

王戎, 郎畅, 曹军, 等. 2009 基于轨迹计算的污染物归趋概率模型 [J]. 环境科学学报, 29(8): 1598–1603

Wang R, Lang C, Cao J *et al*. 2009 A probabilistic model for transport of air pollutants based on forward trajectory calculations [J]. Acta Scientiae Circumstantiae 29(8): 1598–1603

## 基于轨迹计算的污染物归趋概率模型

王戎<sup>1</sup>, 郎畅<sup>1</sup>, 曹军<sup>1</sup>, 陶澍<sup>1\*</sup>, 张干<sup>2</sup>

1 北京大学城市与环境学院, 地表过程分析与模拟教育部重点实验室, 北京 100871

2 中科院广州地球化学研究所, 有机地球化学国家重点实验室, 广州 510640

收稿日期: 2008-11-18 录用日期: 2009-05-18

**摘要:** 为建立一种能够描述源区排放的污染物对受体区域影响的空间分布格局和研究源汇定量关系的手段, 在轨迹计算的基础上, 利用概率方法和多介质模型方法, 建立了一种基于正向轨迹计算的污染物归趋概率模型(潜在汇影响函数), 并在模型中嵌入了诸如降解、干沉降和湿沉降等主要去除过程。作为实例, 运用这一模型研究了广东省排放的砷在大气中的空间分布及长距离输送。结果表明, 该模型能够实现既定目标, 在获得源区排放资料的基础上, 还可以获得由此形成的浓度空间分布格局以及相关的输送通量。

**关键词:** 大气模型; 轨迹计算; 概率模型; 源汇分析

文章编号: 0253-2468(2009)08-1598-06 中图分类号: X51 文献标识码: A

## A probabilistic model for transport of air pollutants based on forward trajectory calculations

WANG Rong<sup>1</sup>, LANG Chang<sup>1</sup>, CAO Jun<sup>1</sup>, TAO Shu<sup>1\*</sup>, ZHANG Gan<sup>2</sup>

1 College of Urban and Environmental Sciences, Laboratory for Earth Surface Processes, Peking University, Beijing 100871

2 State Key Laboratory of Organic Geochemistry, Guangzhou Institute of Geochemistry, CAS, Guangzhou 510640

Received 18 November 2008; accepted 18 May 2009

**Abstract** A Potential Receptor Influence Function (PRIF) was developed as a probabilistic model for air pollutant transport based on calculation of forward air mass trajectories. Major decay processes including phase distribution, degradation, dry deposition and wet precipitation were incorporated into the model which can be used to project the spatial distribution pattern or the influence of an emission from a given source region on a receptor region. With emission inventory available, concentration field and transport fluxes can be quantified, which is useful for investigating source-receptor relationships. The model was applied in Guangdong, China for addressing the spatial distribution and long-range transport of pyrene.

**Keywords** atmospheric modeling; trajectory calculation; probabilistic modeling; source-receptor analysis

### 1 引言 (Introduction)

大气传输模型是在一定空间尺度下, 对大气污染物在大气中传输、扩散、反应和清除等过程进行数值模拟和计算的科学研究方法。自 20 世纪 70 年代以来, 随着计算机和 GIS 技术的迅速发展, 以及大气化学、云雨物理、干湿沉降等过程机理研究方面的进展, 大气传输模型得到了长足发展, 大气过程模拟模型已成为研究污染物在大气中传输过程和

环境归趋的重要定量方法。这样的过程模型可以与观察和实验室模拟结果相互验证, 提供了定量表征和高效模拟的重要手段。

常见的大气污染物传输模型种类很多, 按照描述的空间尺度差异, 可分为微尺度、城市尺度、区域尺度、大陆尺度的大气传输模型; 按照时间尺度, 又可分为短期传输模型和长期传输模型。在目前应用较多的模型中, 基于拉格朗日模型的轨迹计算具有其独特的优点, 因此得到广泛应用。拉格朗日模型

基金项目: 中科院广州地化所有机地球化学国家重点实验室开放基金 (No. 2007CB407303); 国家自然科学基金 (No. 40771179)

Supported by the National Key Laboratory for Organic Geochemistry in Guangzhou and the National Natural Science Foundation of China (No. 40371070)

