

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV

HUANJING KEXUE

■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2020

Vol.41 No.1

第41卷 第1期

目次

近20年来中国PM _{2.5} 污染演变的时空过程	时燕, 刘瑞梅, 罗毅, 杨昆 (1)
2007~2016年上海颗粒物浓度特征与气候背景异同分析	郑庆峰, 史军, 谈建国, 段玉森, 林燕芬, 徐卫忠 (14)
夏季大气PM _{2.5} 中元素特征及源解析:以华中地区平顶山-随州-武汉为例	刘威杰, 石明明, 程敏, 黎莹, 朱戈昊, 邢新丽, 孔少飞, 张家泉, 祁士华 (23)
呼包鄂地区冬季、夏季PM _{2.5} 污染特征	李伊明, 刘佳媛, 史国良, 皇甫延琦, 张昕, 杨奕, 冯银厂 (31)
2019年元旦前后石家庄市重污染过程PM _{2.5} 污染特征及来源解析	周静博, 段青春, 王建国, 杨鹏, 刘煥武, 李梅, 靳伟 (39)
基于模型模拟的成都市PM _{2.5} 污染来源解析	许艳玲, 易爱华, 薛文博 (50)
北京市PM _{2.5} 中砷污染特征	石绍萱, 杨艳蓉, 秦娟娟, 周雪明, 段青春, 谭吉华, 陈荣志 (57)
夏秋季宁波市气态元素汞(GEM)污染特征及潜在源区贡献分析	易辉, 林佳梅, 蔡秋亮, 王克强, 陈进生, 佟磊, 李建荣, 肖航 (65)
安阳市大气PM _{2.5} 中水溶性离子季节特征及来源解析	孙有昌, 姜楠, 王申博, 段时光, 张瑞芹 (75)
新乡市夏冬季节PM _{2.5} 稳定碳同位素特征分析	闫广轩, 宋鑫, 张靖雯, 张朴真, 王力鹏, 张佳羽, 杨争, 曹治国, 樊静, 王跃思, 刘子锐 (82)
基于颗粒物化学组分粒径分布特征的源解析方法构建与评估	梁永莉, 田瑛泽, 刘童, 冯银厂 (90)
超低排放改造后燃煤电厂细颗粒物排放特征	王润芳, 马大卫, 姜少毅, 朱仁斌, 何军, 张本耀 (98)
京津冀地区城市臭氧污染趋势及原因探讨	余益军, 孟晓艳, 王振, 周崑, 于红霞 (106)
安阳市近地面臭氧污染特征及气象影响因素分析	杨健, 尹沙沙, 于世杰, 王丽娟, 张瑞芹, 郝建尤, 苏方成, 齐艳杰 (115)
长江三角洲2017年机动车IVOCs排放清单构建及其对SOA的生成影响	王倩, 黄凌, 王杨君, 殷司佳, 张琪, 易鑫, 李莉 (125)
华东典型城市非道路移动机械排气烟度	鲁君, 胡馨遥, 杨强, 唐伟, 夏阳, 井宝莉, 陈昀, 黄成 (133)
国内外储油库VOCs排放现状与标准分析	胡玮, 任碧琪, 黄玉虎, 秦建平, 卞吉玮, 吴清柱 (139)
四乙基愈创木酚液相·OH氧化SOA产率及特征分析:初始浓度的影响	庄雨, 陈彦彤, 李旭东, 马帅帅, 赵竹子, 叶招莲, 盖鑫磊 (146)
乌鞘岭南、北坡降水稳定同位素特征及水汽来源对比	徐秀婷, 贾文雄, 朱国锋, 马兴刚, 张显, 袁瑞丰, 张志远, 石阳 (155)
长江源多年冻土区地下水氢氧稳定同位素特征及其影响因素	汪少勇, 何晓波, 丁永建, 常福宣, 吴锦奎, 胡召富, 王利辉, 杨贵森, 邓明珊 (166)
巴尔喀什湖流域水化学和同位素空间分布及环境特征	沈贝贝, 吴敬禄, 吉力力·阿不都外力, A. S. Saparov, Gulnura Isanova (173)
城市湖泊水环境整治对改善水质的影响:以蠡湖近30年水质变化为例	田伟, 杨周生, 邵克强, 潘辉, 胡洋, 白承荣, 姜星宇, 高光, 汤祥明 (183)
典型药物及个人护理品在黄东海海域水体中的检测、分布规律及其风险评估	陈贤, 张彩杰, 杨桂朋, 张婧, 刘梦 (194)
长江南京段水源水中有机磷酸酯的污染特征与风险评估	李栋, 张圣虎, 张芹, 王博, 卜元卿, 赵欣, 李辉, 宋宁慧, 郭瑞昕 (205)
雄安新区-白洋淀冬季冰封期水体溶解性有机物的空间分布、光谱特征及来源解析	周石磊, 孙悦, 张艺冉, 蒋永丰, 尹璐, 黄廷林, 李再兴, 罗晓, 战江, 王函 (213)
白洋淀表层沉积物元素的空间特征、风险评价及来源分析	汪敬忠, 刘卓, 魏浩, 吴玉会, 占水娥, 朱迟, 张益森 (224)
松花江表层沉积物PAEs分布特征及生态风险评价	王欢, 杨永哲, 王海燕, 董伟丰, 闫国凯, 常洋, 李泽文, 赵远哲, 凌宇 (232)
鄱阳湖湖口-长江段沉积物中微塑料与重金属污染物的赋存关系	李文华, 简敏菲, 刘淑丽, 江玉梅, 邓艳彬, 朱琳 (242)
臭氧对生物活性炭中微生物及出水消毒副产物的影响	刘宝明, 王夕希, 张晓夏, 顾艳芳, 李雨平, 阮文权, 缪恒峰, 潘杨 (253)
兰州市西固区儿童饮水重金属暴露与健康风险精细化评估	陈月芳, 孙善伟, 段小丽, 许锦荣, 王娟, 康艺瑾, 梁为纲, 曹素珍 (262)
镁铁层状双金属氢氧化物对磷酸盐的吸附作用及对内源磷释放的控制效果及机制	吴俊麟, 林建伟, 詹艳慧, 程永前, 柏晓云, 辛慧敏, 常明玥 (273)
一硫代磷酸盐在介质上的吸附特征及机制	廖丹雪, 单慧媚, 彭三曦, 潘敖然, 黄健, 陈辉, 赵超然 (284)
酸碱复合改性海泡石亚结构特征及其对Cd(II)吸附性能	谢厦, 徐应明, 闫翠侠, 罗文文, 孙约兵 (293)
脱氮菌剂在低溶解氧黑臭水体中氮代谢特征	赵志瑞, 刘硕, 李铎, 李海萍, 李方红, 张佳瑶, 白志辉 (304)
宏基因组方法分析医药化工废水厂中抗生素耐药菌及抗性基因	陈红玲, 张兴桃, 王晴, 姚沛琳 (313)
淀粉废水处理系统中活性污泥的微生物群落结构及多样性分析	赵婷婷, 乔凯, 王蕾, 张伟, 竺建荣, 唐一, 胡滨, 王香莲, 杨静, 景在涛 (321)
基于SBR-ABR实现PN-SAD耦合工艺的运行与优化调控	陈重军, 张敏, 姜滢, 郭萌蕾, 谢嘉玮, 谢军祥, 沈耀良 (330)
基于间歇饥饿的SNAD工艺运行	李冬, 刘志诚, 徐贵达, 王玉颖, 张杰 (337)
反硝化-高效部分亚硝化-厌氧氨氧化工艺处理老龄垃圾渗滤液	陈小珍, 汪晓军, Karasuta Chayangkun, 周松伟, 钟中, 陈振国, 陈晓坤 (345)
硝化微颗粒污泥快速培养及其亚硝化功能快速实现	刘文如, 宋家俊, 王建芳, 沈耀良 (353)
高频曝停下曝时间对亚硝化颗粒污泥性能的影响	张杰, 劳会妹, 李冬, 魏子清 (360)
中国东北沈抚地区土壤中PBDEs的残留、来源及风险评价	向鑫鑫, 鲁垠涛, 阮起扬, 赖偲, 孙绍斌, 姚宏, 张战胜 (368)
某焦化场地非均质包气带中多环芳烃(PAHs)来源及垂向分布特征	孟祥帅, 吴萌萌, 陈鸿汉, 岳希, 陶抒远 (377)
北京蔬菜地土壤中抗生素抗性基因与可移动元件的分布特征	张汝凤, 宋渊, 高浩泽, 程首涛, 孙艳梅, 王旭明 (385)
长期施肥和耕作下紫色土坡耕地土壤C、N、P和K化学计量特征	杜映妮, 李天阳, 何丙辉, 贺小容, 付适 (394)
亚热带稻田土壤碳氮磷生态化学计量学特征	宋佳龄, 盛浩, 周萍, 段良霞, 周清, 张杨珠 (403)
宛山荡农田土壤氮迁移过程反硝化与厌氧氨氧化	陈志浩, 覃云斌, 丁帮琛, 胡优优, 陈湜, 李正魁 (412)
秸秆炭化还田对滴灌棉田土壤微生物代谢功能及细菌群落组成的影响	王晶, 马丽娟, 刘泽华, 陆伟, 侯振安 (420)
基于PMF模型的九龙江流域农田土壤重金属来源解析	黄华斌, 林承奇, 胡恭任, 于瑞莲, 郝春莉, 陈枫桦 (430)
塔里木盆地东南缘绿洲区土壤钾空间分布及农作物钾富集特征	陈云飞, 周金龙, 曾妍妍, 王松涛, 杜江岩, 孙英, 顾思博 (438)
广西典型碳酸盐岩区农田土壤-作物系统重金属生物有效性及迁移富集特征	马宏宏, 彭敏, 刘飞, 郭飞, 唐世琪, 刘秀金, 周亚龙, 杨柯, 李括, 杨峥, 成杭新 (449)
不同钝化剂对微碱性土壤镉、镍形态及小麦吸收的影响	张静静, 朱爽阁, 朱利楠, 柳海涛, 杨金康, 化党领 (460)
不同钝化剂对鸡粪堆肥重金属钝化效果及其腐熟度指标的影响	栾润宇, 高珊, 徐应明, 纪艺凝, 闫翠侠, 孙约兵 (469)
黄土丘陵区退耕草地土壤呼吸及其组分对氮磷添加的响应	周俊杰, 陈志飞, 杨全, 赖帅彬, 王智, 徐炳成 (479)
炉渣与生物炭施加对福州平原水稻田温室气体排放的后续影响	蓝兴福, 王晓彤, 周雅心, 金强, 许旭萍, 王维奇 (489)
《环境科学》征订启事(89)	
《环境科学》征稿简则(97)	
信息(303, 329, 344)	

