏南地区其他城市及上海市中心区域的O₃最大小时浓度均呈现降低的趋势, 最大O₃浓度减小出现在上海市的下风向区域, 达到35.3 μg/m³; 削减NO_x排放时, 南京市大部分区域O₃浓度均有不同程度的升高, 主城区浓度升高幅度为20~30 μg/m³。图3c的变化与4a和4b相同, 由此说明南京市城区的O₃生成属于VOC控制区。由于本研究仅依据两种排放情境下的O₃浓度变化判别其生成敏感性, 并未考虑VOC和NO_x减排幅度递减变化时的情况, 因此针对秋季南京市O₃生成成为VOC控制区的结论可能存在一定不确定性。

4 结论

基于更新的江苏省排放清单, 通过设置不同的排放情景, 利用空气质量模式CMAQ对2012年10月期间南京市的PM_{2.5}和O₃生成进行敏感性分析, 探究模拟区域内重点排放源对南京市的PM_{2.5}模拟浓度贡献率, 初步讨论了大型排放源对区域内PM_{2.5}浓度的影响。电厂、钢铁、水泥对南京市城区PM_{2.5}的平均浓度增量分别为2.5、10.6和6.6 μg/m³, 贡献率分别6.0%、25.5%和

15.9%, 钢铁排放对周边区域的地表PM_{2.5}浓度的影响明显高于电厂和水泥, 对下风向的马鞍山市PM_{2.5}浓度有较大影响。在基准PM_{2.5}浓度较低情况下, 置零水泥厂排放会造成模拟PM_{2.5}浓度升高, 分析原因在于基准浓度较低, 扩散条件好, 降低一次排放对浓度影响很小, 而南京市地区处于富氨条件, 置零水泥排放导致NO_x排放降低, 促进了SO₂向硫酸盐的转化, 使的模拟SNA浓度升高, PM_{2.5}浓度也随之升高。

依据O₃模拟浓度对模拟区域内NO_x和VOC排放削减的响应, 判别生成主控因素。当VOC排放削减50%, 苏南地区城市 and 上海市中心区域的O₃浓度均出现降低, 最大浓度变化53.9 μg/m³出现在上海市中心的下风向区域, 南京市城区和城郊站的O₃均降低; NO_x排放削减50%时, 模拟区域内O₃浓度整体升高, 说明在2012年秋季上海及苏南城市区的O₃生成均为VOC控制。

参考文献

- [1]Wang L T, Hao J M, He K B, et al. A modeling study of coarse particulate matter pollution in Beijing: regional source contributions and control implications for the 2008 summer Olympics[J]. Air & Waste Management Association, 2008, 58:1057-1069.
- [2]尹沙沙. 珠江三角洲人为源氨排放清单及其对颗粒物形成贡献的研究[D]. 广州:华南理工大学, 2011
- [3]Wang L T, Wei Z, Yang J, et al. The 2013 severe haze over southern Hebei, China: model evaluation, source apportionment, and policy implications[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2014, 14:3151-3173.
- [4]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[J]. 环境科学, 2014, 35(9):3247-3255.
- [5]Li M, Zhang Q, Kurokawa J, et al. MIX: a mosaic Asian anthropogenic emission inventory for the MICS-Asia and the HTAP projects[J]. Atmospheric Chemistry and Physics Discussions, 2015, 15(23):34813-34869.
- [6]Zhao Y, Wang S X, Duan L, et al. Primary air pollutant emissions of coal-fired power plants in China: current status and future prediction[J]. Atmospheric Environment, 2008, 42:8442-8452.

(下转第111页)

- 1999, 1(4):403–407.
- [20]Ruban V, López-Sánchez J F, Pardo P, et al. Harmonized protocol and certified reference material for the determination of extractable contents of phosphorus in freshwater sediments—A synthesis of recent works[J]. *Fresenius Journal of Analytical Chemistry*, 2001, 370(2):224–228.
- [21]金相灿,王圣瑞,赵海超,等. 五里湖和贡湖不同粒径沉积物吸附磷实验研究[J]. *环境科学研究*, 2004, 17(Z1):6–10.
- [22]王圣瑞,赵海超,周小宁. 五里湖与贡湖不同粒径沉积物中有机质、总氮和磷形态分布研究[J]. *环境科学研究*, 2005, 17(Z1): 11–14.
- [23]Fu Y Q, Zhou Y Y, Li J Q, et al. Sequential fractionation of reactive phosphorus in the sediment of a shallow eutrophic lake—Donghu Lake, China[J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2000, 12(1):57–62.
- [24]王 琦,姜 霞,金相灿,等. 太湖不同营养水平湖区沉积物磷形态与生物可利用磷的分布及相互关系[J]. *湖泊科学*, 2006, 18(2): 120–126.
- [25]Hupfer M, Gächter R, Giovanoli R. Transformation of phosphorus species in settling seston and during early sediment diagenesis[J]. *Aquatic Sciences*, 1995, 57(4):305–324.
- [26]Khoshmanesh A, Hart B T, Duncan A. Biotic uptake and release of phosphorus by a wetland sediment[J]. *Environmental Technology*, 1999, 20(1): 85–91.
- [27]Khoshmanesh A, Hart B T, Duncan A, et al. Luxury uptake of phosphorus by sediment bacteria[J]. *Water Research*, 2002, 36(3):774–778.
- [28]张晓晶,乌梁素. 海沉积物污染特征及营养盐释放规律试验研究[D]. 呼和浩特:内蒙古农业大学, 2006.
- [29]杨秀珍,秦樊鑫,吴 迪,等. pH对红枫湖表层沉积物吸附与释放磷的影响[J]. *贵州农业科学*, 2013, 41(3): 146–148.
- [30]金相灿,王圣瑞,庞 燕. 太湖沉积物磷形态及pH值对磷释放的影响[J]. *中国环境科学*, 2004, 24(6): 707–711.
- [31]高 丽,杨 浩,周健民,等. 滇池沉积物磷的释放以及不同形态磷的贡献[J]. *农业环境科学学报*, 2004, 23(4):731–734.
- [32]Gomez E, Durillon C, Rofes G, et al. Phosphate adsorption and release from sediments of brackish lagoons: pH, O₂, and loading influence[J]. *Water Research*, 1999, 33(10):2437–2447.