作者简介: 王戎 (1987—), 男, 博士研究生, Tel 13426198744, E-mail nevsaynevforever@gmail.com; \* 通讯作者 (责任作者), E-mail tao@urban.pku.edu.cn

**Biography:** WANG Rong (1987—), male, Ph.D. candidate, E-mail nevsaynevforever@gmail.com; \* **Corresponding author**, E-mail tao@urban.pku.edu.cn

假设扩散过程与颗粒和气团运动同步, 将轨迹定义为空气中一个无限小的质点在一定时间内跨越一定空间经历的路径, 其中正向和反向轨迹模型分别给出质点在未来和过去一系列时间坐标下的空间坐标 (Primbs *et al.*, 2007). 轨迹模型在科学研究中已有很长的历史, 轨迹模型能够清晰地给出气团和大气中物质迁移的空间轨迹, 反映大气物质的源汇关系, 在很多领域中得到广泛的应用. 譬如, D'Abreton和 Chiapelb等运用轨迹模型来研究水气和尘的运动轨迹, 评价气象特征的影响 (D'Abreton *et al.*, 1996); Cabezido等将轨迹模型与花粉的测量结合寻找大麻的种植地 (Cabezido *et al.*, 1997). 此外, 轨迹模型在环境科学中也被大量应用, 例如, Sofuoglu等用反向轨迹鉴别芝加哥多环芳烃和杀虫剂的源区 (Sofuoglu *et al.*, 2001), Yang等用反向轨迹分析了在采暖季节 Wajima的多环芳烃主要来源于中国东北 (Yang *et al.*, 2007), Waite等通过正向轨迹分析了加拿大原油菜种植区林丹施用对其它区域的影响 (Waite *et al.*, 2005).

尽管轨迹模型可以在相对简化的前提下表征污染物迁移的路径, 但只能提供气团及其携带的污染物迁移的路径信息, 定性反映源汇关系, 无法直接表征污染物分布的空间格局以及这种格局的动态变化. 基于轨迹计算的概率模型则在特定时段多时间起点轨迹计算的基础上, 运用统计分析方法, 计算大气污染物在不同气象条件下经迁移后达到不同空间位置的概率及其时间和空间分布格局. 许多研究基于反向轨迹的概率模型, 探讨了不同源区对到达特定位置的污染物的贡献概率的空间分布格局. Stohl提出了轨迹统计模型, 将污染源和受体区域联系起来, 并基于反向轨迹的计算, 分析了欧洲大气中含硫颗粒物的源 (Stohl 1996). 轨迹统计模型利用大量轨迹计算结果, 直接或间接描述污染物的迁移过程, 归纳出其中的统计信息, 用概率的方法进行定量描述. Hafner和 Hites建立基于轨迹统计的潜在源贡献函数, 分析美国五大湖区多氯联苯和多环芳烃的主要来源 (Hafner *et al.*, 2003); Hoh和 Hites用同样的轨迹统计模型分析了美国南方棉花种植区是美国南部毒杀芬和 DDE的主要源 (Hoh *et al.*, 2004); Primbs等基于反向轨迹统计提出源影响函数, 分析半挥发性有机物的可能贡献区域 (Primbs *et al.*, 2007).

虽然概率模型可以表征污染或污染源的时空

分布格局, 但由于一般概率模型没有考虑迁移过程中各种过程对污染物的影响, 得到的分布格局仅为某种趋势的半定量描述. 譬如, 对多环芳烃而言, 虽然是典型的具有环境持久性和长距离输送特征的有机污染物, 其在大气迁移过程中受到光催化降解、气固分配以及气地交换过程的显著影响 (Hakall *et al.*, 2001). 忽略这样的影响无疑将导致对分布格局认识的偏差. 此外, 无论是基于正向还是反向轨迹计算的概率模型一般都不包括排放通量信息, 因此得到的时空分布不可能表述为浓度场, 而后者是研究和决策支持的重要依据.

受反向轨迹统计模型和多介质模型的启发, 我们尝试建立了一种基于正向轨迹的统计模型 (或概率模型). 该模型可以用于表征自特定源区出发, 经大气迁移到达各受体区域的概率. 辅以排放清单以及在扩散过程中发生的分配、降解和沉降等主要迁移转换作用的定量描述, 可以定量表征污染物从源到汇的定量关系. 本文介绍了这种模型的基本方法, 分析了其优点和局限性, 并给出了简单的应用实例.

