

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第37卷 第9期

Vol.37 No.9

2016

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

1960~2013年我国霾污染的时空变化 符传博, 唐家翔, 丹利, 何媛 (3237)

太原大气颗粒物中水溶性无机离子质量浓度及粒径分布特征 王璐, 温天雪, 苗红妍, 高文康, 王跃思 (3249)

石家庄秋季一次典型霾污染过程水溶性离子粒径分布特征 刘景云, 刘子锐, 温天雪, 魏俊龙, 黄小娟, 乔宝文, 王莉莉, 杨洋, 徐仲均, 王跃思 (3258)

南京北郊大气颗粒物的粒径分布及其影响因素分析 吴丹, 曹双, 汤莉莉, 夏俊荣, 陆建刚, 刘刚, 杨孟, 李凤英, 盖鑫磊 (3268)

南京北郊黑碳气溶胶污染特征及影响因素分析 肖思晗, 于兴娜, 朱彬, 何稼祺 (3280)

上海崇明地区大气分形态汞污染特征 李舒, 高伟, 王书肖, 张磊, 李智坚, 王龙, 郝吉明 (3290)

三峡库区典型农田系统大气汞浓度及不同自然界面释汞通量 王永敏, 赵铮, 孙涛, 王娅, 薛金平, 张成, 王定勇 (3300)

长白山背景站大气 VOCs 浓度变化特征及来源分析 吴方堃, 孙杰, 余晔, 唐贵谦, 王跃思 (3308)

铅冶炼厂无组织排放源不同颗粒物中铅含量特征 刘大钧, 汪家权 (3315)

祁连山东段降水的水化学特征及离子来源研究 贾文雄, 李宗省 (3322)

三峡库区(重庆—宜昌段)沉积物中钒的污染特征及生态风险评价 郭威, 殷淑华, 徐建新, 徐东昱, 高丽, 郝红, 高博 (3333)

太湖不同富营养化水域磷的分布特征及其环境影响因素 车霏霏, 王大鹏, 甄卓, 颜昌宙, 王灶生 (3340)

太湖表层沉积物中 PPCPs 的时空分布特征及潜在风险 张盼伟, 周怀东, 赵高峰, 李昆, 刘巧娜, 任敏, 赵丹丹, 李东佼 (3348)

岩溶地下河系统中有机氯的分布特征与来源分析 张媚, 孙玉川, 谢正兰, 余琴, 徐昕 (3356)

西南典型岩溶地下河系统水文地球化学特征对比:以重庆市青木关、老龙洞为例 詹兆君, 陈峰, 杨平恒, 任娟, 张海月, 刘黛薇, 蓝家程, 张宇 (3365)

不同水源补给情形的溪流沟渠沉积物磷形态及释放风险分析 李如忠, 秦如彬, 黄青飞, 耿若楠 (3375)

滇池柱状沉积物磷形态垂向变化及对释放的贡献 李乐, 王圣瑞, 焦立新, 余佑金, 丁帅, 王跃杰 (3384)

荧光光谱结合平行因子分析研究夏季周村水库溶解性有机物的分布与来源 黄廷林, 方开凯, 张春华, 周石磊, 曾明正, 刘飞, 夏超, 丛海兵 (3394)

富营养化水体中黑水团的吸收及反射特性分析 张思敏, 李云梅, 王桥, 朱利, 王旭东, 温爽 (3402)

基于微生物生物完整性指数的地下水生态系统健康评价:以包钢稀土尾矿库周边地下水生态系统为例 安新丽, 陈廷廷, 赵晗, 张又弛, 侯艳伟, 蔡超 (3413)

于桥水库水源地水体沉积物重金属空间分异与景观格局的关系 王祖伟, 王玮玮, 侯迎迎, 包姗姗, 王子璐, 王倩倩 (3423)

人工湿地构型对水产养殖废水含氮污染物和抗生素去除影响 刘佳, 易乃康, 熊永娇, 黄翔峰 (3430)

共生细菌对盐生小球藻富集和转化硝酸盐的影响 许平平, 刘聪, 王亚, 郑燕恒, 张春华, 葛滢 (3438)

模拟水体硝态氮对黄菖蒲生长及其氮吸收的影响 王兵, 温春翔, 肖波 (3447)

对羟基联苯在黄河兰州段底泥上的吸附行为 周琦, 蒋煜峰, 孙航, 慕仲锋, 张振国, 展惠英 (3453)

多级 A/O 工艺强化处理城市污水的效果研究 尹子华, 盛晓琳, 刘锐, 陈吕军, 张永明 (3460)

某微污染源自来水厂的纳滤深度处理效果研究 吴玉超, 陈吕军, 兰亚琼, 刘锐 (3466)

Fe⁰-PRB 去除Cr(VI)反应动力学及影响机制 卢欣, 李森, 唐翠梅, 辛佳, 林朋飞, 刘翔 (3473)

EDTA-nSiO₂ 纳米颗粒对 Cd²⁺ 的吸附 蒋顺成, 秦睿, 李满林, 李荣华, 张增强, Amjad Ali, 梁文 (3480)

硝酸-PPy/AQDS 联合处理改善阳极性能的分析表征 沈伟航, 朱能武, 尹富华, 吴平霄, 张彦鸿 (3488)

人工合成水铁矿对含磷废水的吸附性能 崔蒙蒙, 王殿升, 黄天寅, 刘锋 (3498)

生物沸石人工湿地处理分散养猪冲洗水性能 牟锐, 沈志强, 周岳溪, 陈学民, 伏小勇, 谭蕾蕾, 瞿畏 (3508)

甘油基混合培养物合成 PHA 及其与 OUR 的关系 刘东, 张小婷, 张代钧, 曾善文, 卢培利 (3518)

光催化体系中噻虫胺降解动力学及机制 胡倩, 阳海, 石妮, 胡乐天, 易兵 (3524)

宁夏干旱地区工业区对农田土壤重金属累积的影响 王美娥, 彭驰, 陈卫平 (3532)

北方某大型钢铁企业表层土壤中多环芳烃污染特征与健康风险评价 董捷, 黄莹, 李永霞, 张厚勇, 高甫威 (3540)

红壤剖面重金属分布特征及对有机碳响应 贾广梅, 马玲玲, 徐殿斗, 成杭新, 周国华, 杨国胜, 罗敏, 路雨楠, 刘志明 (3547)

外源锌刺激水稻对土壤镉的累积效应 辜娇峰, 杨文骏, 周航, 张平, 彭佩钦, 廖柏寒 (3554)

改性生物炭材料对稻田原状和外源镉污染土钝化效应 杨兰, 李冰, 王昌全, 刘倾城, 张庆沛, 肖瑞, 李一丁 (3562)

生物淋滤联合类 Fenton 反应去除污染土壤中重金属的效果 周普雄, 严颀, 余震, 王跃强, 朱艺, 周顺桂 (3575)

长期石油污染对盐碱化土壤中微生物群落分子生态网络的影响 赵慧慧, 肖娴, 裴孟, 赵远, 梁玉婷 (3582)

应用 PLFA 法分析氮沉降对缙云山马尾松林土壤微生物群落结构的影响 曾清苹, 何丙辉 (3590)

三江平原不同退化阶段小叶章湿地土壤真菌群落结构组成变化 隋心, 张荣涛, 许楠, 刘赢男, 柴春荣, 王继丰, 付晓玲, 钟海秀, 倪红伟 (3598)

外源氮、硫添加对闽江河口湿地 CH₄、CO₂ 排放的短期影响 胡敏杰, 任鹏, 黄佳芳, 仝川 (3606)

模拟条件下侵蚀-沉积部位土壤 CO₂ 通量变化及其影响因素 杜兰兰, 王志齐, 王蕊, 李如剑, 吴得峰, 赵慢, 孙棋棋, 高鑫, 郭胜利 (3616)

太原晋祠地区果园土壤呼吸的年际变化及其温度敏感性 严俊霞, 郝忠, 荆雪雷, 李洪建 (3625)

生物炭对壤土土壤温室气体及土壤理化性质的影响 王月玲, 耿增超, 王强, 尚杰, 曹胜磊, 周凤, 李鑫, 刘福义, 张萍 (3634)

氮沉降对臭氧胁迫下青杨光合特性和生物量的影响 辛月, 尚博, 陈兴玲, 冯兆忠 (3642)

冠层辐射温度对冬小麦生态系统碳通量的影响 李洪建, 杨艳, 严俊霞 (3650)

堆肥过程水溶性有机物组成和结构演化研究 李丹, 何小松, 席北斗, 高如泰, 张慧, 黄彩红, 党秋玲 (3660)

酸碱改性活性炭及其对甲苯吸附的影响 刘寒冰, 杨兵, 薛南冬 (3670)

《环境科学》征订启事 (3517) 《环境科学》征稿简则 (3561) 信息 (3289, 3321, 3422)

1960 ~ 2013 年我国霾污染的时空变化

符传博^{1, 2, 3}, 唐家翔^{1, 3}, 丹利², 何媛^{1, 3}

(1. 海南省气象台, 海口 570203; 2. 中国科学院大气物理研究所东亚区域气候-环境重点实验室, 北京 100029; 3. 海南省南海气象防灾减灾重点实验室, 海口 570203)

摘要: 利用近 54 年(1960 ~ 2013 年)我国霾日以及一些相关气象要素的观测资料, 采用气候倾向估计、聚类分析、累积距平 and 突变检验等多种方法, 分析了我国霾日数变化特征. 结果表明: 我国的霾污染主要发生在中东部和南部, 尤以北京、山西中部和南部、河南局部地区、长江三角洲和珠江三角洲等地最为严重, 我国西部和东北部地区相对较少. 霾日发生的频率总体呈增加的趋势, 而且与能源消耗总量有很好的正相关关系. 我国霾日数的增加除了依赖于污染源排放加剧外, 不利的气候条件加剧了霾天气的发生. 近 54 年降水日数、平均风速、日照时数和相对湿度与霾日数的相关系数分别为 -0.653 、 -0.635 、 -0.462 和 -0.699 , 远远超出了 99.9% 的信度检验标准. 聚类分析表明, 上升极显著、上升显著和上升明显的站点年平均霾日数近年来均有加速上升的趋势, 其累积距平的变化趋势为下降-平缓-上升型. 轻微上升站点上升时期为 20 世纪 60 年代至 70 年代末与 2000 年之后, 累积距平为多波动型. 轻微下降与下降明显的站点快速上升时期为 60 年代至 70 年代末, 随后均有不同程度的下降, 累积距平呈上升-平缓-下降型, 且在 1992 ~ 1993 年间霾日数发生了由多到少的突变.