(上接第84页)

- [7]Fu X, Wang S X, Zhao B, et al. Emission inventory of primary pollutants and chemical speciation in 2010 for the Yangtze River Delta region, China[J]. *Atmospheric Environment*, 2013, 70:39–50.
- [8]Zhao Y, Nielsen C P, Lei Y, et al. Quantifying the uncertainties of a bottom-up emission inventory of anthropogenic atmospheric pollutants in China[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2011, 11:2295–2308.
- [9]Zhao Y, Nielsen C P, McElroy M B, et al. CO emissions in China: uncertainties and implications of improved energy efficiency and emission control[J]. *Atmospheric Environment*, 2012, 49:103–113.
- [10]Zhao Y, Nielsen C P, McElroy M B. China's CO₂ emissions estimated from the bottom up: Recent trends, spatial distributions, and quantification of uncertainties[J]. *Atmospheric Environment*, 2012, 59:214–223.
- [11]Zhao Y, Zhang J, Nielsen C P. The effects of recent control policies on trends in emissions of anthropogenic atmospheric pollutants and CO₂ in China[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2013, 13:487–508.
- [12]叶斯琪,郑君瑜,潘月云,等. 广东省船舶排放源清单及时空分布特征研究[J]. *环境科学报*, 2014, 34(3):537–547.
- [13]张礼俊,郑君瑜,尹沙沙,等. 珠江三角洲非道路移动源排放清单开发[J]. *环境科学*, 2010, 31(4): 886–891.
- [14]Fu M L, Ge Y S, Tan J W, et al. Characteristics of typical non-road machinery emissions in China by using portable emission measurement system[J]. *Science of the Total Environment*, 2012, 437:255–261.
- [15]董文焯,邢 佳,王书肖. 1994–2006年中国人为源大气氨排放时空分布研究[J]. *环境科学*, 2010, 31(7):1457–1463.
- [16]董艳强,陈长虹,黄 成,等. 长江三角洲地区人为源氨排放清单及分布特征[J]. *环境科学学报*, 2009, 29(8):1611–1617.
- [17]魏 巍. 中国人为源挥发性有机化合物的排放现状及未来趋势[D]. 北京:清华大学, 2009.
- [18]祁 梦. 长三角地区秸秆开放燃烧大气污染物排放定量表征[D]. 南京:南京大学, 2014.
- [19]Sindelarova K, Granier C, Bouarar I, et al. Global dataset of biogenic VOC emissions calculated by the MEGAN model over the last 30 years[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 2014, 14:10725–10788.
- [20]Price C, Penner J, Prather M, et al. NO_x from lightning: 1. Global distribution based on lightning physics[J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 1997, 102 (D5):5929–5941.
- [21]Fu X, Wang S X, Cheng Z, et al. Source, transport and impacts of a heavy dust event in the Yangtze River Delta, China, in 2011[J]. *Atmospheric Chemistry Physics*, 2014, 14:1239–1254.
- [22]Huang K, Zhuang G S, Lin Y, et al. Typical types and formation mechanisms of haze in an Eastern Asia megacity, Shanghai[J]. *Atmospheric Chemistry Physics*, 2012, 12:105–124.
- [23]Wang K, Zhang Y, Jang C J, et al. Modeling study of intercontinental air pollution transport over the trans-pacific region in 2001 using the community multiscale air quality (CMAQ) modeling system[J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2009, 114, D04307.
- [24]Zhang Y and Carmichael G R. The role of mineral aerosol in tropospheric chemistry in East Asia—a model study[J]. *Journal of Application Meteorology*, 1999, 38:353–366.
- [25]Wang S X, Xing J, Jang C J, et al. Impact assessment of ammonia emissions on inorganic aerosols in east China using response surface modeling technique[J]. *Environmental Science and Technology*, 2011, 45:9293–9300.
- [26]Xing J, Wang S X, Jang C J, et al. Nonlinear response of ozone to precursor emission changes in China: a modeling study using response surface methodology[J]. *Atmospheric Chemistry Physics*, 2011, 11:5027–5044.