## 2 基于正向轨迹计算的概率模型 (A probabilistic model based on forward trajectory calculation)

借鉴 Hafner和 Hites建立的用于污染源区探讨得到的基于反向轨迹计算的潜在源贡献函数 (未包括降解等过程) (Hafner *et al.*, 2003), 本研究构建了基于正向轨迹计算的概率模型, 在模型中加入排放清单为输入项, 并嵌入分配、降解、沉降等主要过程. 由于该模型主要用于研究特定源对对象受体区域的污染影响, 故称之为“潜在汇影响函数 (Potential Receptor Influence Function, PRIF)”. 确切地说, PRIF表达了特定源区  $S$  (共  $n$  个格点) 在  $[T_1, T_2]$  时段 (h) 内排放的污染物在经历了  $[t_1, t_2]$  时间 (h) 迁移到达受体区域后, 到达所有  $m$  个受体点的空间概率分布 (排放与迁移计算时间步长均为 1 h), 其中到达受体格点  $r_i$  ( $i = 1 \dots m$ ) 的概率可以表达为:

$$\text{PRIF}(r_i, [t_1, t_2] | S, [T_1, T_2]) = \frac{1}{T_2 - T_1} \sum_{T=T_1}^{T_2} \left\{ \frac{1}{t_2 - t_1} \sum_{t=t_1}^{t_2} M(r_i, [t] | S, [T]) \right\} / \sum_{j=1}^n E_j(T) \quad (1)$$

式中,  $E_j(T)$  是  $T$  至  $T + dT$  时段源  $j$  的排放量,  $M(r_i, [t] | S, [T])$  代表任意时刻  $T$  至  $T + dT$  时段内排放

的污染物在经历  $t$  时间迁移历程后到达受体格点  $r_i$  的量:

$$M(r_i, [t] | S, [T]) = \begin{cases} 0 & r_i \neq r_j \\ \sum_{x=1}^k Q_{j_x}(T, t) & r_i = r_j \end{cases} \quad (2)$$

式中,  $r_{i(j)}$  ( $j=1, 2, \dots, n$ ) 是源  $j$  排放污染物在传输  $t$  h 后到达的受体,  $k$  是达到同一个受体  $r_i$  的源  $j_x$  ( $x=1, 2, \dots, k$ ) 的个数,  $Q_{j_x}(T, t)$  是源格点  $j_x$  在  $T$  至  $T + dt$  时段内排放的污染物经历  $t$  h 传输后的残余量, 可以递推求得:

$$\begin{cases} Q_{j_x}(T, 0) = E_{j_x}(T) \\ Q_{j_x}(T, t) = \theta_{j_x}(T, t-1) - \sum_{p=1}^P D_p \end{cases} \quad (3)$$

式中,  $D_p$  分别代表在  $t-1$  至  $t$  这 1h 内降解、干沉降和湿沉降等  $P$  种主要过程的去除量。

### 3 气固分配过程和去除过程的导入 (Introduction of partition and decay processes)

尽管此概率模型适用于不同污染物, 但由于污染物的环境行为各异, 故而关注的主要过程也不尽相同. 本文仅以多环芳烃为例, 介绍其主要去除过程的定量表述。

对多环芳烃而言, 化学降解、干沉降和湿沉降是其在大气中的主要去除过程, 而多环芳烃在大气中以气态或颗粒态存在, 由于这两种状态的多环芳烃的大气去除过程差异很大, 因此, 模型首先需要考虑大气中多环芳烃的气固分配. 根据逸度模型 (Mackay *et al.*, 1992), 在平衡条件下, 颗粒态 ( $C_p$ ) 与气态 ( $C_g$ ) 浓度比与气态分数 ( $f_g$ ) 分别为:

$$\frac{C_p}{C_g} = \frac{6 \times 10^6 F \cdot X}{P_s} \quad (4)$$

$$f_g = \frac{C_g}{C_p + C_g} \quad (5)$$

式中,  $F$  是逸度率,  $P_s$  是饱和蒸汽压,  $X$  是颗粒物在大气中的体积分数. 该分配分数即用于以下针对不同形态多环芳烃去除过程的计算。