安阳市近地面臭氧污染特征及气象影响因素分析

杨健¹, 尹沙沙^{1*}, 于世杰¹, 王丽娟², 张瑞芹¹, 郝建尤³, 苏方成¹, 齐艳杰¹

(1. 郑州大学化学与分子工程学院, 环境科学研究院, 郑州 450001; 2. 生态环境部环境规划院, 北京 100012; 3. 安阳市生态环境局, 安阳 455000)

摘要: 基于国控环境空气质量监测站数据分析了安阳市 2014~2017 年不同功能分区(城市、郊区和工业)点位的臭氧(O_3)污染特征和变化规律,并研究了 O_3 污染的气象影响因素和潜在源分布。结果表明,2014~2017 年安阳市各站点 O_3 年均浓度上升明显, O_3 超标日的出现从 2015 年开始不断提前,最早在 2017 年 4 月出现;工业区点位 O_3 第 90 百分位数和平均值增长最快,年均分别增长 $16.0 \mu g \cdot m^{-3}$ 和 $13.0 \mu g \cdot m^{-3}$,郊区点位 O_3 第 5 百分位数增长最快,年均增长 $13.2 \mu g \cdot m^{-3}$;安阳市 O_3 月变化呈“M”型,且具有明显的空间差异;温度对 O_3 浓度起主导作用;气温大于 $23^\circ C$ 、相对湿度小于 58% 和西南偏南方向 $5 m \cdot s^{-1}$ 风速与高浓度 O_3 污染密切相关;不同季节 O_3 潜在来源差异明显,夏季主要分布在河北南部、湖北北部和沈阳北部。2017 年 5 月首次出现 O_3 重污染日,工业点位 O_3 小时平均浓度高达 $405 \mu g \cdot m^{-3}$,重污染事件与西部干热气团转移导致持续高温有关。

关键词: 臭氧(O_3);城郊差异;安阳;气象条件;潜在源分析(PSCF)

中图分类号: X515 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2020)01-0115-10 DOI: 10.13227/j.hjxx.201907244

Characteristic of Surface Ozone and Meteorological Parameters Analysis in Anyang City

YANG Jian¹, YIN Sha-sha^{1*}, YU Shi-jie¹, WANG Li-juan², ZHANG Rui-qin¹, HAO Jian-you³, SU Fang-cheng¹, QI Yan-jie¹

(1. Research Institute of Environmental Science, College of Chemistry and Molecular Engineering, Zhengzhou University, Zhengzhou 450001, China; 2. Chinese Academy for Environmental Planning, Beijing 100012, China; 3. Anyang Ecological Environment Bureau, Anyang 455000, China)

Abstract: This study uses the national ambient air quality station data of Anyang City from 2014 to 2017 to analyze the characteristics and variation rules of ozone (O_3) in different functional zones (urban, suburban, and industrial), and also studies meteorological influencing factors and potential source distributions of O_3 pollution. The results showed that the O_3 concentration in Anyang increased significantly between 2014 and 2017, whereby pollution started to advance from 2015 and the earliest occurrence of an O_3 pollution episode was in April 2017. The 90th percentile and average concentrations of O_3 in the industrial zone increased at faster rates (average annual growth of $16.0 \mu g \cdot m^{-3}$ and $13.0 \mu g \cdot m^{-3}$, respectively) than of those in the urban and suburban zones. The O_3 concentrations at the suburban site showed the fastest increase of all zones at the 5th percentile (average annual growth of $13.2 \mu g \cdot m^{-3}$). The monthly variation in O_3 concentrations in Anyang showed an “M” pattern that varied spatially depending on the zone. Temperature played a leading role in O_3 concentrations; air temperatures $> 23^\circ C$, relative humidity $< 58\%$, and a wind speed of $5 m \cdot s^{-1}$ in a south-southwesterly direction were closely related to the occurrence of high O_3 concentrations. Potential sources of O_3 in different seasons were significantly different, and mainly distributed in southern Hebei, northern Hubei, and northern Shenyang in summer. The first heavy O_3 pollution day in the studied period was in May 2017, at which time the highest O_3 concentration was found in the industrial zone (up to $405 \mu g \cdot m^{-3}$). This heavy O_3 pollution episode was related to the continuous high temperature that was caused by the transfer of a dry, hot air mass in western China.