关键词: 霾; 气候倾向估计; 聚类分析; 累积距平; Mann-Kendall 突变检验

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2016)09-3237-12 DOI: 10.13227/j.hjxx.2016.09.001

Temporal and Spatial Variation of Haze Pollution over China from 1960 to 2013

FU Chuan-bo^{1, 2, 3}, TANG Jia-xiang^{1, 3}, DAN Li², HE Yuan^{1, 3}

(1. Hainan Meteorological Observatory, Haikou 570203, China; 2. Key Laboratory of Regional Climate-Environment Research for Temperate East Asia, Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029, China; 3. Key Laboratory of South China Sea Meteorological Disaster Prevention and Mitigation of Hainan Province, Haikou 570203, China)

Abstract: Based on haze observation and related meteorological data from the surface weather stations in China during 1960-2013, we analyzed the variation of haze days and its relationship to meteorological elements using climatic linear-trend estimation, cluster analysis, cumulative departure and the Mann-Kendall test. The results showed that the haze events occurred mainly in mid-eastern and southern China, especially in Beijing, central and southern areas of Shanxi, Henan, the Yangtze River Delta and Pearl River Delta areas. At the same time, the haze days were less frequently observed in western and northeastern China. The occurrence of haze days was increasing in the past 54 years, which was consistent with the total energy consumption in China. While the emission of air pollutant could be an important factor of haze increase, the adverse weather conditions also played a role. The correlation coefficients of precipitation, average wind speed, sunshine duration and relative humidity with haze days were -0.653 , -0.635 , -0.462 and -0.699 , respectively, which all exceeded the 99.9% significance. Cluster analysis showed that haze days of stations with very significant increase, significant increase and obvious increase have accelerated in recent years, and the trend of cumulative variance type was fall-flat-rise. Haze days of slight rise station increased from 1960s to the late 1970s and after 2000, of which cumulative variance type was multi wobbled. Moreover, Haze days of slight fall and obvious fall stations increased from 1960s to 1970s, and their cumulative variance types were rise-gently-fall. Furthermore, haze days showed mutation from more to less during 1992 to 1993.

Key words: haze; climatic linear-trend estimation; cluster analysis; cumulative variance; Mann-Kendall test

霾是大量极细微的尘粒均匀地飘浮在空中, 使大气能见度小于 10 km 的空气普遍浑浊现象^[1]. 近些年来, 随着城市化进程和经济迅速发展, 大气污染物浓度增加, 我国各地频频发生霾污染天气, 使得报纸、电视、网络等媒体频现各种各样的霾天气报道. 特别是 2013 年 1 月我国中东部所遭遇的雾-霾天气, 其影响范围之广、持续时间之久都尤为罕见^[2]. 随着霾越来越引起人们的关注, 针对霾污染的研究也多了起来^[3, 4]. 我国学者系统研究霾污染主要从本世纪初开始^[5], 从霾的观测识别^[6, 7]到时空分布^[8]、气候特

征^[9-12]、成因分析^[13-15]以及数值模拟^[16, 17]、气溶胶特性^[18-22]等方面开展了大量研究工作. 其中关于我国霾的长期变化基本上都得到一致的结果, 即我国霾日数呈现明显的上升趋势, 相伴随的大气能见度呈下

收稿日期: 2016-03-06; 修订日期: 2016-04-27

基金项目: 海南省自然科学基金项目(20154182); 中国气象局预报员专项(CMAYBY2015-060); 海南省气象局科研项目(HNQXMS201402); 海南省气象局科技创新项目(HN2013MS02)

作者简介: 符传博(1985 ~), 男, 硕士, 工程师, 主要研究方向为大气环境与气候模拟、环境气象, E-mail: hnfuchuanbo@163.com

降趋势. 特别是在经济较为发达、人口密度大的京津冀地区、四川盆地、长三角和珠三角地区等,霾日数上升更为显著^[23-25].

造成我国霾日数增多的原因除了与经济规模的迅速扩大和城市化进程的加快导致气溶胶排放物的增加有密切关系外,人为活动导致的气候变暖所引起的大气环流条件(包括风场、层结条件、水汽、温度以及降水等条件)变化很可能也是这种变化发生的重要条件之一^[26]. 本研究在全面分析我国霾日数的长期变化趋势与区域分布特征基础上,结合聚类分析、累积距平和 Mann-Kendall 突变检验等方法,揭示不同类型站点霾日数的长期变化趋势特征,同时研究关键气候因子对这种变化的作用,这对深入了解我国霾日数长期变化与成因有重要的意义.

1 材料与方法

1.1 资料

本研究所用的资料是由国家气象信息中心最新整编的 1960~2013 年全国 756 个国家基准站地面观测资料,包括霾日数、相对湿度、逐日降水量、天气现象、最大风速和年平均风速等资料,目前是我国最完整的地面气象观测资料,而且均通过了国家气象中心气象资料室的质量检验. 为了避免缺测数据引起的误差,对站点的选取采用了比较严格的标准:任意一年的数据当中缺测值超过 5% 的站点都被剔除. 同时兼顾到由于迁站会导致数据的非均一性问题,本文最后共选取了我国 543 个站点共 54 年(1960~2013 年)的资料(地理分布见图 1). 此外还用到了 MODIS 卫星反演的我国地区 AOD 资料和 OMI 卫星反演的对流层 NO₂ 柱浓度(TroNO₂)资料^[27],分辨率分别为 1°(纬度)×1°(经度)和 0.25°(纬度)×0.25°(经度),以及中国统计局给出的全

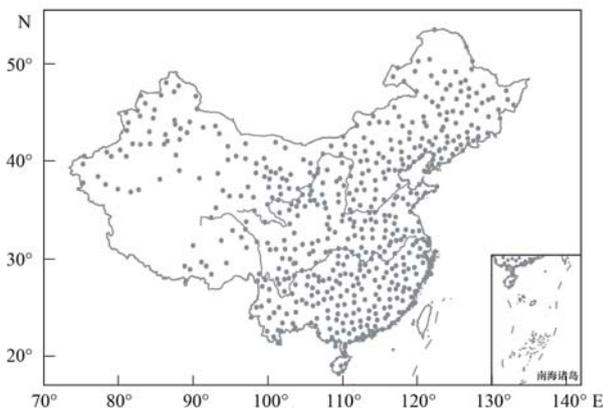


图 1 中国地区 543 个气象观测站分布

Fig. 1 Locations of 543 weather stations over China

国能源消耗总量等资料^[28].

1.2 研究方法

1.2.1 气候倾向率

气候倾向率采用公式(1)进行计算. 用 y 表示样本量为 n 的某一要素,用 x 表示 y 所对应的时间样本序列号,建立 x 与 y 之间的一元线性回归方程,见公式(1):

$$y_i = a + bx_i \quad (i = 1, 2, \dots, n) \quad (1)$$

式中, a 为回归常数, b 为回归系数,其值为上升或下降的速率,即表示上升或下降的倾向度^[29], $b > 0$ 说明随时间 x 增加 y 呈上升趋势, $b < 0$ 说明随时间 x 增加 y 呈下降趋势. 其显著性通过 t 检验进行判断,其检验统计量为:

$$T_c = \frac{r \sqrt{n-2}}{\sqrt{1-r^2}} \quad (2)$$

式中, r 为相关系数. 统计量 T_c 遵从自由度 $(n-2)$ 的 t 分布. 给定显著性水平 α ,若 $|T_c| > T_\alpha$,则拒绝原假设 H_0 ,认为 y 的变化趋势是显著的. 为便于分析,将系数 b 放大 10 倍,即为气候倾向率,表示年平均霾日数每 10 a 增(减)的幅度.

1.2.2 气候趋势系数

公式(1)中带量纲的气候倾向率可直观地反映年平均霾日数趋势增(减)量的变化速率,但不能反映其增(减)相对的幅度. 本研究利用前人的研究方法^[30,31],计算了气候趋势系数 r_{xt} . 该趋势系数定义为 n 个时刻(年)的要素序列与自然数列 1, 2, …, n 的相关系数:

$$r_{xt} = \frac{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})(i - \bar{i})}{\sqrt{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2 \sum_{i=1}^n (i - \bar{i})^2}} \quad (3)$$

式中, n 为年数. x_i 是第 i 年要素值,为其样均值. $\bar{i} = (n+1)/2$. 显然,这个值为正(负)时,表示该要素在所计算的 n 年内有限性增(降)的趋势. $r_{xt} \sqrt{n-2} / \sqrt{1-r_{xt}^2}$ 符合自由度 $n-2$ 的 t 分布,从而检验这种气候趋势是否有物理意义,还是一种随机振动.

1.2.3 累积距平分析

累积距平是一种由曲线直观判断气候变化趋势的方法. 对于气候要素序列,其某一时刻 t 的累积距平表示为:

$$x = \sum_{i=1}^t (x_i - \bar{x}) \quad (t = 1, 2, \dots, n) \quad (4)$$

$$\bar{x} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n x_i \quad (5)$$

将 n 个时刻的累积距平值全部算出, 绘出累积距平曲线进行趋势分析.

1.2.4 趋势突变检验方法

检验气候突变有多种方法, 本研究采用 Mann-Kendall 法对近 54 年不同类型年平均霾日数长时间序列进行突变检验. Mann-Kendall 非参数突变检验方法不需要样本遵从一定的分布, 也不受少数异样值的干扰, 具有检验范围宽、定量化程度高、人为性小等优点, 是目前突变性检验方法中理论基础较强且应用较多的一种^[32,33]. 计算方法详见文献[29]. 在正序列曲线超过临界值信度线的前提下, 若正序列和反序列两个统计量序列有明显的交叉点, 且位于信度线之间, 则表明该交叉点为突变点, 且统计上显著.

该方法以气候平稳为前提, 并且这序列是随机独立的, 其概率分布等同. 在原假设 H_0 : 气候序列没有变化的情况下, 设此气候序列 (x_1, x_2, \dots, x_n) , m_i 表示第 i 个样本 $x_i > x_j$ ($1 \leq j \leq i$) 的累计数, 定义一统计量:

$$d_k = \sum_{i=1}^k m_i \quad (2 \leq k \leq N) \quad (6)$$

在原序列随机独立的假设下, d_k 的均值、方差分别为:

$$\begin{cases} E[d_k] = k(k-1)/4 \\ \text{var}[d_k] = k(k-1)(2k+5)/72 \end{cases} \quad (2 \leq k \leq N) \quad (7)$$

将 d_k 标准化:

$$u(d_k) = (d_k - E[d_k]) / \sqrt{\text{var}[d_k]} \quad (8)$$

这里 $u(d_k)$ 为标准分布, 其概率 $a_1 = \text{prob}(|u| > |u(d_k)|)$ 可以通过计算或查表获得. 给定一显著性水平 a_0 , 当 $a_1 > a_0$ 时, 接受原假设 H_0 ; 当 $a_1 < a_0$ 时, 则拒绝原假设 H_0 , 它表示此序列将存在一个强的增长或减少趋势, 所有 $u(d_k)$ ($1 \leq k \leq N$) 将组成一条曲线 UF, 通过信度检验可知其是否有变化趋势. 把此方法引用到反序列中, \bar{m}_i 表示第 i 个样本 x_i 大于 x_j ($i \leq j \leq N$) 的累计数, 当 $i' = N + 1 - i$ 时, 如果 $\bar{m}_i = m_i$, 则反序列的 $\bar{u}(d_i)$ 由下式给出:

$$\begin{cases} \bar{u}(d_i) = -u(d_{i'}) \\ i' = N + 1 - i \end{cases} \quad (i = 1, 2, \dots, N) \quad (9)$$

$\bar{u}(d_i)$ 将组成一条曲线 UB, 当曲线 UF 超过信度线, 即表示存在明显的变化趋势, 如果曲线 UF 和 UB 的交叉点位于信度曲线之间, 这点便是突变的开始点.