大气中多环芳烃的主要去除过程包括光降解、湿沉降和干沉降. 发生光降解的主要是气态多环芳烃, 且与化学降解相比, 气态多环芳烃的干沉降量可以忽略不计, 因此, 式 3 中的  $D_k$  可包括光催化降解、湿沉降和干沉降的去除量 ( $D_{deg}$ ,  $D_{wet}$ ,  $D_{dry}$ ) 可表达为:

$$D_{deg} = Q_{j_x}(T, t-1) f_g \cdot (1 - e^{-K_{OH}[OH] \cdot \Delta t}) \quad (6)$$

$$D_{wet} = D_{wet g} + D_{wet p} = Q_{j_x}(T, t-1) f_g \cdot \left(1 - e^{-\frac{W_{p,i}}{H} \cdot \Delta t}\right) + Q_{j_x}(T, t-1) (1-f_g) \cdot \left(1 - e^{-\frac{S_{p,i}}{h} \cdot \Delta t}\right) \quad (7)$$

$$D_{dry} = D_{dry p} = Q_{j_x}(T, t-1) (1-f_g) \cdot \left(1 - e^{-\frac{v_d}{H} \cdot \Delta t}\right) \quad (8)$$

式中,  $D_{dry p}$ ,  $D_{wet g}$  和  $D_{wet p}$  分别代表颗粒态干沉降、气态和颗粒态湿沉降量 ( $g$ ),  $H$  为空气柱厚度 ( $m$ ),  $\Delta t$  指计算迁移降解过程的时间步长 ( $h$ ) (同前述计算排放和迁移时间步长).  $K_{OH}$  和  $[OH]$  分别代表光化学降解过程的反应速率常数 ( $dm^3 \cdot mol^{-1} \cdot h^{-1}$ ) 和大气中 OH 自由基浓度 ( $mol \cdot dm^{-3}$ ).  $v_d$  是颗粒态多环芳烃的干沉降速率 ( $m \cdot h^{-1}$ ).

对光降解,  $NO_3$  自由基和  $O_3$  等的反应的速率比其与 OH 自由基反应速率低几个量级 (Arey 1998), 因此, 在模型中仅考虑与 OH 自由基的反应。

颗粒态和气态多环芳烃的湿沉降用切割常数 (无量纲) 计算, 式 (7) 中,  $S_c$  和  $W_g$  分别是颗粒态和气态多环芳烃的切割常数, 雨雪条件下的  $W_g$  ( $W_{g, rain}$  和  $W_{g, snow}$ ) 分别用下式计算:

$$W_{g, rain} = \frac{RT}{H} \quad (9)$$

$$W_{g, snow} = K_{ia} SA_s \rho \quad (10)$$

式中,  $R$  是理想气体常数 ( $8.314 \text{ J} \cdot \text{K}^{-1} \cdot \text{mol}^{-1}$ ),  $T$  是温度 ( $K$ ),  $H$  是温度  $T$  下多环芳烃亨利常数 ( $\text{Pa} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{mol}^{-1}$ ),  $SA_s$  是雪粒的比表面积 ( $0.035 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$ ) (Roth *et al.*, 2004),  $\rho$  是雪片密度 ( $91700 \text{ g} \cdot \text{m}^{-3}$ ) (Halsall *et al.*, 2001),  $K_{ia}$  ( $m$ ) 是表面吸附常数, 其与多环芳烃的过冷液体饱和蒸汽压  $P_L^0$  (Torr) 有很好的线性关系 (Pankow, 1997), 可由下式计算:

$$\log K_{ia} = -1.2 \log P_L^0 - 5.82 \quad (11)$$

### 4 关于概率模型的讨论 (Discussion)

本文提出的基于轨迹计算的概率模型继承了轨迹模型的优点, 能够描述污染物随气团迁移的路径, 从而能用于源汇关系的定量研究. 而对通过特定时段气团轨迹的统计分析建立空间分布概率函数, 又提供了研究受体区污染强度的空间分异的有力工具. 此外, 主要迁移转化过程的嵌入使模型可以用于模拟非保守性污染物迁移和输送. 对多环芳烃而言, 气态/颗粒态间分配、光催化降解、干沉降和湿沉降代表了大气环境中发生的主要过程. 在模型应用于其它污染物时, 需要根据化合物的行为特征增加或减少其它相关重要过程。