Key words: ozone (O_3); urban-rural difference; Anyang; meteorological conditions; potential source analysis function (PSCF)

近地面臭氧(O_3)与许多其他气态污染物直接排放不同,主要由氮氧化物($NO_x = NO + NO_2$)和挥发性有机化合物(VOCs)经过一系列光化学反应产生^[1]。由于强氧化作用,近地面 O_3 浓度的升高可对人体健康和动植物生存构成威胁,增加急诊室就诊率、住院率与呼吸相关的死亡率以及造成农作物产量下降^[2,3]。同时还会影响区域和城市环境空气质量。

近几十年来,随着中国经济和城市化的快速发

展,化石燃料需求急剧增加,导致大量光化学污染前体物排放,我国的 O_3 污染问题越来越突出^[4]。早期关于 O_3 污染的研究集中在长江三角洲、珠江三角洲和京津冀地区^[5~7]。2012 年以来,随着新的环境空气质量标准颁布,我国地级市监测能力逐步提高,

收稿日期: 2019-07-29; 修订日期: 2019-08-15

基金项目: 国家重点研发计划项目(2017YFC0212403)

作者简介: 杨健(1993~),男,硕士研究生,主要研究方向为大气污染防治, E-mail: 18739930980@126.com

* 通信作者, E-mail: shashayin@zzu.edu.cn

确保了 O_3 等 6 项标准污染物的实时监测与发布. 研究学者基于上述数据积累开展了不同地区 O_3 的长时间序列分析. 刘玉莲等^[8]分析了 2014~2017 年哈尔滨市 O_3 污染特征,程麟钧等^[9]分析了中国 338 个城市的时空变化特征,齐冰等^[10]对 2012~2016 年杭州市 O_3 污染变化和气象影响因素进行了分析. 此外, O_3 在空间分布上具有明显的城郊差异,一般情况下郊区高于市区. Wang 等^[11]2005 年 6 月到 7 月在北京郊区站监测发现 O_3 含量高达 286×10^{-9} , Gao 等^[12]发现上海市 2006~2016 年城市站 O_3 逐年上升,而郊区站有小幅下降趋势. 同时,气象条件对 O_3 的形成、扩散和稀释至关重要^[13]. 陈培章等^[14]对兰州城区 O_3 污染特征研究认为,西风、近地面气温和 850 hPa 相对湿度等气象条件对 O_3 变化起主导作用. 上述研究表明,我国不同区域和不同城市的 O_3 污染特征、主要气象影响因素和潜在来源均有差异.

安阳市位于河南省最北部,地处太行山东部和华北平原西部,晋冀豫三省交界,是“2+26”京津冀大气污染传输通道城市之一. 由于安阳市特殊的地理位置和产业结构偏重、能源结构偏煤和交通结构偏公路等原因,目前大气污染形势十分严重. 2018 年生态环境部发布的全国 169 个重点城市空气质量排名中,安阳排名 164 位. 随着当地政府一系列污染控制措施的实施,颗粒物污染问题开始逐步改善,而夏季 O_3 浓度则不降反升,污染形势仍旧严峻.

因此,本文利用 2014~2017 年国控环境空气质量监测站数据和常规气象数据,对安阳市 O_3 污染特

征、变化规律、气象影响因素和一次典型污染过程进行研究,加深对典型工业城市 O_3 污染特征的认识,以期对 O_3 污染控制提供科学支撑.

1 材料与方法

1.1 站点与数据来源

安阳市共有 5 个国控环境空气质量监测站,包括一个郊区对照站棉花研究所(以下简称“棉研所”)站,4 个普通城市站:银杏小区、红庙街、信访局和铁佛寺站. 本研究获取到空气质量 6 参数($PM_{2.5}$ 、 PM_{10} 、 SO_2 、 O_3 、 NO_2 和 CO)逐小时数据,常规气象数据使用国家基准站(安阳市气象局站)逐小时数据,包括气温、气压、相对湿度、降水、风向和风速. 数据时段均为 2014~2017 年.

对于城郊差异的分析,本研究将 4 个城市站的平均值定义为城市平均值,对于污染物的月变化和日变化,则挑选其中 3 个站点,代表不同功能分区(图 1). ①城区:银杏小区($36^{\circ}04'N$, $114^{\circ}21'E$),位于市区中心南部,周边以居民住宅为主,外围有商业、行政机关单位和学校,人口及建筑密度较大;②工业区:铁佛寺($36^{\circ}06'N$, $114^{\circ}17'E$),周边以工业企业为主,涉及冶金、耐材、化工、制药、钢铁和燃煤电厂等 100 余家企业;③郊区:棉研所($36^{\circ}03'N$, $114^{\circ}29'E$),距安阳市中心约 11 km,周边以村庄农田为主.

1.2 分析方法

依据环境空气质量指数(AQI)技术规定(试行)^[15], O_3 污染分为优、良、轻度、中度和重度污

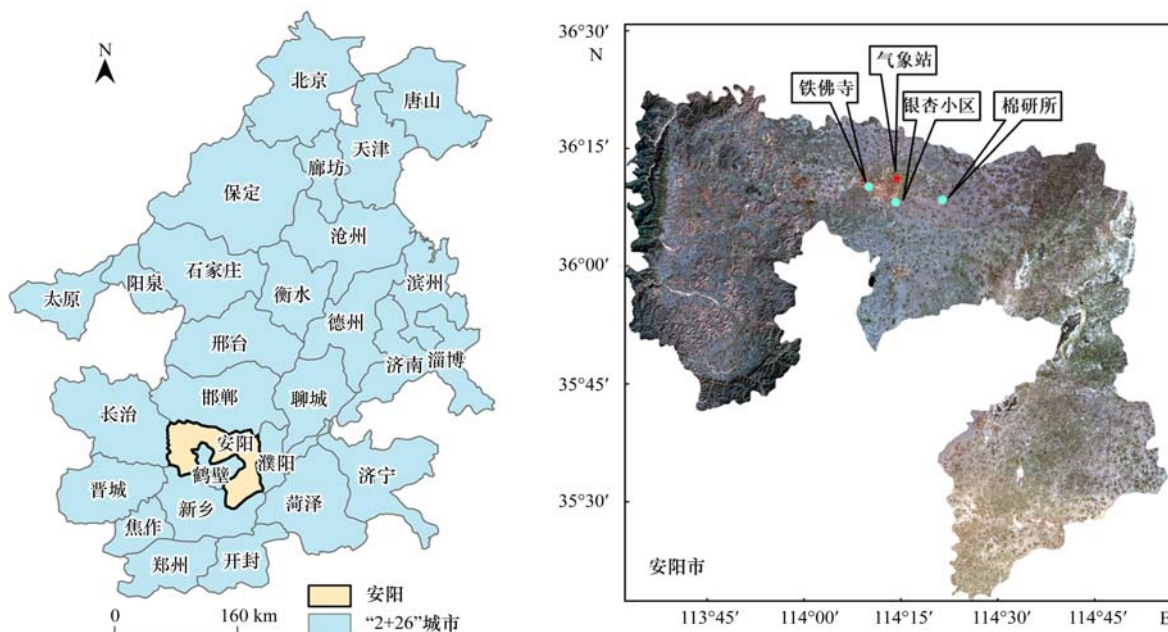


图 1 安阳市地理位置和监测站点分布示意

Fig. 1 Location of Anyang City and the air quality monitoring stations

染,对应的每日最大 8 h 滑动平均值(MDA8) O_3 浓度范围分别为 0 ~ 100、100 ~ 160、160 ~ 215、215 ~ 265 和 265 ~ 800 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$.