2 结果与分析

2.1 我国地区霾日数的时空分布特征

霾污染分布受工业化和城市化导致的气溶胶高排放的影响. 图 2 给出了我国地区 1960~2013 年年平均霾日数分布. 从中可知, 我国的霾污染主要分布在 100°E 以东、 42°N 以南地区, 其中华北的中部和西部, 西南的南部, 华中大部, 华东大部, 华南西部和南部, 四川盆地等地区年平均霾日数大于等于 10 d, 是我国霾天气的多发区. 结合图 3 和图 4 可知, 这些区域 AOD 和 TroNO_2 也有较高的分布, 如华北中部和西部, 华中大部、四川盆地, 长三角和珠三角地区, AOD 值可达 0.7 以上. TroNO_2 也可达 $80 \times 10^{15} \text{ molec} \cdot \text{cm}^{-2}$, 特别是华北西部, 长三角和珠三角地区, 局地可达 $160 \times 10^{15} \text{ molec} \cdot \text{cm}^{-2}$ 以上. 这些区域由于人口较为集中, 人类活动频繁, 为霾的形成提供了有利的人为污染源排放条件, 导致霾日数分布较高, 霾污染较为严重^[4].

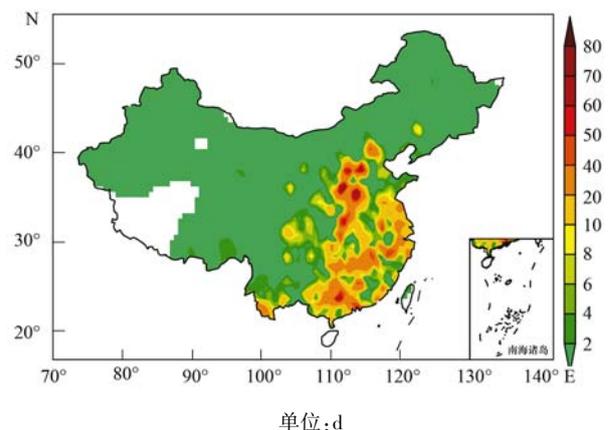


图 2 我国地区 1960~2013 年年均霾日数分布

Fig. 2 Spatial distribution of mean annual haze days in China during 1960 to 2013

年平均霾日数大于等于 20 d 的高频区主要集中在人口比较密集的大城市和煤矿基地, 如北京地区、山西中部和南部、河南局部地区、长三角和珠三角等地, 在空间上形成多个离散的高发中心, 其中河南的新乡高达 78.9 d (表 1), 为全国最高值, 其次是山西的临汾, 为 74.7 d, 此外, 像北京、广州、深圳、合肥、郑州、武汉等大城市的霾日数也比较多, 分别为 31.3、44.5、55.9、51.8、51.5 和 17.3 d. 而在中国西部、东北大部及内蒙古地区霾出现相对较少, 大多数站点多年平均年霾日数不足一天. 西藏、海南岛基本无霾日. 总体而言, 我国中东部和南部霾天气较多, 西部和东北部地区相对较少. 另

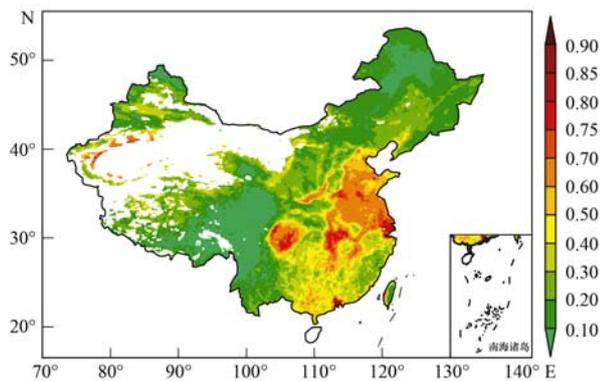


图3 我国地区 2001~2013 年年平均 AOD 分布

Fig. 3 Spatial distribution of mean annual AOD in China during 2001 to 2013

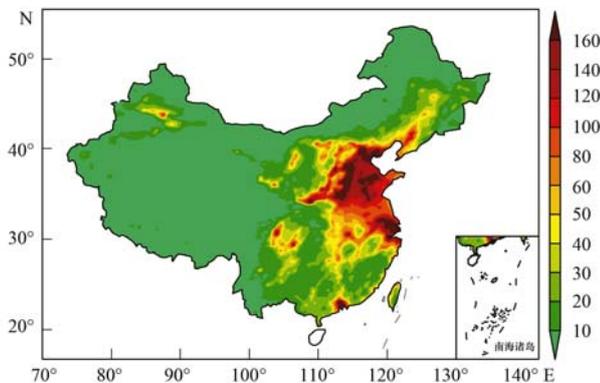


图4 我国地区 2004~2013 年对流层 NO₂ 柱浓度分布

Fig. 4 Spatial distribution of mean annual TroNO₂ in China during 2004 to 2013

表1 我国 1960~2013 年年平均霾日数前 10 位站点及部分大城市的年霾日数

Table 1 Top 10 sites of the average number of haze days in China and annual haze days in some major cities

站名	站号	省份	年平均霾日数/d	排名
新乡	53986	河南	78.9	1
临汾	53868	山西	74.7	2
石家庄	53698	河北	66.3	3
梧州	59265	广西	65.6	4
太原	53772	山西	58.8	5
深圳	59493	广东	55.9	6
玉山	58634	江西	52.5	7
合肥	58321	安徽	51.8	8
老河口	57265	湖北	51.6	9
郑州	57083	河南	51.5	10
南昌	58606	江西	45.1	15
广州	59287	广东	44.5	16
北京	54511	北京	31.3	28
武汉	57494	湖北	17.3	71

外在同一区域内,大中城市的霾天气较小城市偏多。

图5是1960~2013年全国平均年霾日数和能

源消耗总量的时间演变曲线。从中可以看到,霾日数近54年来总体特征是呈不断增加的趋势。在20世纪60年代霾日数基本在4 d以下,而到2010年以后则上升到了12 d以上,特别是2013年为25.2 d,几乎增长了6倍。这一趋势与丁一汇等^[25]的研究结果一致。另一个变化特征是,在总体上升过程中,可以划分为3个阶段,即第一阶段1960~1979年缓慢上升阶段、第二阶段1980~2000年平稳变化阶段、第三阶段2001~2013年加剧上升阶段,上升率分别为2.46、-0.05和9.89 d·(10 a)⁻¹,这一变化特征与我国能源消耗总量时间演变呈显著相关(信度标准达95%以上)。值得探讨的是1979年前(第一阶段)霾日数与能源消耗总量两者同步线性上升;但是到了1980~2000年(第二阶段)能源消耗总量稳定上升,而年平均霾日数却处于年际弱波动的平缓变化阶段;2000~2013年(第三阶段)能源消耗总量加剧上升阶段,霾日数虽有年际波动但两者均呈同步加剧上升趋势。上述结果说明霾日数的变化特征除了主要受能源消耗的程度控制外,也可能存在气象条件的显著影响,对此还需要进一步研究。

2.2 我国霾日数的季节变化特征

图6是我国1960~2013年各个季节霾日数的空间分布。从中可知,从年平均发生次数来看,夏季是霾日数最少的季节,而冬季是霾天气发生最多的季节,春秋季节次之。从空间分布来看,冬春季发生范围较广,而夏秋季范围相对较小,其中夏季最小。这与我国季节的气候特点存在明显的相关性。冬季我国大部分时间地面受大陆高压控制,天气晴好,降水较少,空气中的气溶胶粒子容易聚集增多,在大气层结稳定的条件下,容易形成霾天气。而夏季是一年中降水最多的季节,雨水的冲刷带走了大量的气溶胶粒子,另外夏季不稳定天气发生较多,有利于粒子的扩散,抑制霾污染的发生。所以总体而言,冬季霾天气相对较多,而夏季则偏少。

春季,霾日数出现较多的地区主要是北京地区,山西中南部、河南中部,云南南部,珠三角和长三角等地,为5~10 d,局部可达20 d以上。比较有意思的是云南南部地区霾日数只有春季多发,而其余三季少发。夏季,大部分地区霾日数不足2 d,只有山西中南部,北京等地局部有5~10 d。秋季,长江以北地区与春季基本一致,但长江以南地区秋季霾日数有明显增多,像江西西北部,广西东北部和广东西部,珠三角地区平均5~10 d,局部地区达20~30 d。

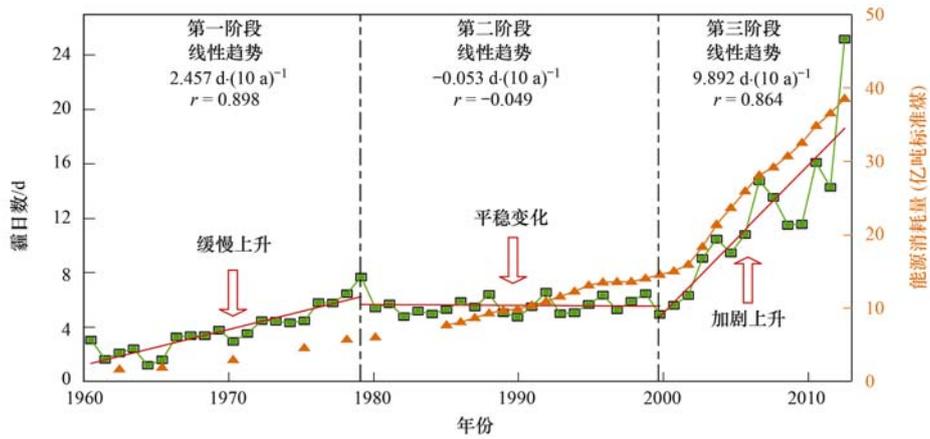


图 5 1960 ~ 2013 年我国霾日数和能源消耗总量的年际变化

Fig. 5 Annual variation of mean annual haze days and energy consumption in China during 1960 to 2013

冬季是霾天气发生最多的季节,北京地区、河北中部、山西中部和南部、河南中部、安徽中部、江苏中部、浙江中北部、江西西部和北部、湖南中部和西部、广西中北部和珠三角等地有 5 ~ 10 d,其中山西、河南、江西、广西等省(区)的部分地区有 10 ~ 30 d,局部在 30 d 以上。

从 4 个季节霾日数的年际变化(图 7)来看,4 季的霾日数与年平均霾日数的变化趋势基本一致,近 54 年均呈显著的增加趋势,其气候倾向率分别为

$0.313 \text{ d} \cdot (10 \text{ a})^{-1}$ (春季)、 $0.267 \text{ d} \cdot (10 \text{ a})^{-1}$ (夏季)、 $0.748 \text{ d} \cdot (10 \text{ a})^{-1}$ (秋季)和 $0.734 \text{ d} \cdot (10 \text{ a})^{-1}$ (冬季)。另外 4 季气候趋势系数分别为:春季(0.582)、夏季(0.752)、秋季(0.841)和冬季(0.724),4 季均超过了 99.9% 的显著性检验,各个季节霾日数增加十分显著。