目前用于研究区域尺度污染物迁移的模型很多,其中使用较为广泛的包括基于逸度概念的多介质模型(Wania *et al.*, 1999a, 1999b)、拉格朗日气团轨迹计算(Escudero *et al.*, 2006)以及常规扩散模型(Tao *et al.*, 2006)。基于逸度的多介质模型强调界面过程,假定各相均匀混合,空间变异表述能力很弱。本研究提供的模型不仅能利用轨迹计算方法表征污染物空间迁移路径,而且纳入了气-固分配和地-气交换这些最关键气-地交换过程,由于基于轨迹计算的概率模型的可塑性较强,完全可以用类似的方法纳入其它相关界面或相内过程,使模型适用于各种污染物或强调受到特别关注的过程。此外,在输入排放通量的前提下,可以获得超越概率意义的污染物对受体影响的空间格局。与扩散模型相比,本模型仅考虑平流交换,忽略了扩散过程,不利于精细刻画污染物在较小空间尺度下的变异。但是,本模型的优点在于可以直接从相关网站获取轨迹计算结果以及相关气象参数,对多数不具备较强模拟能力和气象参数处理能力的研究者而言,不失为可能的替代手段。

## 5 应用实例 (Model application)

以下以广东省为例,运用基于正向轨迹计算的概率模型,探讨2001年排放芘的扩散与输出。排放源区介于北纬 $20^{\circ}12'$ ~ $25^{\circ}31'$ ,东经 $109^{\circ}45'$ ~ $117^{\circ}20'$ 之间。广东省属于东亚季风区,冬季(12~2月)

盛行东北风或北风,来自北方的冷空气强度减弱,冬季较温暖,降水较少。春季(3~5月份)是过渡季节,气温和降水均处在上升阶段。夏季(6~8月份)受海洋气团的影响,偏南风带来丰沛的雨水。又是热带气旋影响广东的主要时段。秋季(9~11月份)冷空气开始影响广东,气温逐渐下降。此时多晴朗天气,开始进入干季。

根据公里网格排放计算模型获得 $60\text{ km}^2 \times 60\text{ km}^2$ 分辨率排放清单用作模型的输入(Zhang *et al.*, 2007)。轨迹计算采用美国海洋大气管理局的杂和单粒子拉格朗日轨迹模型(HYSPLIT)(Draxler *et al.*, 2003)。气象数据使用NOAA-NCEP/NCAR的重分析数据,数据坐标为经纬网格,空间分辨率 $2.5^{\circ}$ ,时间分辨率6 h。模型上边界设为10 km。轨迹起点高度10 m。轨迹计算起始时刻为每日0006001200和1800点(UTC)。轨迹计算长度为10d。

模型中包括了气-固分配过程、光降解过程和干湿沉降过程。模型参数参考有关文献(郎畅, 2007)。计算和绘图过程使用Matlab 2007b。图1为据此获得的2001年传输时间为0~5d和7~10d的年均芘的PRIF值的空间分布图。一方面,芘可以在几天内传输数千 km,另一方面,在经历了5d和10d的传输之后,由于上述去除作用,芘的总PRIF值分别从1降至 $2.56 \times 10^{-3}$ 和 $5.40 \times 10^{-6}$ ,分别下降了近3个和5个以上数量级。