当 O_3 污染水平为轻度污染及以上时, O_3 超标日定义为 1 d, O_3 小时超标定义为 O_3 小时均值超过二级标准(200 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)的情况, O_3 和 CO 的评价浓度分别为评价期内的第 90 百分位和第 95 百分位.

1.3 潜在源分析

潜在源贡献因子分析(potential source contribution function, PSCF)是一种基于空气质量监测数据和后向轨迹统计,通过计算每个网格的相对污染贡献点来识别潜在来源区域的方法^[16]. 首先,后向轨迹采用 HYSPLIT(hybrid single-particle lagrangian integrated trajectory Model)模式进行计算,该模式是欧拉和拉格朗日混合型的扩散模式^[17],其平流和扩散计算采用拉格朗日方法,可以跟踪气流所携带的粒子的移动方向,用于计算和分析大气污染物长距离输送和扩散轨迹. 选取 2016 年为基准年,将全年划分为四季(春季:3 ~ 5 月,夏季:6 ~ 8 月,秋季:9 ~ 12 月,冬季:12 ~ 2 月). 基于美国国家环境预报中心(NCEP)提供的全时段全球资料同化系统(GDAS)数据($1^\circ \times 1^\circ$)计算气团 72 h 后向轨迹,计算时间为全年,间隔为 6 h(UTC 04:00、10:00、16:00、20:00;即当地时间 00:00、06:00、12:00 和 18:00),模拟高度为 500 m,能够准确反映

边界层平均流场特征^[18].

随后,基于 GIS 平台的 Trajstat^[19]工具对安阳市 O_3 进行 PSCF 分析. PSCF 值为所选研究区域内经过 ij^{th} 网格的污染轨迹数 m_{ij} 与经过该网格的所有轨迹数 n_{ij} 的比值,见公式(1):

$$\text{PSCF}_{ij} = \frac{m_{ij}}{n_{ij}} \quad (1)$$

考虑计算过程中总端点少的单元格会导致结果偏大并可能导致极高的不确定性,引入权重函数 $W(n_{ij})$: 当某一网格中的 n_{ij} 小于研究区域每个网格平均轨迹点数(n_{ave})的 3 倍时,需乘 $W(n_{ij})$ 来降低 PSCF 结果的不确定性,即 $\text{WPSCF} = W(n_{ij}) \times \text{PSCF}_{ij}$. 权重值参数的选取参照以往学者经验^[20],定义如下:

$$W(n_{ij}) = \begin{cases} 1.0, & (n > 3n_{\text{ave}}) \\ 0.7, & (1.5n_{\text{ave}} < n \leq 3n_{\text{ave}}) \\ 0.4, & (n_{\text{ave}} < n \leq 1.5n_{\text{ave}}) \\ 0.2, & (n \leq n_{\text{ave}}) \end{cases} \quad (2)$$

2 结果与讨论

2.1 O_3 及其前体物时间变化

2.1.1 年际变化特征

安阳市 2014 ~ 2017 年 O_3 的 MDA8 浓度级别逐日变化如图 2 所示. 总体来看, O_3 超标时间一般发生在 4 ~ 9 月,最高水平出现在 5 ~ 6 月,以轻中度污

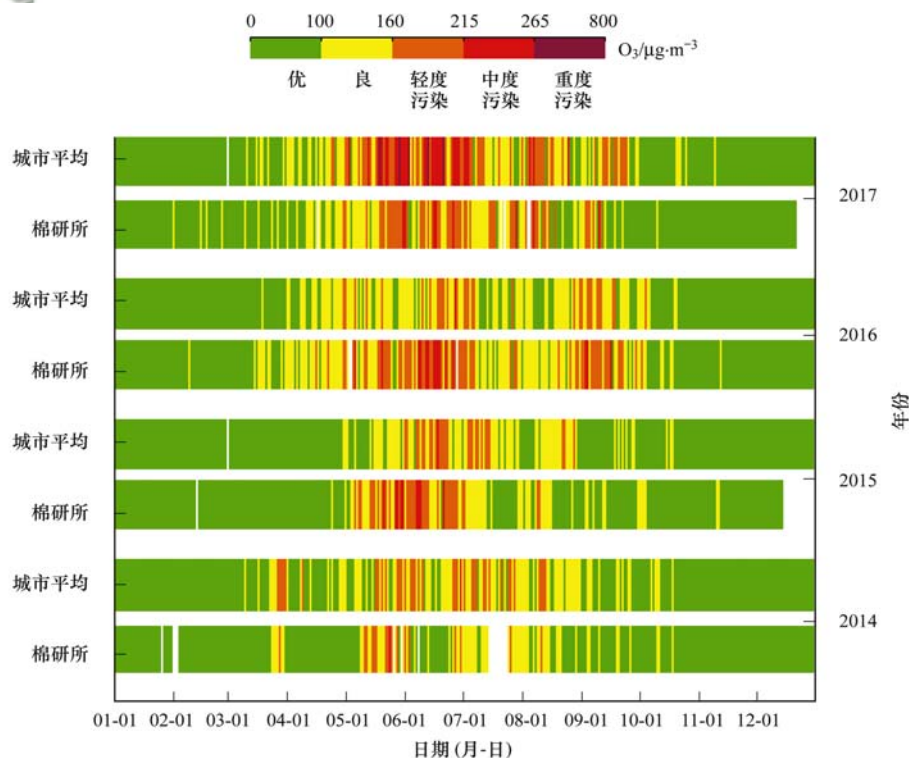


图 2 2014 ~ 2017 年棉研所站和城市站 O_3 MDA8 污染级别时间序列

Fig. 2 Time series of O_3 MDA8 pollution level in ICR site and urban site from 2014 to 2017

染为主,城市站和棉研所站 O_3 超标时间范围和超标程度均在增加,郊区棉研所站较城市站严重,表现出明显的城郊差异. 相比 2016 年,城市站污染程度有所加重,并且首次出现 5 d 重度污染.

对比来看,从 2014 ~ 2017 年,城市站 O_3 超标起始时间从 6 月不断提前到 4 月. 且不容乐观的是,虽然 2017 年污染时间与上年相似,但超标天数却呈现明显增加态势, O_3 中度污染及以上的超标时间几乎覆盖了 5 ~ 9 月. 与城市站相似,棉研所 O_3 超标起始时间也逐渐提前,从 6 月初提前至 5 月中旬.