2.3 我国年平均霾日数变化趋势的分布

图 8 分别是 1960 ~ 2013 年全国年平均霾日数的气候趋势系数和气候倾向率的变化趋势空间分

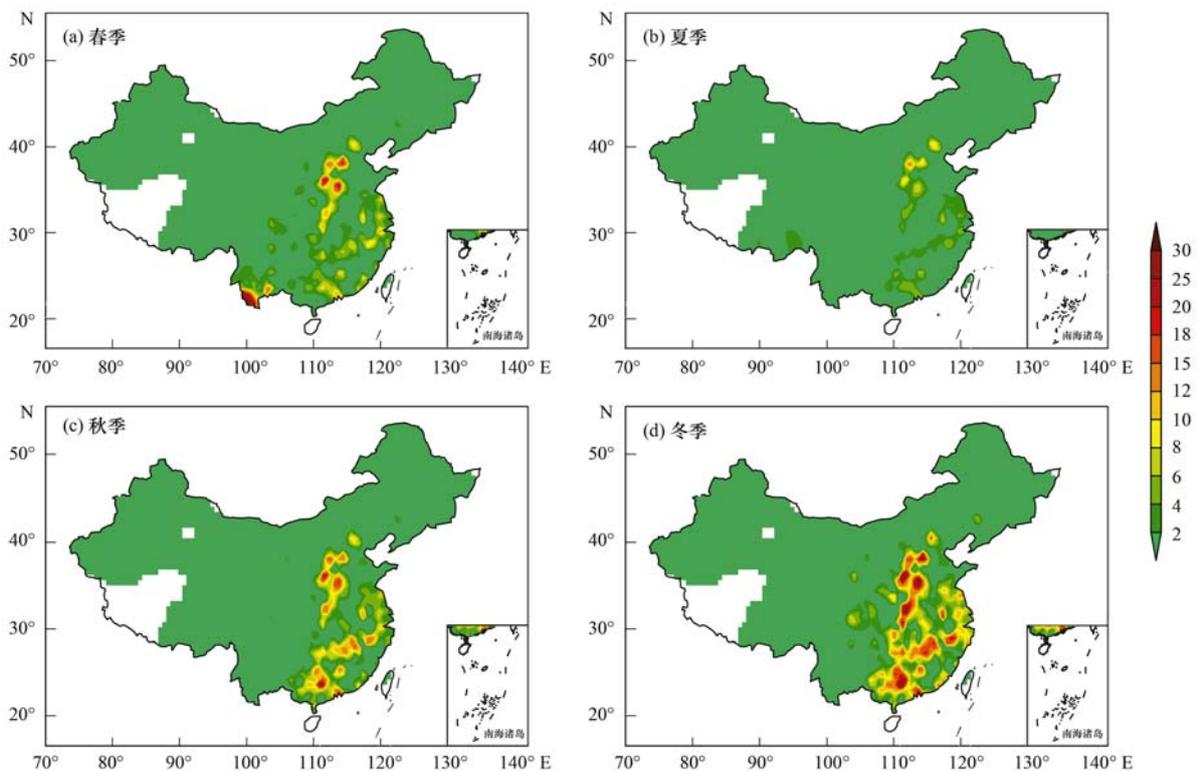


图 6 我国地区 1960 ~ 2013 年霾日数春季、夏季、秋季和冬季季节分布

Fig. 6 Seasonal distribution of haze days over China in spring, summer, fall and winter averaged over 1960-2013

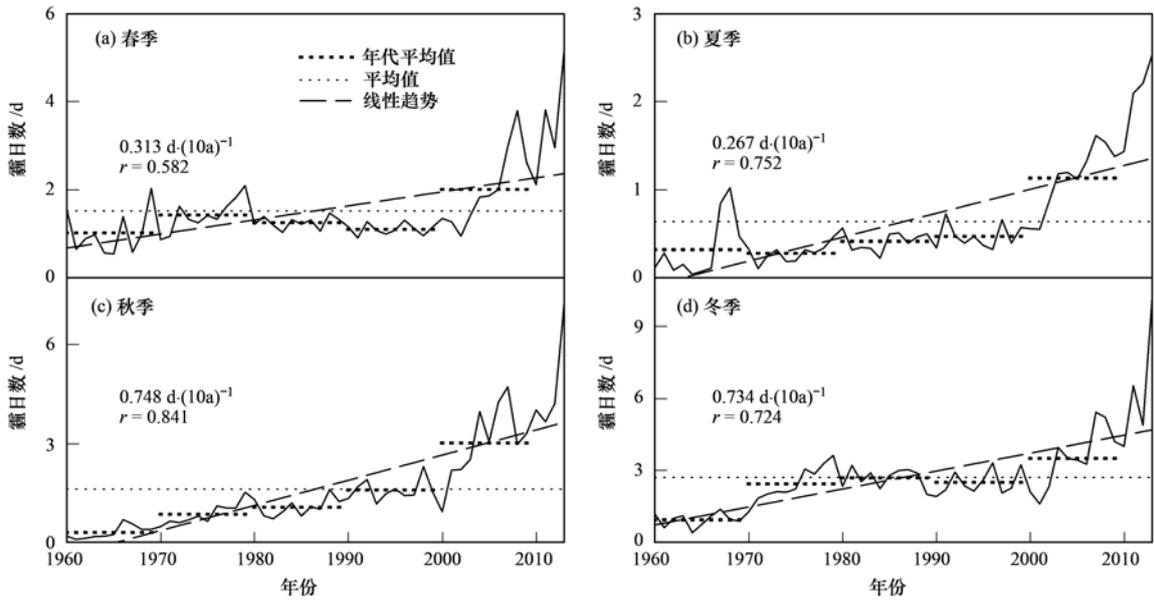


图 7 1960 ~ 2013 年我国地区平均四季霾日数的年际变化

Fig. 7 Annual variations in seasonal haze days averaged over South China during 1960 to 2013

布. 从中可以看到, 在过去 54 年中霾日数增加的地区主要在中国的东部地区, 而在中西部地区出现减少的平均趋势, 东北地区除了南部的部分站点外, 总体上也表现出减少趋势, 这一结果与高歌^[10]和吴兑等^[34]的统计结果基本一致. 北京地区、河北中部、山西中部和南部、河南中部、安徽中部、江苏大部、浙江大部、上海、江西西部和北部、湖南中部和西部、广西和广东等地, 年平均霾日数气候倾向率普遍超过了 $5 \text{ d} \cdot (10 \text{ a})^{-1}$, 是正变化趋势最显著的地区, 特别是以珠三角和长三角为中心的地区, 气候趋势系数可达 0.8, 部分站点气候倾向率超过 $10 \text{ d} \cdot (10 \text{ a})^{-1}$, 霾天气上升最为显著, 这些地区也是中国工业和经济发展最快、同时也是污染物排放最多

的地区.

2.4 影响我国年平均霾日数变化趋势的气象因子分析

霾天气的发生主要取决于大气污染排放强度和气象条件对污染物的稀释扩散能力^[35]. 在同等气象条件下, 大气污染排放越少, 则霾天气发生可能性就越小; 反之大气污染排放越强, 霾天气发生可能性就越高. 而大气污染排放强度大致稳定的情况下, 不同的天气气候形势显著影响着大气污染物的聚集程度, 并最终导致霾天气强度和频次的差异. 为考察我国地区近 54 年来气象因子对霾日数增减趋势的影响, 本研究选取了降水日数, 平均风速、日照时数和相对湿度进行分析, 其中降水日定义为日

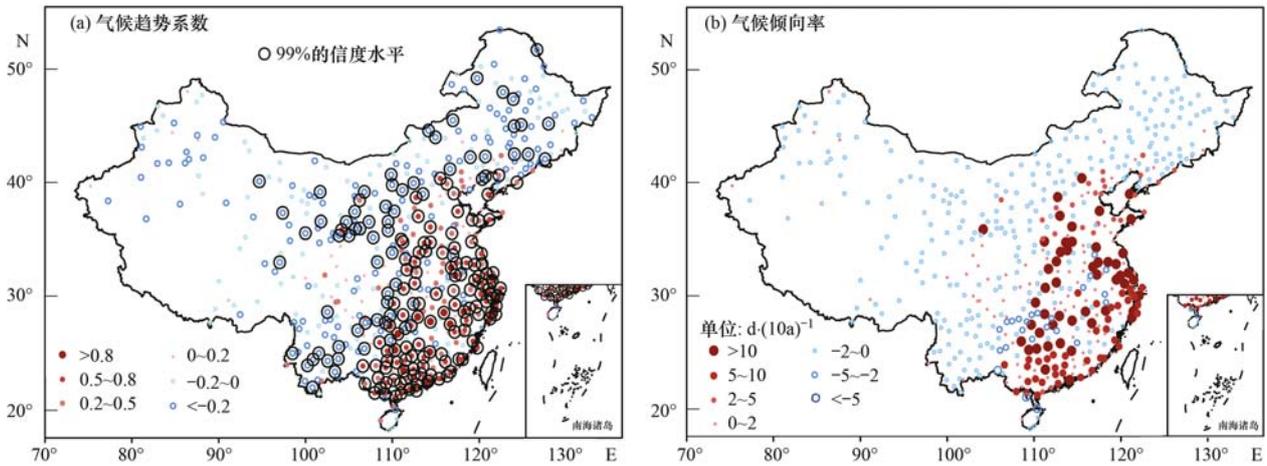


图 8 1960 ~ 2013 年我国地区年平均霾日数气候趋势系数和气候倾向率分布

Fig. 8 Spatial distribution of trend coefficient and climatic trend rate of haze days over China during 1960 to 2013

降水量大于 0.1 mm.

由图 9 可见,我国地区降水日数、平均风速、日照时数和相对湿度近 54 年来均呈波动减少趋势,进一步计算其与霾日数的相关系数(表 2),分别为 -0.653(降水日数)、-0.635(平均风速)、-0.462(日照时数)和 -0.699(相对湿度),远远超出了 99.9% 的信度检验标准. 如此高的相关系数表明,气象因子的变化对我国霾天气增减趋势的影响非常显著. 空气中的气溶胶粒子的积累有利于霾天气的发生,而降水是冲刷空气中气溶胶粒子的重要天气过程之一^[36]. 另外,地面的风力条件被认为是大气污染物稀释扩散的最直接因素之一. 我国年平

均降水日数和年平均风速的气候倾向率分别为 $-3.573 \text{ d} \cdot (10 \text{ a})^{-1}$ 和 $-0.116 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1} \cdot (10 \text{ a})^{-1}$,持续减少的降水日数必然造成空气中气溶胶粒子的增多,而平均风速的减弱将降低风对气溶胶粒子的搬运作用和扩散稀释作用^[35],导致日照时数的减少^[37],霾天气的增加. 没有气溶胶粒子就不能形成霾,没有气溶胶粒子参与在实际大气中也无法形成雾,因此一般情况下,雾和霾在一天之中可以变换角色,甚至在同一区域内的不同地方,雾和霾也会有所侧重^[38]. 一定条件下,相对湿度的持续降低可能造成雾滴向霾粒子转换容易,霾粒子向雾滴转换困难的局面,这将进一步导致霾日数增加,污染加重^[25].