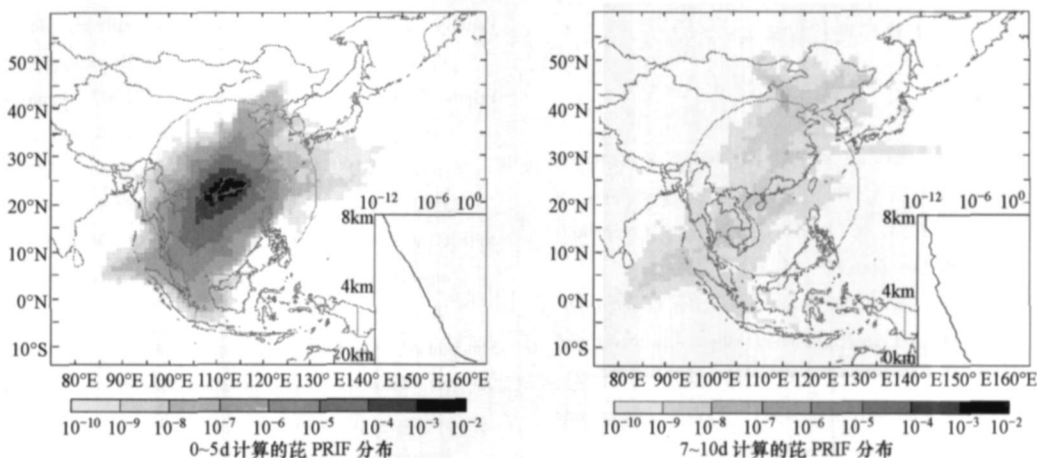


图1 根据轨迹概率模型得到的2001年芘的年均PRIF图(传送时间分别为0~5d(左)和7~10d(右)。图中圆半径为2000 km,平均垂直分布为右下角小图,用对数坐标显示)

Fig. 1 Distribution of probabilities calculated by PRIF for pyrene in 2001. Transport times are 0~5 days (left) and 7~10 days (right) (The radius of the circle is 2000 km. The attached map is the average vertical distribution of PRIF which is log-transferred)

占全部 PRIF 的 47.7%, 0~7d 期间, 该比例仍高达 47.5%。这是因为广东省芘的输出大部分在低层大气, 在传输早期 95% 的 PRIF 分布在 200 m 高度以下, 表现为随高度增加而 PRIF 值降低的明显趋势。相似的多环芳烃浓度垂直分布趋势也在广东省的广州市被观测到 (Li *et al.*, 2005), 这一特征与芘的排放以地面源为主有关。

除了对本地的影响外, 广东省的临近省和靠近大陆的南海海域也受到广东省排放的芘的影响, 比如 0~5d 传送时间内广东省排放的芘到达海南省的平均 PRIF 为  $3 \times 10^{-3}$ 。在广东省北部南岭山区中采集的苔藓中检测出较高的多环芳烃也说明了广东省作为源区对附近区域的影响 (Liu *et al.*, 2005)。尽管在迁移出源区后很快降解, 广东省排放的多环芳烃在 5d 的传输时间内仍影响到整个中国东部地区。广东省输出的多环芳烃主要向西南方向和东北方向, 呈现西南东北向拉长的特征。此外, 尽管有数量级的减弱, 广东省排放的芘在 5~10d 的传送后影响到整个印加半岛, 并达到印度洋。大部分向东北传输的芘停留在中国大陆边境内, 而有小部分向东迁移到太平洋地区。这部分向东迁移的多环芳烃主要受西风带的影响在自由大气层(对流层中边界层的上半部分, 大约 1~10 km 高度)中迁移。一旦被抬升到自由大气层, 西风带就能够在几天的时间内将其向东携带传输几千 km。

责任作者简介: 陶澍 (1950—), 男, 教授, 博士, 主要从事持久性有机污染物行为与区域环境过程研究。

#### 参考文献 (References):

Arey J. 1998 Atmospheric reactions of PAHs including formation of nitroarenes. In Neilson A. H. (Ed), *The Handbook of Environmental Chemistry 3.1 PAHs and Related Compounds (Chemistry)* [M]. Berlin: Springer, 347—385

Brubaker J W, Hites R A. 1998 OH Reaction kinetics of polycyclic aromatic hydrocarbons and polychlorinated dibenzo-p-dioxins and dibenzofurans [J]. *Journal of Physical Chemistry*, 102: 915—921

Cabezido B, Recio M, Sanchez-Laulhe J M. 1997 Atmospheric transportation of marijuana pollen from North Africa to the southwest of Europe [J]. *Atmospheric Environment* 31: 3323—3328

Dalberton P C, Tyson P D. 1996 Three-dimensional kinematic trajectory modeling of water vapor transport over Southern Africa [J]. *Water Science & Technology*, 22: 297—306

Draxler R R, Rolph G D. 2003 HYSPLIT (Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory) Model [M]. NOAA Air Resources Laboratory, Silver Spring