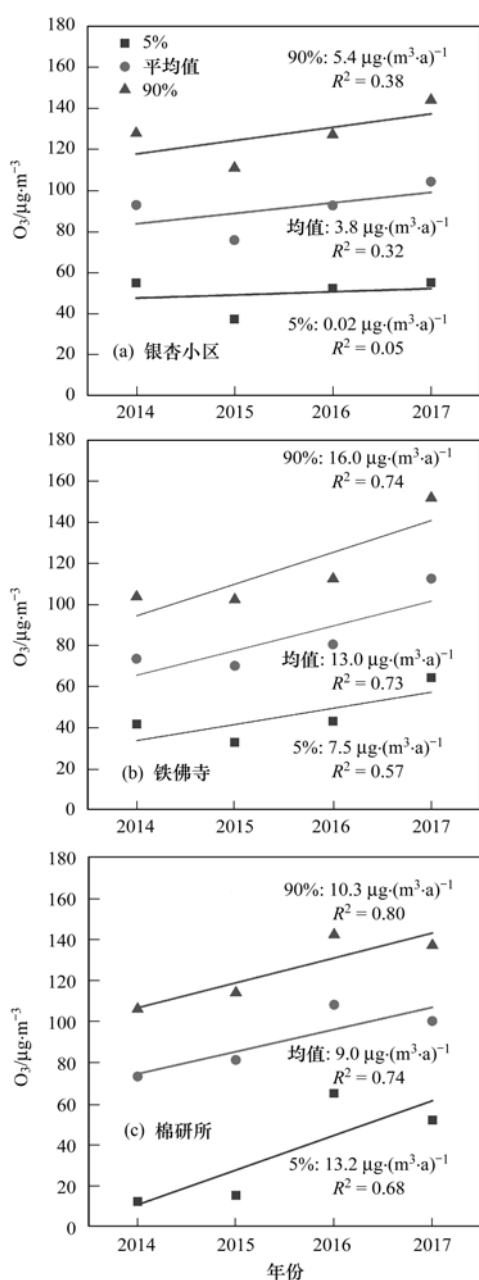


图 3 3 个不同站点 MDA8 O_3 浓度第 5 百分位数、第 90 百分位数和平均值

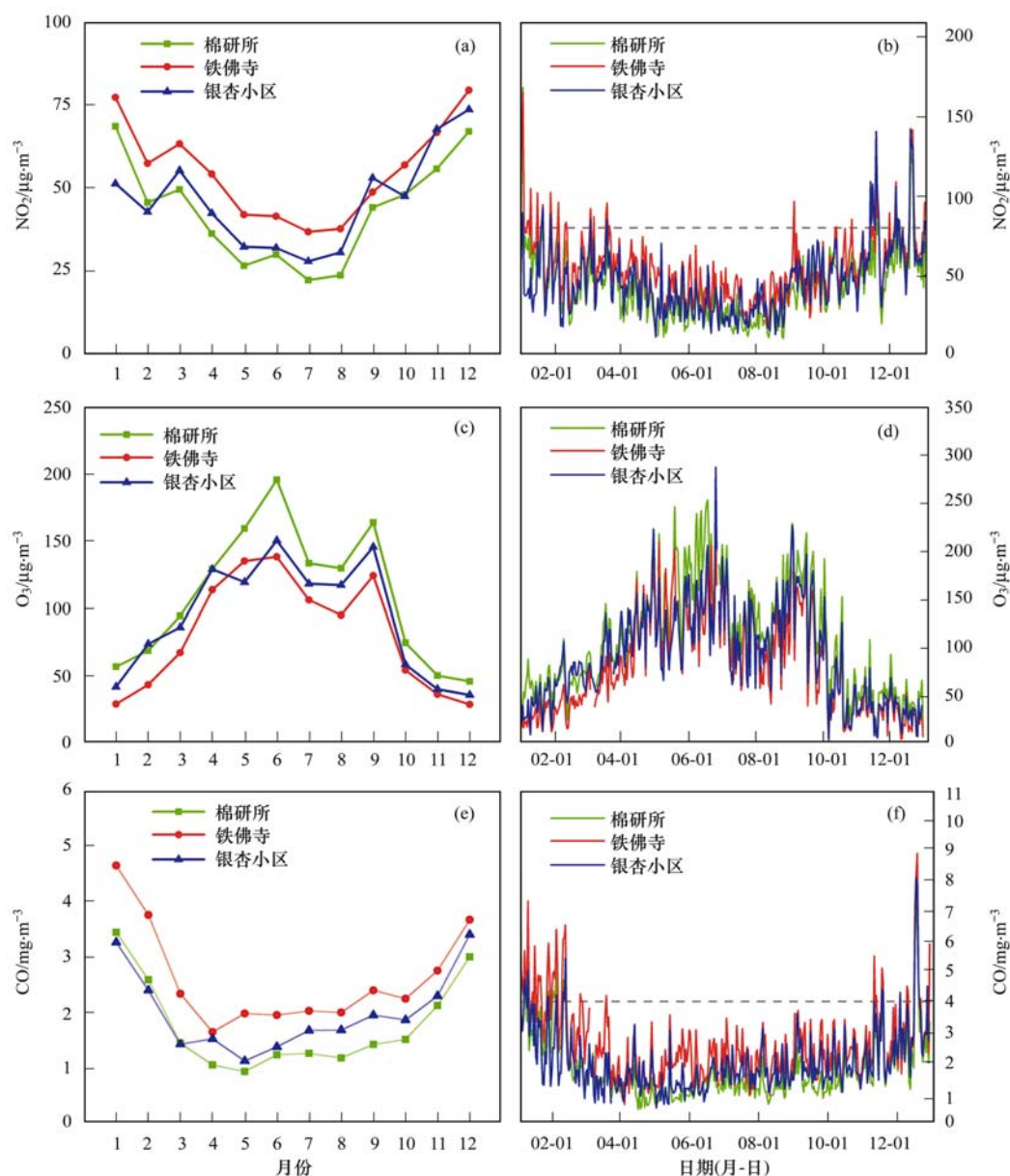
Fig. 3 The 5th, 90th percentiles, and average MDA8 O_3 concentrations at the three sites

此外,本研究统计了棉研所站、铁佛寺站和银杏小区站 2014 ~ 2017 年不同频数分布的 MDA8 O_3 浓度,如图 3 所示. 一般来说,MDA8 低百分位的第 5 分位数代表背景浓度,高百分位的第 90 分位数用于评价污染水平,平均浓度代表站点全年 O_3 浓度的整体水平. 除棉研所站 2017 年略有下降之外,这 3 个站点 MDA8 O_3 浓度呈逐年增加趋势. 棉研所站、铁佛寺站和银杏小区站 MDA8 O_3 的年均平均浓度分别增长 8.9、13.0 和 3.8 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,年均第 90 百分位数分别增长 10.3、16.0 和 5.4 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,年均第 5 百分位数分别增长 13.2、7.5 和 0.02 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,城郊差异明显. 具体来看,第 5 和第 90 百分位 MDA8 O_3 浓度在铁佛寺站和银杏小区站变化趋势一致,且前者不同分位数的增长幅度均高于银杏小区站. 需要注意的是,各站点第 90 百分位数的 O_3 浓度在 2017 年明显上升,这一现象与 2017 年京津冀地区污染加重导致的区域性高百分位数 O_3 浓度快速上升有关^[21].