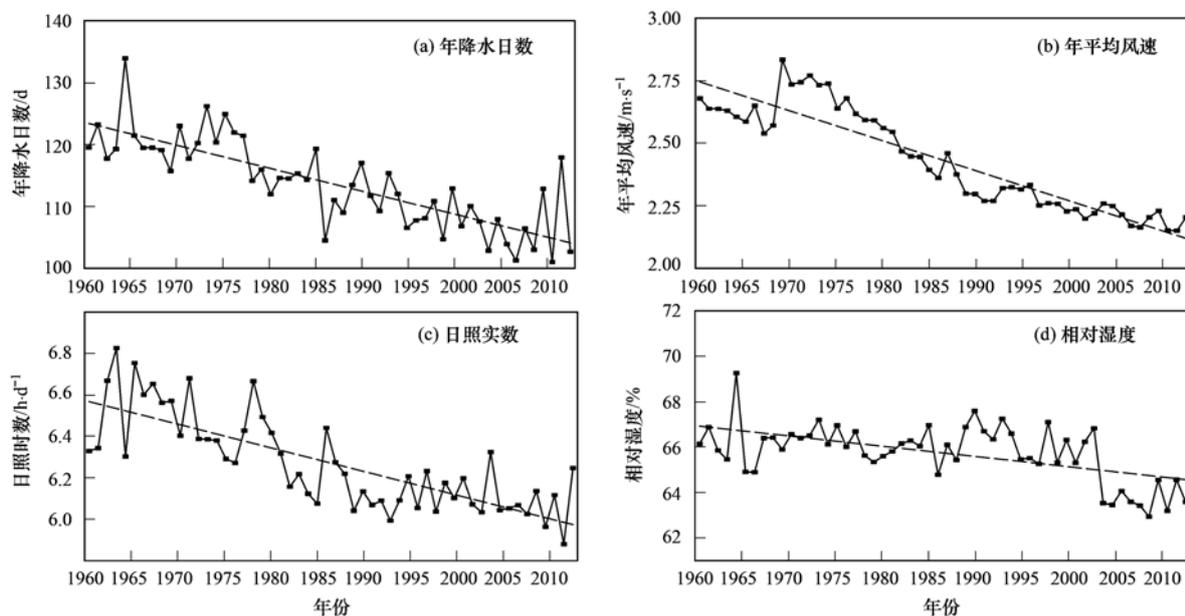


图 9 1960~2013 年我国地区年降水日数、年平均风速、日照实数和相对湿度的年际变化

Fig. 9 Annual variations of precipitation, mean wind speed, sunshine duration and relative humidity averaged in China during 1960 to 2013

表 2 我国地区气象因子变化与霾日数相关统计

Table 2 Statistics of relationship between haze days and climatic factors over South China

项目	平均值	均方差	气候倾向率	与年平均霾日数相关系数	信度检验/%
年降水日数/d	113.78	7.092	-3.573	-0.653	99.9
年平均风速/ $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$	2.433	0.2	-0.116	-0.635	99.9
日照实数/ $\text{h} \cdot \text{d}^{-1}$	6.271	0.224	-0.11	-0.462	99.9
相对湿度/%	65.748	1.248	-0.435	-0.699	99.9

2.5 我国霾日数的聚类分析

2.5.1 6 类站点霾日数的变化趋势特征

在分析不同类型站点的霾污染变化时,使用聚类分析的方法. 由于聚类分析是根据事物本身的特性研究个体分类的统计分析方法,基本思想认为研究变量间有相似性,因此本研究据此对霾污染不同程度的站点进行划分,分析全国各类站点霾污染的分布和变化规律特征. 本研究首先计算出全国 543

个站点的年霾日数气候倾向率,定义其气候倾向率 $\geq 10 \text{ d} \cdot (10 \text{ a})^{-1}$ 为上升极显著站点,而上升显著为 $5 \sim 9.9 \text{ d} \cdot (10 \text{ a})^{-1}$,上升明显为 $2 \sim 4.9 \text{ d} \cdot (10 \text{ a})^{-1}$,轻微上升为 $0 \sim 1.9 \text{ d} \cdot (10 \text{ a})^{-1}$,轻微下降为 $-1.9 \sim 0 \text{ d} \cdot (10 \text{ a})^{-1}$,下降明显为 $\leq -2 \text{ d} \cdot (10 \text{ a})^{-1}$. 其站点数分别为 50(上升极显著),40(上升显著),25(上升明显),90(轻微上升),280(轻微下降)和 24(下降明显),空间分布见图 10 所

示. 上升极显著、上升显著和上升明显的站点主要分布在 100°E 以东、42°N 以南地区, 与前面的分析一致, 而在我国中西部、东北大部和西南地区主要为下降的变化趋势. 王存忠等^[39]统计分析表明, 我国西北地区沙尘暴近 50 年来总体呈明显振动减少趋势, 这可能对这些地区霾污染减少有一定的帮助.

就霾日数的年际变化而言, 聚类分析所得的 6 类站点呈现出了不同的变化趋势(图 11). 上升极显著、上升显著和上升明显的站点气候倾向率分别为 17.66、7.54 和 3.48 d·(10 a)⁻¹(表 3), 其气候趋势系数较高, 均通过了 99.9% 的信度检验. 仔细分析可发现, 这三类站点的年际变化特征也不尽相同, 上升极显著站点在 20 世纪 90 年代以前维持稳定的上升趋势, 90 年代以后上升加速, 特别是 2000 年以后, 霾日数上升更为明显, 2013 年此类站点年平均霾日数已经超过 120 d, 污染极为严重. 上升显著的站点霾日数上升时期主要在 20 世纪 60 年代至 80 年代末与 2000 年之后, 而 80 年代至 2000 年为平稳变化时期. 上升明显的站点在 2006 年之前均表

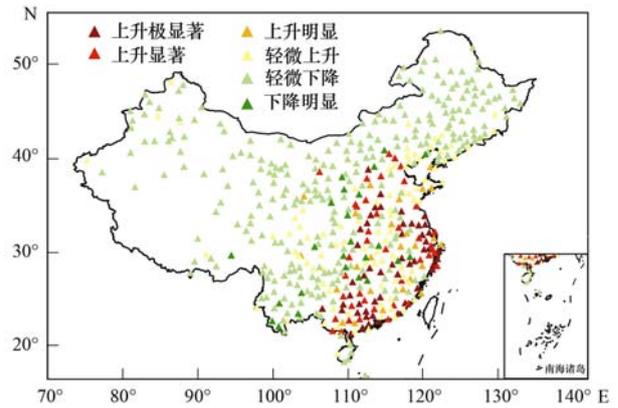


图 10 我国地区聚类分析中 6 类站点分布
Fig. 10 Distribution of 6 groups of stations in cluster analysis over China

现为缓慢的上升趋势, 之后才加速上升. 轻微上升站点的霾日数上升时期为 20 世纪 60 年代末与 2000 年之后, 而 80 年代初至 2000 年略有下降. 轻微下降与下降明显的站点在 20 世纪 60 年代至 70 年代末为快速上升时期, 之后轻微下降站点霾日数呈稳定下降趋势, 而下降明显站点呈阶梯式下

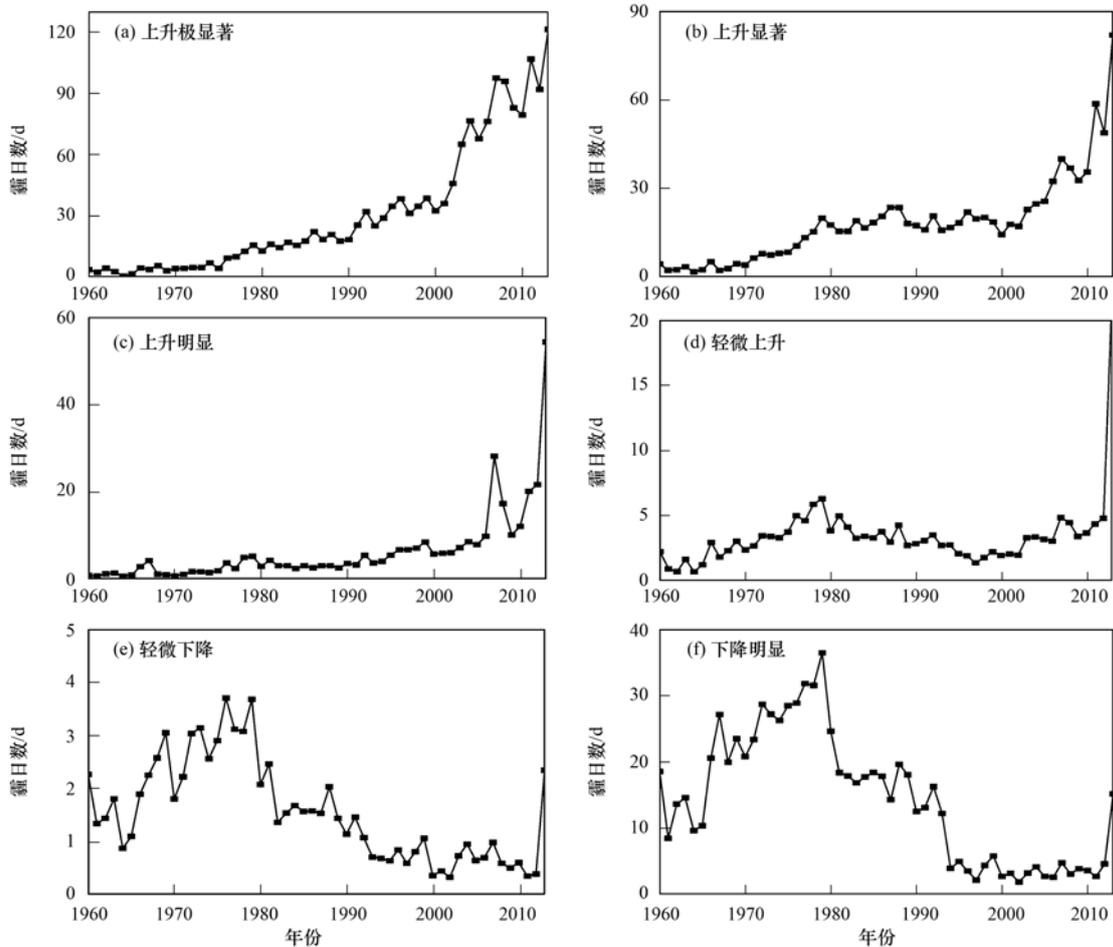


图 11 1960 ~ 2013 年我国地区 6 类站点年平均霾日数年际变化

Fig. 11 Annual variations of haze days averaged over 6 groups of stations during 1960 to 2013

降,80 年代霾日数维持在 15 d 左右,90 年代中期之后维持在 4 d 附近. 不同类型站点的霾日数年际变化特征主要与经济发展水平和气候环境变化有关,如上升极显著、上升显著和上升明显的站点主要分布在我国东部和南部,属于平原经济较为发达地区,人为排放影响最为严重. 轻微下降的站点主要分布

在我国东北、西北和西南等地,主要受沙尘暴和扬沙天气影响. 轻微上升的站点主要分布在我国华北、四川盆地和北疆等地,明显下降的站点主要分布在我国华北西部、西南及靠近西部地区,这两类站点主要受到沙尘暴浮尘现象和经济发展的双重影响.