Esudero M, Stein A, Draxler R R, *et al.* 2006 Determination of the contribution of northern Africa dust source areas to PM<sub>10</sub> concentrations over the central Iberian Peninsula using the Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory model (HYSPLIT) model [J]. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres* 111: D06210

Hafner W D, Hites R A. 2003 Potential sources of pesticides PCBs and PAHs to the atmosphere of the great lakes [J]. *Environmental Science & Technology* 37: 3764—3773

Halsall C J, Sweetman A J, Barrie L A, *et al.* 2001 Modelling the behaviour of PAHs during atmospheric transport from the UK to the Arctic [J]. *Atmospheric Environment* 35: 255—267

Hoh E, Hites R A. 2004 Sources of toxaphene and other organochlorine pesticides in North America as determined by air measurements and potential source contribution function analyses [J]. *Environmental Science & Technology* 38: 4187—4194

郎畅. 2007 珠江三角洲多环芳烃归趋与输出模拟 [D]. 北京: 北京大学

Lang C. 2007 Fate and Outflow model for Polycyclic Aromatic Hydrocarbon emitted from Pearl Delta [D]. Beijing: Peking University (in Chinese)

Li C L, Fu J M, Sheng G Y, *et al.* 2005 Vertical distribution of PAHs in the indoor and outdoor PM<sub>2.5</sub> in Guangzhou, China [J]. *Building Environment* 40: 327—339

Liu X, Zhang G, Jones K C, *et al.* Compositional fractionation of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in mosses (*Hypnum plum aeformae* WLS) from the northern slope of Nanling Mountains, South China [J]. *Atmospheric Environment* 39: 5490—5499

Mackay D, Shiu W, Ma K. 1992 *Illustrated Handbook of Physical-Chemical Properties and Environmental Fate for Organic Chemicals* [M]. FL: Lewis Publishers, 13—32

Pankow J F. 1997 Partitioning of semi-volatile organic compounds to the air/water interface [J]. *Atmospheric Environment* 31: 927—929

Primbs T, Simonich S L, Schemm D. 2007 Atmospheric outflow of anthropogenic semi-volatile organic compounds from East Asia in spring 2004 [J]. *Environmental Science & Technology*, 41: 3551—3558

Roth C M, Goss K, Schwarzenbach R P. 2004 Sorption of diverse organic vapours to snow [J]. *Environmental Science & Technology*, 38: 4078—4084

Sofuoglu A, Odabasim, Tasdemir Y. 2001 Temperature dependence of gas-phase polycyclic aromatic hydrocarbon and organochlorine pesticide concentrations in Chicago air [J]. *Atmospheric Environment* 35: 6503—6510

Stohla A. 1996 Trajectory statistics—A new method to establish source-receptor relationships of air pollutants and its application to the transport of particulate sulfate in Europe [J]. *Atmospheric Environment* 30: 579—587

Tao S, Li X R, Yang Y, *et al.* 2006 Dispersion modeling of polycyclic aromatic hydrocarbons from combustion of biomass and fossil fuels and production of coke in Tianjin, China [J]. *Environmental*

- Science & Technology, 15: 4586–4591
- Waite D T, Hunter F G, Wiers B J. 2005. Atmospheric transport of lindane ( $\gamma$ -hexachlorocyclohexane) from the Canadian prairies—a possible source for the Canadian Great Lakes, Arctic and Rocky mountains [J]. Atmospheric Environment, 39: 275–282
- Wania F, Mackay D, Li Y F. 1999a. Global chemical fate of  $\alpha$ -Hexachlorocyclohexane. 1. Evaluation of a global distribution model [J]. Environmental Toxicology and Chemistry, 18: 1390–1399
- Wania F, Mackay D, Li Y F, *et al*. 1999b. Global chemical fate of  $\alpha$ -Hexachlorocyclohexane. 2. Use of a global distribution model for mass balancing, source apportionment and trend prediction [J]. Environmental Toxicology and Chemistry, 18: 1400–1407
- Yang X Y, Okada Y, Tang N. 2007. Long-range transport of polycyclic aromatic hydrocarbons from China to Japan [J]. Atmospheric Environment, 41: 2710–2718
- Zhang Y X, Tao S, Cao J. 2007. Emission of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in China by County [J]. Environmental Science & Technology, 41: 683–687