2.1.2 月变化特征

以 2016 年为基准,对污染物月度变化进行统计分析,结果显示:各站点 O_3 、 NO_2 和 CO 浓度在不同月份存在明显差异, O_3 呈“M”双峰型, NO_2 、CO 呈典型“V”型分布(图 4). 由图 4(c)可以看出,3 个站点 O_3 浓度均在 12 月达到最小值,分别为铁佛寺 28.3 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,银杏小区 35.3 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,棉研所 45.4 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. 这种现象通常出现在北半球中纬度地区^[22],主要与冬季光化学过程相对较弱有关. 3 个站点的双峰值分别出现在夏季的 6 月和秋季的 9 月,MDA8 O_3 浓度范围在 61.5 ~ 102.6 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,8 月出现一个谷值,这是由于 8 月降水量增加抑制了太阳辐射从而抑制 O_3 的形成,并通过湿沉降促进了 O_3 的去除^[10,12].

进一步分析可以看出,不同站点 O_3 浓度月变化的空间差异显著[图 4(c)],郊区棉研所站明显高于城市银杏小区和工业站铁佛寺站. 对于 O_3 的关键前体物 NO_2 而言,3 个站点的月均浓度范围从 22.3 ~ 79.0 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ [图 4(a)],在 12 月或 1 月达到峰值后开始下降并在 8 月降到最低,与 O_3 呈负相关. 这与以下几个方面因素有关:采暖季北方家庭取暖用煤或其他化石燃料消耗量大,污染处理措施弱,会增加 NO_x 排放;秋冬季气候干燥,降水、温度、辐射较低,湿沉降和光化学过程较弱;冬季易出现逆温效应限制了 NO_x 的对流扩散^[23]. 与 NO_2 一致,3 个站点 CO 的变化趋势与 O_3 相反[图 4(e)],在 1 ~ 12 月呈现先下降后上升的趋



虚线为国家环境空气质量标准二级限值

图4 2016年三站点 O_3 、CO 和 NO_2 月均浓度和日均浓度时间序列

Fig. 4 Monthly and daily variations of O_3 , CO, and NO_2 levels at the three sites in 2016

势, 3 个站点的浓度分布相对分散, 基本在 $4.0 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-3}$ 以下, 工业站铁佛寺浓度明显高于郊区站棉研所和城市站银杏小区, 且 1 月平均浓度超过国家空气质量标准一级限值。

2.1.3 日变化特征

如图 5 所示, 安阳市 O_3 日变化为单峰, 谷值在 06:00 ~ 07:00 之间, 峰值在 16:00 左右, 晚于我国其他南部城市 (如: 杭州 14:00^[24], 南京 15:00^[25]), 与北京地区接近 (15:00 ~ 16:00^[7]), 这与不同纬度的日出时间差异有关。 O_3 浓度的振幅 (最大值和最小值之间的波动范围) 在不同站点之间存在显著差异, 其中郊区棉研所站振幅最大, 范围从 $23.5 \sim 115.9 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 银杏小区和铁佛寺站范围分别为

$19.9 \sim 99.3 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 和 $17.0 \sim 86.1 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, O_3 在小范围内的空间差异可能主要是由站点周边的排放源差异影响日间大气光化学反应引起的。 NO_2 的谷值 (铁佛寺: $39.1 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 棉研所: $27.6 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 银杏小区: $29.6 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$) 出现在 15:00 左右, 比 O_3 峰值延迟 1 h 左右。 夜间光照强度减弱, 可能还有一些人为排放的影响, 导致 NO_2 浓度在 00:00 ~ 02:00 达到峰值 (铁佛寺: $55.3 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 棉研所: $53.8 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 银杏小区: $46.2 \text{ } \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$)。 然而, 这一过程在棉研所站约晚 2 h, 这可能是因为更多的 O_3 被 NO 消耗, 导致反应时间延长并产生了更多的 NO_2 ^[26]。

各污染物在 3 个站点的日变化趋势基本一致, O_3 浓度在夜间减少, 而 NO_2 和 CO 呈现相反的趋

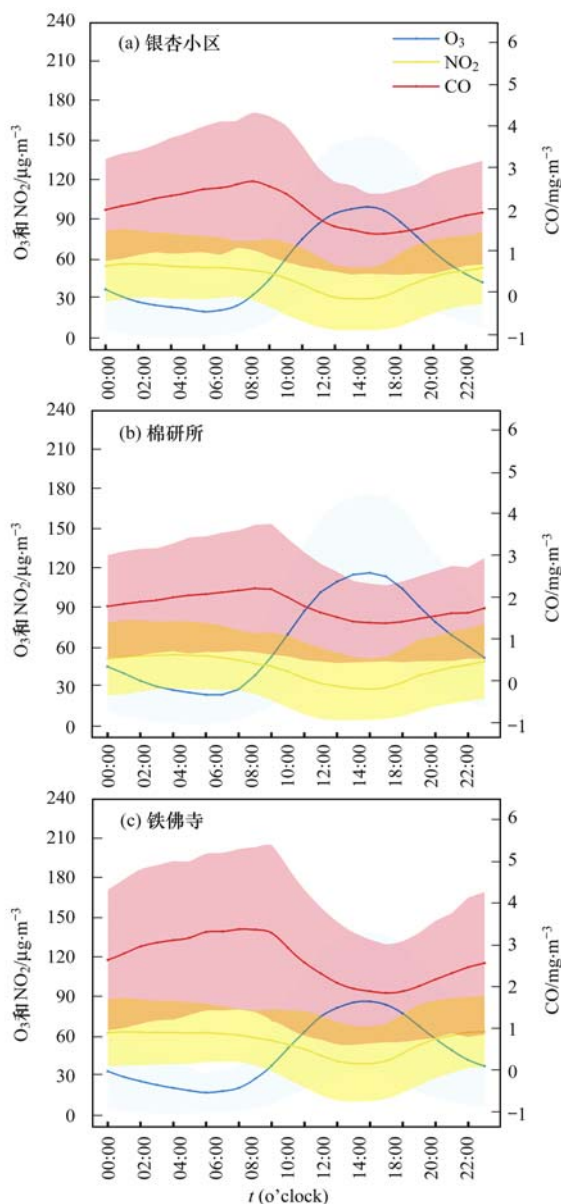


图5 三站点 2016 年 O_3 、 NO_2 和 CO 浓度日变化

Fig. 5 Diurnal variation of O_3 , NO_2 , and CO concentrations at the three sampling sites in 2016

势.这是由于夜晚大气环境有更高的稳定性和缺少光照等原因,减弱了光化学氧化剂的消除反应^[27],以及边界层的日变化现象^[28](夜间边界层高度较低,大气扩散较弱,白天边界层升高,污染物浓度稀释)共同导致.

2.2 气象因子影响相关性分析

表1列出了三站点 O_3 小时浓度与气象参数的 Pearson 相关系数,不同点位与气象因子相关系数之间没有明显差别.一般来说,能见度可以反映大气消光强度,温度可以间接反映辐射强度,并直接影响光化学反应速率和 O_3 的生成过程^[29].由表1可见, O_3 浓度与温度和能见度呈正相关,而与相对湿度呈负相关. O_3 与温度的相关系数 R 为 0.63 左右,且高于 O_3 与能见度的相关系数. O_3 浓度与风速并没有显

著的相关性,这可能是由于风速对 O_3 水平的双向影响,高风速通常会稀释污染物,但也会导致自由对流层空气的向下输送^[30].