表 3 我国地区和 6 类站点年平均霾日数变化趋势

Table 3 Annual variation trend of haze days in China and 6 groups of station

项目	平均值	均方差	气候倾向率/d·(10 a) ⁻¹	气候趋势系数	信度/%
全国	6.48	4.19	2.06	0.78	99.9
上升极显著	30.81	31.59	17.66	0.89	99.9
上升显著	18.42	14.64	7.54	0.82	99.9
上升明显	6.23	8.58	3.48	0.64	99.9
轻微上升	3.42	2.78	0.56	0.32	98
轻微下降	1.55	0.93	-0.37	-0.63	99.9
下降明显	14.27	9.65	-4.09	-0.67	99.9

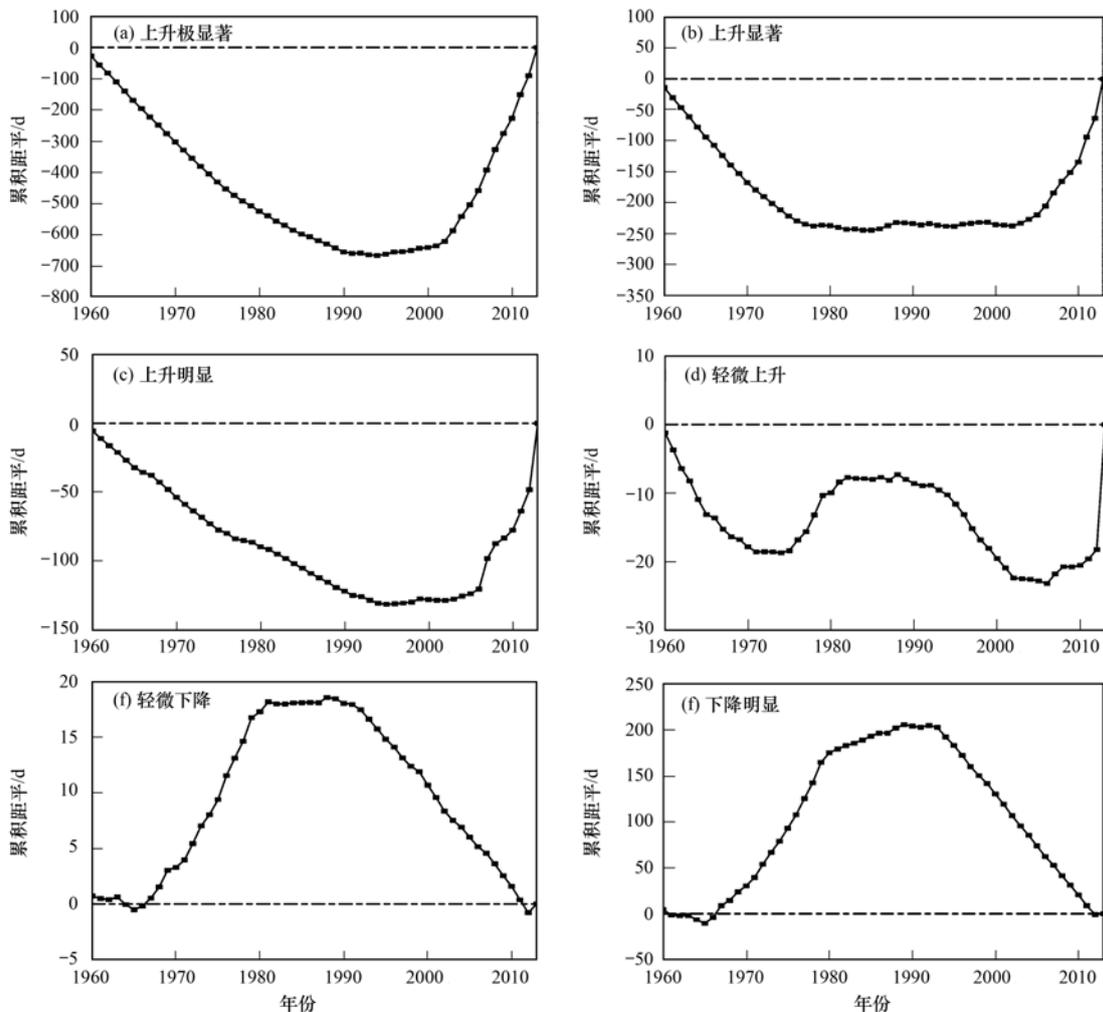


图 12 6 类站点年平均霾日数变化累积距平

Fig. 12 Accumulated annual mean haze days anomaly in 6 groups of stations

2.5.2 6 类站点霾日数的累积距平分析

累积距平是表示趋势变化的线性波动,可以反

映年代际变化的升降起伏,而距平曲线则是表示在平均线上的年际波动,因此采用累积距平来表示年

代际的长期趋势变化更为直观和合理. 从图 12 可以清楚看出, 上升极显著、上升显著和上升明显的站点累积距平变化趋势较为类似, 为下降-平缓-上升型. 上升极显著站点在 20 世纪 60 年代呈下降趋势, 90 年代为平缓变化, 2000 年以后呈上升趋势. 上升显著站点 70 年代中期以前呈下降趋势, 而在 70 年代中期至本世纪初一直为平缓变化时期, 之后才呈上升趋势. 相比之下, 上升明显站点的下降趋势比较长, 从 60 年代至 90 年代初维持下降趋势, 90 年代中期至 2006 年为平缓变化期, 之后为上升期. 轻微上升站点累积距平变化趋势为多波动型. 20 世纪 60 年代至 70 年代初呈下降趋势, 70 年代中期至 80 年代初为上升时期, 80 年代初至 90 年代中期为平缓时期, 随后至 2006 年又呈下降趋势, 2007 年至 2013 年为上升趋势. 轻微下降和下降明显站点累积距平变化趋势与上升极显著、上升显著和上升明显站点基本相反, 呈上升-平缓-下降型. 轻微下降站点从 20 世纪 60 年代中期至 80 年代初呈稳定上升趋势, 80 年代初至 90 年代初为平缓时期, 90 年代

以后呈稳定下降趋势. 下降明显站点上升时期较短, 只有 60 年代中期至 70 年代末为上升趋势, 而 80 年代初至 90 年代中期呈平缓变化, 之后维持稳定的下降趋势.

2.5.3 6 类站点霾日数趋势突变检验

突变时间是表示年平均霾日数长期变化趋势序列发生变化的一个突变时段, 本研究采用 Mann-Kendall 法对 6 类站点霾日数变化趋势进行突变检验, 取显著性水平 $\alpha = 0.05$, 相应的检验临界值 $U_{\alpha} = \pm 1.96$. 由图 13 可以看出, 上升极显著、上升显著和上升明显站点 UF 曲线在近 54 年来呈稳定的上升趋势, 并分别于 1973 年(上升极显著, 上升显著)和 1976 年(上升明显)超过了 0.05 的置信水平, 说明这 3 类站点霾日数有明显的上升趋势, 与前面的分析一致. 另外 3 类站点 UF 曲线与 UB 曲线近 54 年来均出现一个交点, 分别出现在 1987 ~ 1988 年(上升极显著)、1978 ~ 1979 年(上升显著)和 1994 ~ 1995 年(上升明显), 但均分布在置信区间外, 突变现象不明显. 轻微上升站点 UF 曲线呈上

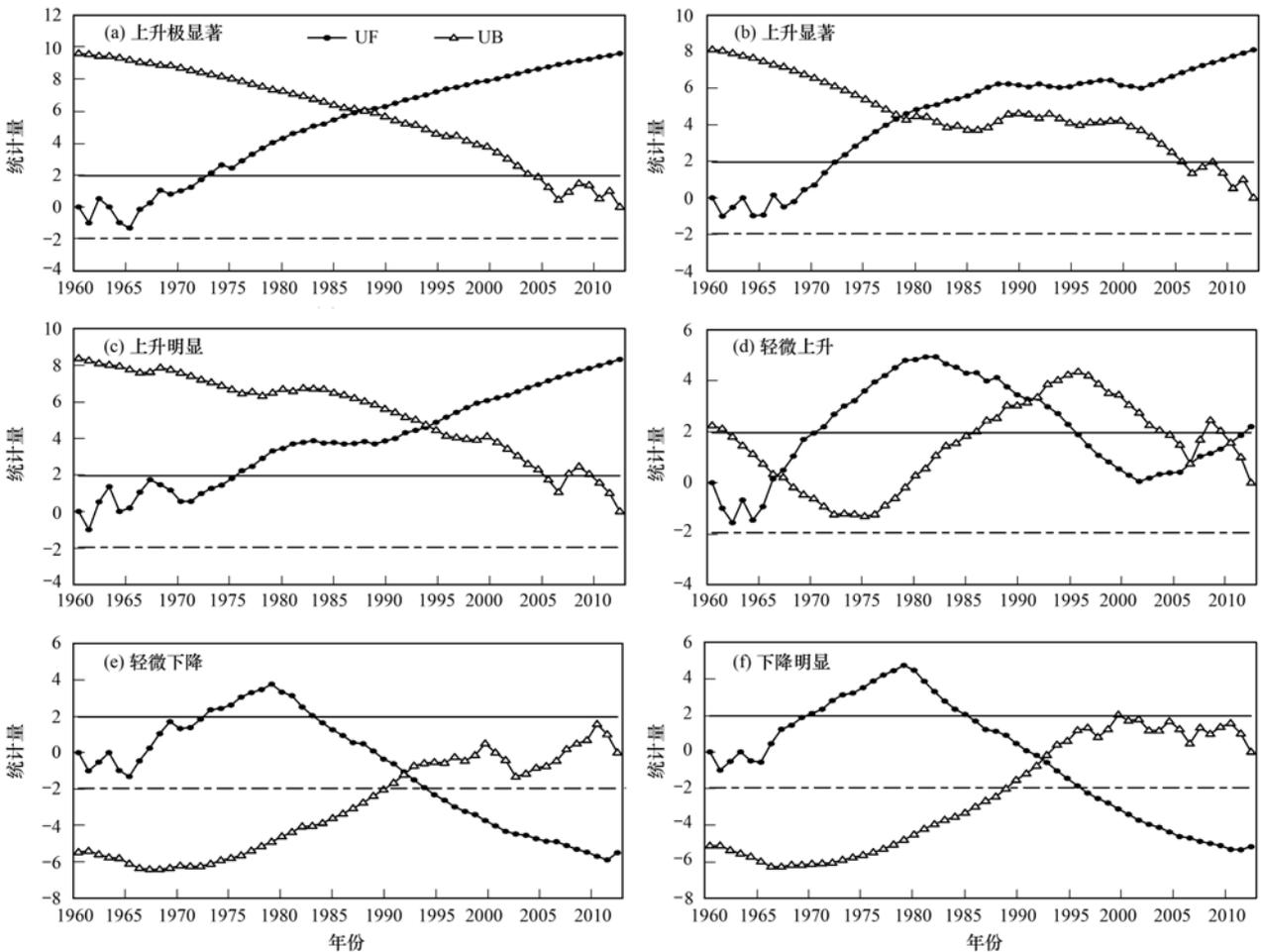


图 13 6 类站点年平均霾日数的 Mann-Kendall 突变检验结果

Fig. 13 Mann-Kendall test of annual mean haze days in 6 groups of stations

升-下降-上升的变化趋势,并于 1971~1980 年超过 0.05 的置信水平,有明显的上升趋势. 1981~2001 年均为下降趋势,但没有超过置信水平,下降趋势不显著. 随后又有缓慢回升趋势. 轻微上升站点 UF 曲线与 UB 曲线共有 4 个交点,分别为 1966~1967 年、1991 年、2007 年和 2011 年,其中 1991 年交点在置信区间之外,而且 UF 曲线在这一时段维持稳定下降趋势,因此突变点不可信. 结合轻微上升站点霾日数的年际变化可知[图 11(d)],霾日数在 20 世纪 60 年代至 70 年代末与 2000 年之后均表现为上升趋势,因此另外 3 个年份为突变点不可信,轻微上升站点也没有明显的突变特征. 轻微下降和下降明显站点 UF 曲线与 UB 曲线的交点均出现在 1992~1993 年,而且在置信区间内. 结合 UF 曲线的变化特征可知,1979 年之后 UF 曲线呈下降趋势,并在 1996 年之后超过置信水平,下降趋势显著. 年际变化[图 11(e)和 11(f)]特征也表明 1993 年之后轻微下降和下降明显站点霾日数维持较低的水平,由此推断这两类站点霾日数在 1992~1993 年间霾日数可能发生了由多到少的突变,其具体成因还有待于进一步分析.