进一步对比分析了 2014 ~ 2017 年超标日和非超标日的超标天数、 O_3 浓度和气象参数,由表2可以看到,超标天气温和能见度高于非超标天,而气压和相对湿度则低于非超标天.各气象参数也有明显地年际变化趋势, O_3 超标天数和全年平均浓度伴随年平均温度的升高逐年上升,而超标天的平均温度则逐年降低,且能见度的明显升高也可能对 O_3 的上升有一定贡献.

表1 O_3 和常规气象参数的 Pearson 相关系数 ($P < 0.05$)

站点	温度	风速	相对湿度	能见度
棉研所	0.63	—	-0.29	0.50
银杏小区	0.62	—	-0.34	0.51
铁佛寺	0.62	—	-0.34	0.51

图6展示了2016年 O_3 在不同风速风向下的超标浓度及风频分布,由于安阳地处季风区,风向存在季节性差异,此处只考虑 O_3 小时浓度超标情况.可以看出, O_3 超标时以南风为主,高风速主要分布在南风到西风之间,且高浓度 O_3 超标主要发生在风速为 $5 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 左右的西南偏南风.以往的研究表明,光化学污染物可通过夏季风从中国东部由南向北输送,导致中国北部 O_3 污染水平升高^[31],此外,还应考虑安阳南部周边县区的排放影响.

图7则是不同湿度下 O_3 小时浓度-气温散点图.观察发现, O_3 浓度随气温升高而升高,两者明显呈正相关;气温相同的情况下, O_3 浓度随相对湿度降低而升高,明显呈负相关,与表1结果一致.且 O_3 小时浓度超标主要在气温大于 23°C 且相对湿度小于 58% 的条件下出现.

综合以上分析,当夏季出现 $5 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 的南风且气温大于 23°C ,相对湿度小于 58% 时,环保部门应重视,并采取措施防止 O_3 出现小时超标情况.

2.3 潜在来源分析

如图8所示,不同季节 O_3 的潜在来源差异明显.春季受长距离高空传输影响, O_3 的潜在源区分布在鄂西和长三角地区,WPSCF 值较高,为 0.5 ~ 0.6,安阳东南部也有较高的 WPSCF 值,可能是 O_3 潜在源区.夏季潜在源主要分布在安阳周边地区,另外河北南部的工业地区和湖北宜昌地区的 WPSCF 值较高,可能通过远距离传输影响安阳地区.秋季主要受长距离运输影响,鄂北中部、山西、陕西和内蒙古交界地区被确定为高 WPSCF 值的潜在源区.冬

表 2 超标日和非超标日污染物浓度及气象参数统计

Table 2 Statistics of pollutant concentrations and meteorological parameters on episode days and non-episode days

项目	单位	阶段类型	平均值			
			2014 年	2015 年	2016 年	2017 年
天数	d	超标天	38	27	32	87
		非超标天	327	338	334	278
		全年平均	365	365	366	365
O ₃	μg·m ⁻³	超标天	180.6 ± 16.5	183.4 ± 21.3	180.9 ± 20	207.1 ± 33.7
		非超标天	73.2 ± 40.8	64.7 ± 39.7	77.5 ± 40.7	76.4 ± 36.5
		全年平均	84.3 ± 51	73.5 ± 49.5	86.6 ± 49	108.3 ± 66.6
气温	℃	超标天	25.9 ± 3.6	27.5 ± 1.9	26.3 ± 2.5	26.2 ± 2.9
		非超标天	14.1 ± 9.3	13.9 ± 9.4	14.2 ± 9.7	12.1 ± 8.8
		全年平均	15.4 ± 9.6	14.9 ± 9.8	15.3 ± 9.9	15.5 ± 9.8
气压	hPa	超标天	983.7 ± 3.5	982.8 ± 3.6	984.2 ± 4.2	984.2 ± 4.5
		非超标天	994.8 ± 8.3	994.7 ± 9	994.4 ± 9.3	996.9 ± 8.1
		全年平均	993.7 ± 8.7	993.8 ± 9.2	993.5 ± 9.4	993.8 ± 9.2
相对湿度	%	超标天	52.1 ± 14.8	49.0 ± 9.9	56.4 ± 9.6	56.5 ± 15.6
		非超标天	57.2 ± 19.4	58.8 ± 20.9	59.9 ± 20	57.8 ± 21.7
		全年平均	56.7 ± 19.1	58.0 ± 20.4	59.6 ± 19.4	57.5 ± 20.4
能见度	km	超标天	9.2 ± 4.9	13.1 ± 4.4	13.9 ± 6.2	14.1 ± 5.2
		非超标天	6.2 ± 3.9	7.0 ± 4.4	7.8 ± 4.7	8.1 ± 4
		全年平均	6.5 ± 4.2	7.4 ± 4.7	8.3 ± 5.2	9.5 ± 5

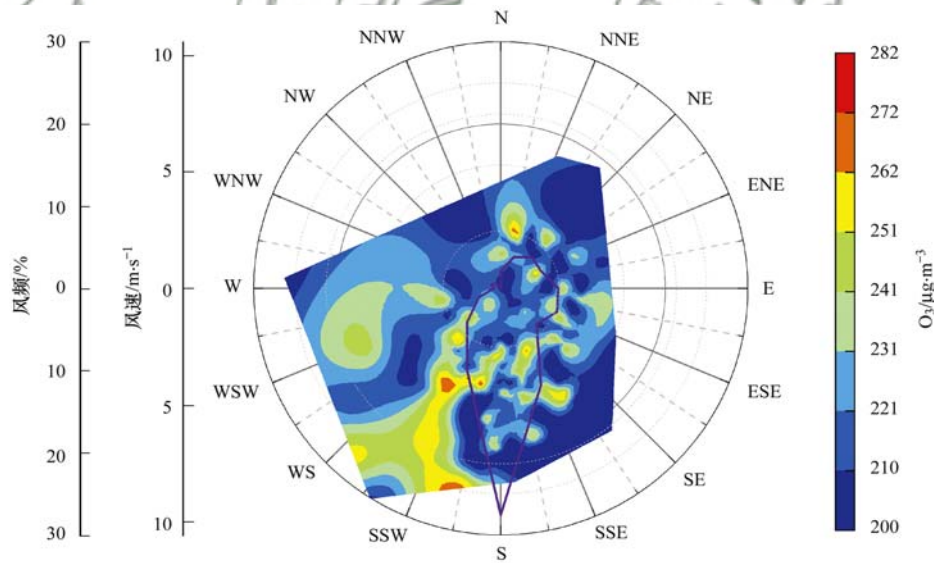


图 6 O₃ 小时超标浓度分布及风频图

Fig. 6 Distribution of hourly O₃ concentrations and wind frequency chart during pollution episodes

季,潜在源区集中在河南省东南部. 由于冬季 O₃ 总体浓度较低,超过阈值的轨迹数较少,WPSCF 值只有 0.1,且总体覆盖面积相对较小.

2.4 O₃ 重污染案例分析

2017 年 5 月 23 日至 6 月 3 日安阳地区出现了一次持续性 O₃ 污染天气,从图 9 可以看出,5 月 28 日和 6 月 2 日铁佛寺站点 O₃ 小时浓度最高超过 400 μg·m⁻³,且全天的空气质量均达到重度污染,以此过程中两个重污染天为参照将污染过程分为阶段 1 和阶段 2,以下重点对 2 个阶段重污染过程进

行分析.