3 结论

(1)我国的霾污染主要分布在 100°E 以东、42°N 以南地区,即中东部和南部较多,西部和东北部地区相对较少. 华北的中部和西部,西南的南部,华中大部,华东大部,华南西部和南部,四川盆地等地区是我国霾天气的多发区. 其中北京地区、山西中部和南部、河南局部地区、长三角和珠三角等地大部分站点超过 20 d,尤以河南的新乡最高,为 78.9 d,其次是山西的临汾,为 74.7 d.

(2)我国地区霾日数近 54 年来总体特征是呈不断增加的趋势,而且与能源消耗总量有很好的正相关关系. 根据年平均霾日数的年际变化曲线状况可将其分为 3 个阶段,即第一阶段 1960~1979 年缓慢上升阶段、第二阶段 1980~2000 年平稳变化阶段、第三阶段 2001~2013 年加剧上升阶段,说明霾污染除了主要受污染源排放程度控制外,也可能存在气象条件的显著影响.

(3)霾污染的季节分布基本上是冬多夏少,冬季是霾天气发生最多的季节,而且发生范围较广,夏季霾日数强度偏弱,范围偏小. 4 季气候趋势系数较高,均超过了 99.9% 的显著性检验,各个季节霾日数增加十分显著.

(4)除了人为排放外,气候因子也是造成霾污染明显增加的重要原因. 降水日数、平均风速、日照时数和相对湿度近 54 年来均呈波动减少趋势,而且与霾日数的相关系数分别为 -0.653(降水日数)、-0.635(平均风速)、-0.462(日照时数)和 -0.699(相对湿度),远远超出了 99.9% 的信度检验标准,不利的气候条件加剧了我国地区霾天气的发生.

(5)聚类分析表明,上升极显著、上升显著和上升明显的站点年平均霾日数近年来均有加速上升的趋势,而且污染越严重的站点加速时间越早,其累积距平的变化趋势为下降-平缓-上升型. 轻微上升站点的霾日数上升时期为 20 世纪 60 年代至 70 年代末与 2000 年之后,而 80 年代初至 2000 年略有下降,累积距平为多波动型. 轻微下降与下降明显的站点快速上升时期为 60 年代至 70 年代末,随后均有不同程度的下降,累积距平呈上升-平缓-下降型,且在 1992~1993 年间霾日数发生了由多到少的突变.

参考文献:

- [1] 中国气象局. 地面气象观测规范[M]. 北京:气象出版社, 2003. 21-27.
- [2] 张人禾,李强,张若楠. 2013 年 1 月中国东部持续性强雾霾天气产生的气象条件分析[J]. 中国科学:地球科学, 2014, 44(1): 27-36.
- [3] 丁一汇,李巧萍,柳艳菊,等. 空气污染与气候变化[J]. 气象, 2009, 35(3): 3-14, 129.
- [4] 吴兑,吴晓京,李菲,等. 1951—2005 年中国大陆霾的时空变化[J]. 气象学报, 2010, 68(5): 680-688.
- [5] 吴兑. 华南气溶胶研究的回顾与展望[J]. 热带气象学报, 2003, 19(S1): 145-151.
- [6] 赵普生,张小玲,徐晓峰. 利用日均及 14 时气象数据进行霾日判定的比较分析[J]. 环境科学学报, 2011, 31(4): 704-708.
- [7] 宋文英,梅士龙,孙华. 基于自动站资料的灰霾观测判据研讨[J]. 气象科学, 2012, 32(1): 74-79.
- [8] 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.
- [9] 吴兑,毕雪岩,邓雪娇,等. 珠江三角洲大气灰霾导致能见度下降问题研究[J]. 气象学报, 2006, 64(4): 510-517.
- [10] 高歌. 1961-2005 年中国霾日气候特征及变化分析[J]. 地理学报, 2008, 63(7): 761-768.
- [11] 赵普生,徐晓峰,孟伟,等. 京津冀区域霾天气特征[J]. 中国环境科学, 2012, 32(1): 31-36.
- [12] 廖晓农,张小玲,王迎春,等. 北京地区冬夏季持续性雾-霾发生的环境气象条件对比分析[J]. 环境科学, 2014, 35(6): 2031-2044.
- [13] 刘永红,冯婷,蔡铭. 广州灰霾现象特征分析[J]. 环境科学研究, 2011, 24(10): 1081-1087.
- [14] 毛敏娟,刘厚通,徐宏辉,等. 多元观测资料融合应用的灰

- 霾天气关键成因研究[J]. 环境科学学报, 2013, **33**(3): 806-813.
- [15] 戴永立, 陶俊, 林泽健, 等. 2006~2009年我国超大城市霾天气特征及影响因子分析[J]. 环境科学, 2013, **34**(8): 2925-2932.
- [16] 胡荣章, 刘红年, 张美根, 等. 南京地区大气灰霾的数值模拟[J]. 环境科学学报, 2009, **29**(4): 808-814.
- [17] 王丽涛, 潘雪梅, 郑佳, 等. 河北及周边地区霾污染特征的模拟研究[J]. 环境科学学报, 2012, **32**(4): 925-931.
- [18] 曹伟华, 梁旭东, 李青春. 北京一次持续性雾霾过程的阶段性特征及影响因子分析[J]. 气象学报, 2013, **71**(5): 940-951.
- [19] 谭吉华, 赵金平, 段青春, 等. 广州秋季灰霾污染过程大气颗粒物有机酸的污染特征[J]. 环境科学, 2013, **34**(5): 1982-1987.
- [20] 高敏, 仇天雷, 贾瑞志, 等. 北京雾霾天气生物气溶胶浓度和粒径特征[J]. 环境科学, 2014, **35**(12): 4415-4421.
- [21] 陈秋方, 孙在, 谢小芳. 杭州灰霾天气超细颗粒物浓度分布特征[J]. 环境科学, 2014, **35**(8): 2851-2856.
- [22] 李敏娜, 牛生杰, 张舒婷, 等. 南京雾-霾天气个例湍流运动特征的对比研究[J]. 气象学报, 2015, **73**(3): 593-608.
- [23] 孙彧, 马振峰, 牛涛, 等. 最近40年中国雾日数和霾日数的气候变化特征[J]. 气候与环境研究, 2013, **18**(3): 397-406.
- [24] 符传博, 丹利. 重污染下我国中东部地区1960~2010年霾日数的时空变化特征[J]. 气候与环境研究, 2014, **19**(2): 219-226.
- [25] 丁一汇, 柳艳菊. 近50年我国雾和霾的长期变化特征及其与大气湿度的关系[J]. 中国科学: 地球科学, 2014, **44**(1): 37-48.
- [26] 尹志聪, 王会军, 袁东敏. 华北黄淮冬季霾年代际增多与东亚冬季风的减弱[J]. 科学通报, 2015, **60**(15): 1395-1400.
- [27] 肖钟湧, 江洪, 程苗苗. 利用OMI遥感数据研究中国区域大气NO₂[J]. 环境科学学报, 2011, **31**(10): 2080-2090.
- [28] 孙赵勇, 史耀波, 于睿. 中国能源消耗与废气排放关系研究[J]. 西安理工大学学报, 2012, **28**(4): 494-499.
- [29] 魏凤英. 现代气候统计诊断与预测技术[M]. 北京: 气象出版社, 2007.
- [30] 施能, 陈家其, 屠其璞. 中国近100年来4个年代际的气候变化特征[J]. 气象学报, 1995, **53**(4): 431-439.
- [31] 施能, 黄先香, 杨扬. 1948~2000年全球陆地年降水量趋势变化的时、空特征[J]. 大气科学, 2003, **27**(6): 971-982.
- [32] 符淙斌, 王强. 气候突变的定义和检测方法[J]. 大气科学, 1992, **16**(4): 482-493.
- [33] 吴洪宝, 吴蕾. 气候变率诊断和预测方法[M]. 北京: 气象出版社, 2005.
- [34] 吴兑, 吴晓京, 朱小祥. 雾和霾[M]. 北京: 气象出版社, 2009. 198.
- [35] 胡亚旦, 周自江. 中国霾天气的气候特征分析[J]. 气象, 2009, **35**(7): 73-78.
- [36] Fu C B, Dan L. Trends in the different grades of precipitation over South China during 1960-2010 and the possible link with anthropogenic aerosols[J]. Advances in Atmospheric Sciences, 2014, **31**(2): 480-491.
- [37] Fu C B, Dan L, Chen Y L, *et al.* Trends of the sunshine duration and diffuse radiation percentage on sunny days in urban agglomerations of China during 1960-2005 [J]. Journal of Environmental Sciences, 2015, **34**: 206-211.
- [38] 张小曳, 孙俊英, 王亚强, 等. 我国雾-霾成因及其治理的思考[J]. 科学通报, 2013, **58**(13): 1178-1187.
- [39] 王存忠, 牛生杰, 王兰宁. 中国50 a来沙尘暴变化特征[J]. 中国沙漠, 2010, **30**(4): 933-939.

CONTENTS

Temporal and Spatial Variation of Haze Pollution over China from 1960 to 2013	FU Chuan-bo, TANG Jia-xiang, DAN Li, <i>et al.</i> (3237)
Concentrations and Size Distributions of Water-soluble Inorganic Ions in Aerosol Particles in Taiyuan, Shanxi	WANG Lu, WEN Tian-xue, MIAO Hong-yan, <i>et al.</i> (3249)
Characteristics of the Size Distribution of Water Soluble Inorganic Ions During a Typical Haze Pollution in the Autumn in Shijiazhuang	LIU Jing-yun, LIU Zi-rui, WEN Tian-xue, <i>et al.</i> (3258)
Variation of Size Distribution and the Influencing Factors of Aerosol in Northern Suburbs of Nanjing	WU Dan, CAO Shuang, TANG Li-li, <i>et al.</i> (3268)
Characteristics of Black Carbon Aerosol and Influencing Factors in Northern Suburbs of Nanjing	XIAO Si-han, YU Xing-na, ZHU Bin, <i>et al.</i> (3280)
Characteristics of Speciated Atmospheric Mercury in Chongming Island, Shanghai	LI Shu, GAO Wei, WANG Shu-xiao, <i>et al.</i> (3290)
Total Gaseous Mercury and Mercury Emission from Natural Surface at One Typical Agricultural Region in Three Gorges Reservoir	WANG Yong-min, ZHAO Zheng, SUN Tao, <i>et al.</i> (3300)
Variation Characteristics and Sources Analysis of Atmospheric Volatile Organic Compounds in Changbai Mountain Station	WU Fang-kun, SUN Jie, YU Ye, <i>et al.</i> (3308)
Characterization of Particle Size Distributions of the No-organized Lead Emission for a Lead and Zinc Smelter	LIU Da-jun, WANG Jia-quan (3315)
Hydrochemical Characteristics and Sources of Ions in Precipitation at the East Qilian Mountains	JIA Wen-xiong, LI Zong-xing (3322)
Pollution Characteristics and Ecological Risk Assessment of Vanadium in Sediments of the Three Gorges Reservoir (Chongqing-Yichang Section)	GUO Wei, YIN Shu-hua, XU Jian-xin, <i>et al.</i> (3333)
Distributions of Arsenic Species in Different Eutrophic Waters of Lake Taihu and Their Relations to Environmental Factors	CHE Fei-fei, WANG Da-peng, ZHEN Zhuo, <i>et al.</i> (3340)
Spatial, Temporal Distribution Characteristics and Potential Risk of PPCPs in Surface Sediments from Taihu Lake	ZHANG Pan-wei, ZHOU Huai-dong, ZHAO Gao-feng, <i>et al.</i> (3348)
Distribution Characteristics and Source Identification of Organochlorine Pesticides in the Karst Groundwater System	ZHANG Mei, SUN Yu-chuan, XIE Zheng-lan, <i>et al.</i> (3356)
Comparison on the Hydrogeochemical Characteristics of Typical Karst Groundwater System in Southwest China, a Case of Qingmuguan and Laolongdong in Chongqing	ZHAN Zhao-jun, CHEN Feng, YANG Ping-heng, <i>et al.</i> (3365)
Fractions and Release Risk of Phosphorus in Surface Sediments of Three Headwater Streams with Different Styles of Water Supply	LI Ru-zhong, QIN Ru-bin, HUANG Qing-fei, <i>et al.</i> (3375)
Vertical Variation of Phosphorus Forms in Lake Dianchi and Contribution to Release	LI Le, WANG Sheng-rui, JIAO Li-xin, <i>et al.</i> (3384)
Analysis of Distribution Characteristics and Source of Dissolved Organic Matter from Zhoucun Reservoir in Summer Based on Fluorescence Spectroscopy and PARAFAC	HUANG Ting-lin, FANG Kai-kai, ZHANG Chun-hua, <i>et al.</i> (3394)
Absorption and Reflection Characteristics of Black Water Blooms in the Eutrophic Water	ZHANG Si-min, LI Yun-mei, WANG Qiao, <i>et al.</i> (3402)
Assessment of Ecosystem Health of Baogang Tailings Groundwater Based on Microbiome Index of Biotic Integrity (M-IBI)	AN Xin-li, CHEN Ting-ting, ZHAO Han, <i>et al.</i> (3413)
Relationship Between Landscape Pattern and Spatial Variation of Heavy Metals in Aquatic Sediments in Headwaters Area of Yuqiao Reservoir	WANG Zu-wei, WANG Yi-wei, HOU Ying-ying, <i>et al.</i> (3423)
Effect of Constructed Wetland Configuration on the Removal of Nitrogen Pollutants and Antibiotics in Aquaculture Wastewater	LIU Jia, YI Nai-kang, XIONG Yong-jiao, <i>et al.</i> (3430)
Effects of a Symbiotic Bacterium on the Accumulation and Transformation of Arsenate by <i>Chlorella salina</i>	XU Ping-ping, LIU Cong, WANG Ya, <i>et al.</i> (3438)
Effects of Nitrate in Water on the Growth of <i>Iris pseudacorus</i> L. and Its Adsorption Capacity of Nitrogen in a Simulated Experiment	WANG Bing, WEN Fen-xiang, XIAO Bo (3447)
Adsorption Behavior of <i>p</i> -hydroxy Biphenyl onto Sediment of the Yellow River in Lanzhou	ZHOU Qi, JIANG Yu-feng, SUN Hang, <i>et al.</i> (3453)
Enhanced Pollutants Removal in a Municipal Wastewater Treatment Plant with Multistage A/O Process	YIN Zi-hua, SHENG Xiao-lin, LIU Rui, <i>et al.</i> (3460)
Performance of Nanofiltration for Improving the Drinking Water Quality in a Water Supply Plant with Micropolluted Water Resource	WU Yu-chao, CHEN Li-jun, LAN Ya-qiong, <i>et al.</i> (3466)
Reaction Kinetics and Impacting Mechanism of Cr(VI) Removal in Fe ⁰ -PRB Systems	LU Xin, LI Miao, TANG Cui-mei, <i>et al.</i> (3473)
Adsorption Cd ²⁺ from Solution by EDTA-modified Silicate Nanoparticles	JIANG Shun-cheng, QIN Rui, LI Man-lin, <i>et al.</i> (3480)
Analysis and Characterization of Multi-modified Anodes via Nitric Acid and PPy/AQDS in Microbial Fuel Cells	SHEN Wei-hang, ZHU Neng-wu, YIN Fu-hua, <i>et al.</i> (3488)
Adsorption Characteristics of Phosphorus Wastewater on the Synthetic Ferrihydrate	CUI Meng-meng, WANG Dian-sheng, HUANG Tian-yin, <i>et al.</i> (3498)
Performance of Bio-zeolite Constructed Wetland in Dispersed Swine Wastewater Treatment	MOU Rui, SHEN Zhi-qiang, ZHOU Yue-xi, <i>et al.</i> (3508)
Polyhydroxyalkanoate (PHA) Synthesis by Glycerol-based Mixed Culture and Its Relation with Oxygen Uptake Rate (OUR)	LIU Dong, ZHANG Xiao-ting, ZHANG Dai-jun, <i>et al.</i> (3518)
Kinetics and Mechanistic Investigation of the Photocatalytic Degradation of Clothianidin	HU Qian, YANG Hai, SHI Ni, <i>et al.</i> (3524)
Impacts of Industrial Zone in Arid Area in Ningxia Province on the Accumulation of Heavy Metals in Agricultural Soils	WANG Mei-e, PENG Chi, CHEN Wei-ping (3532)
Pollution Characteristics and Health Risk Assessment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in the Surface Soils of a Large Steel enterprise in the North of China	DONG Jie, HUANG Ying, LI Yong-xia, <i>et al.</i> (3540)
Vertical Distribution of Heavy Metals and Its Response to Organic Carbon in Red Soil Profile	JIA Guang-mei, MA Ling-ling, XU Dian-dou, <i>et al.</i> (3547)
Provoking Effects of Exogenous Zn on Cadmium Accumulation in Rice	GU Jiao-feng, YANG Wen-tao, ZHOU Hang, <i>et al.</i> (3554)
Effect of Modified Biochars on Soil Cadmium Stabilization in Paddy Soil Suffered from Original or Exogenous Contamination	YANG Lan, LI Bing, WANG Chang-quan, <i>et al.</i> (3562)
Performance of Bioleaching Combined with Fenton-like Reaction in Heavy Metals Removal from Contaminated Soil	ZHOU Pu-xiong, YAN Xie, YU Zhen, <i>et al.</i> (3575)
Effect of Long-term Oil Contamination on the Microbial Molecular Ecological Networks in Saline-alkali soils	ZHAO Hui-hui, XIAO Xian, PEI Meng, <i>et al.</i> (3582)
Effect of Nitrogen Deposition on Soil Microbial Community Structure Determined with the PLFA Method Under the Masson Pine Forest from Mt. Jinyun, Chongqing	ZENG Qing-ping, HE Bing-hui (3590)
Fungal Community Structure of Different Degeneration <i>Deyeuxia angustifolia</i> Wetlands in Sanjiang Plain	SUI Xin, ZHANG Rong-tao, XU Nan, <i>et al.</i> (3598)
Short-term Effects of Nitrogen and Sulfate Addition on CH ₄ and CO ₂ Emissions in the Tidal Marsh of Min River Estuary	HU Min-jie, REN Peng, HUANG Jia-fang, <i>et al.</i> (3606)
Variation of Soil CO ₂ Flux and Environmental Factors Across Erosion-Deposition Sites Under Simulation Experiment	DU Lan-lan, WANG Zhi-qi, WANG Rui, <i>et al.</i> (3616)
Interannual Variations of Soil Respiration and Its Temperature Sensitivity in an Orchard in Jimci Region of Taiyuan City	YAN Jun-xia, HAO Zhong, JING Xue-kai, <i>et al.</i> (3625)
Influence of Biochar on Greenhouse Gases Emissions and Physico-chemical Properties of Loess Soil	WANG Yue-ling, GENG Zeng-chao, WANG Qiang, <i>et al.</i> (3634)
Effects of Elevated Ozone and Nitrogen Deposition on Photosynthetic Characteristics and biomass of <i>Populus cathayana</i>	XIN Yue, SHANG Bo, CHEN Xing-ling, <i>et al.</i> (3642)
Effects of Canopy Temperature on Carbon Dioxide Exchange of Winter Wheat in Taiyuan Basin	LI Hong-juan, YANG Yan, YAN Jun-xia (3650)
Composition and Evolution Characteristics of Dissolved Organic Matter During Composting Process	LI Dan, HE Xiao-song, XI Bei-dou, <i>et al.</i> (3660)
Effects of Acidic and Basic Modification on Activated Carbon for Adsorption of Toluene	LIU Han-bing, YANG Bing, XUE Nan-dong (3670)

《环境科学》第6届编辑委员会

主 编: 赵进才

副主编: 赵景柱 郝吉明 田 刚

编 委: (按姓氏笔画排序)

万国江 王华聪 王凯军 王绪绪 田 刚 田 静 史培军
朱永官 刘志培 刘 毅 汤鸿霄 孟 伟 周宗灿 林金明
赵进才 赵景柱 姜 林 郝郑平 郝吉明 聂永丰 黄 霞
黄 耀 鲍 强 潘 纲 潘 涛 魏复盛

环 境 科 学

(HUANJING KEXUE)

(月刊 1976年8月创刊)

2016年9月15日 第37卷 第9期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 37 No. 9 Sep. 15, 2016

主 管	中国科学院	Superintended	by	Chinese Academy of Sciences
主 办	中国科学院生态环境研究中心	Sponsored	by	Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences
协 办	(以参加先后为序) 北京市环境保护科学研究院 清华大学环境学院	Co-Sponsored	by	Beijing Municipal Research Institute of Environmental Protection School of Environment, Tsinghua University
主 编	赵进才	Editor-in -Chief		ZHAO Jin-cai
编 辑	《环境科学》编辑委员会 北京市2871信箱(海淀区双清路 18号, 邮政编码:100085) 电话:010-62941102, 010-62849343 传真:010-62849343 E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn	Edited	by	The Editorial Board of Environmental Science (HUANJING KEXUE) P. O. Box 2871, Beijing 100085, China Tel:010-62941102, 010-62849343; Fax:010-62849343 E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn
出 版	科 学 出 版 社 北京东黄城根北街16号 邮政编码:100717	Published	by	Science Press 16 Donghuangchenggen North Street, Beijing 100717, China
印 刷 装 订	北京北林印刷厂	Printed	by	Beijing Bei Lin Printing House
发 行	科 学 出 版 社 电话:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com	Distributed	by	Science Press Tel:010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com
订 购 处	全国各地邮电局	Domestic		All Local Post Offices in China
国外总发行	中国国际图书贸易集团有限公司 (北京399信箱)	Foreign		China International Book Trading Corporation (Guoji Shudian), P. O. Box 399, Beijing 100044, China

中国标准刊号: ISSN 0250-3301
CN 11-1895/X

国内邮发代号: 2-821

国内定价: 120.00元

国外发行代号: M 205

国内外公开发行