两个污染阶段,铁佛寺站的 O₃ 浓度普遍高于银杏小区站和棉研所站,且浓度上升明显,相比之下棉研所站变化幅度较小. 在 6 月 2 日 18:00,铁佛寺站 O₃ 小时浓度高达 405 μg·m⁻³,是棉研所站的 1.8 倍,国家空气质量二级标准的 2.0 倍. NO₂ 作为 O₃ 的主要前体物之一,表现出明显下降趋势,6 月 1 日和 2 日夜间的陡升也导致 O₃ 浓度在 6 月 2 日白天达到峰值. 5 月 29 日 05:00,铁佛寺站点 CO 突然升高,浓度为 4.2 mg·m⁻³,受持续西风影响,银杏小区

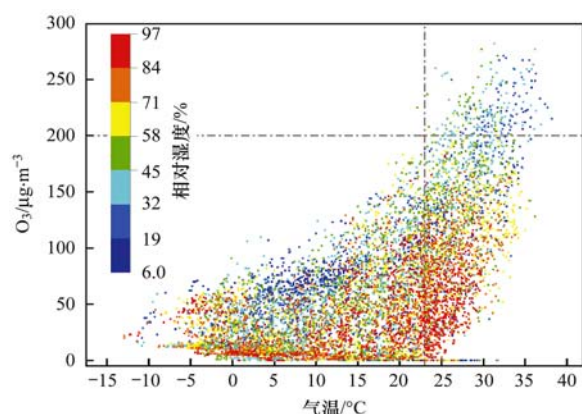
图7 不同湿度下 O₃ 小时浓度-气温散点图

Fig. 7 Hourly O₃ concentration-temperature scatter diagram with different humidity

站点在 07:00 跃升至 $4.2 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-3}$. 上午 CO 的大量积累也对中午 O₃ 升高提供了大量前体物. 这说明在西风控制系统下, 西部铁佛寺站周边排放的一次污染物对市区其他站点的影响非常明显.

观察 850 hPa 天气图 (<http://222.195.136.24/forecast.html>) 发现, 华北地区及西部地区受大范围的暖气团控制, 这是由于北方干热季节持续晴热天气, 导致西部沙漠地区因日照发热产生暖气团, 随西风转移至华北地区. 500 hPa 天气图显示, 在 5 月 27 日 14:00 受弱槽控制的下沉运动影响下, 天气状况

大多为晴转多云, 地表温度高, 太阳辐射强, 高温低湿的气象条件有利于局地 O₃ 的生成. 如上分析 O₃ 浓度与气温呈明显正相关, 高温通常可以作为 O₃ 超标事件的预测因子^[32]. 在阶段 1 期间, 气温从 5 月 23 日开始升高, 并在 5 月 28 日 15:00 达到 38.3°C , 盛行西南风及南风, 最高风速约 $6 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$. 同时, 相对湿度和气压逐渐下降, 大气能见度在中午长时间保持在 30 km 以上, 5 月 27 日持续将近 9 h. 同时, 强辐合气流易将污染物从河北、天津、山东和山西等地转移到安阳. 500 hPa 高空气压梯度弱, 没有等值线交叉, 低风速不利于污染物扩散. 因此, 本地排放、区域传输和不利的气象条件共同作用导致 O₃ 的严重污染.

5 月 29 日, 华北平原出现了许多高压和低压中心, 周边地区大部分地区被高云覆盖, 华南地区出现大范围降水. 安阳处于槽前脊后, 出现的正涡度平流使高空气流辐散, 中部垂直向上流动, 容易产生对流系统, 污染物扩散条件较好. 相应地, 气温下降, 湿度上升, 能见度下降, 各种污染物的浓度也逐渐下降. 但由于没有降水过程, O₃ 当天仍处于中度污染状态, 之后湿度逐渐减小, 温度逐渐升高, 导致阶段 2 产生. 6 月 1 日, 以北风和东北风为主, 风速较高, 郊区站棉研所 O₃ 浓度升高到与银杏小区相同的水平. 6 月 2 日上午, 500 hPa 环流稳定, 安阳仍处于低压后部, 压力梯度较小, 盛行西风气流, 中高纬度冷空

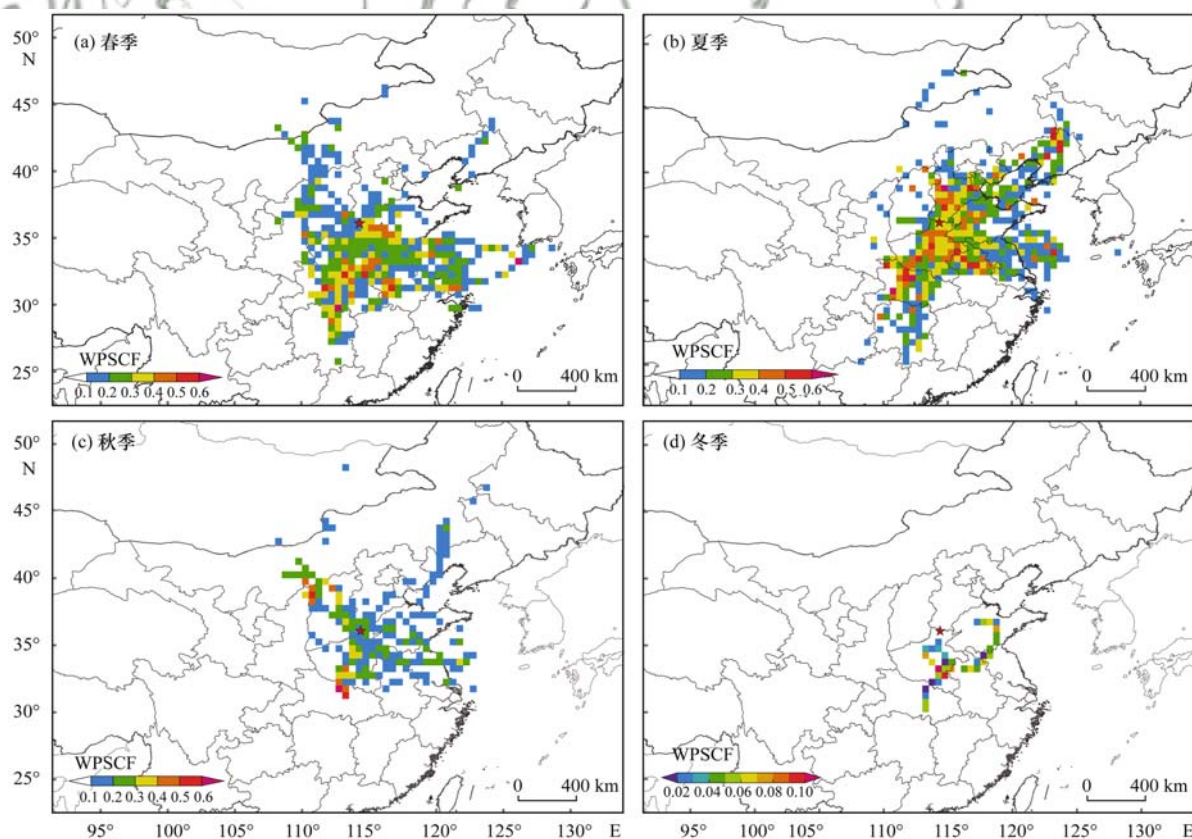
图8 安阳市 O₃ 分季节潜在源分析

Fig. 8 Seasonal variation of PSCF density maps for Anyang City

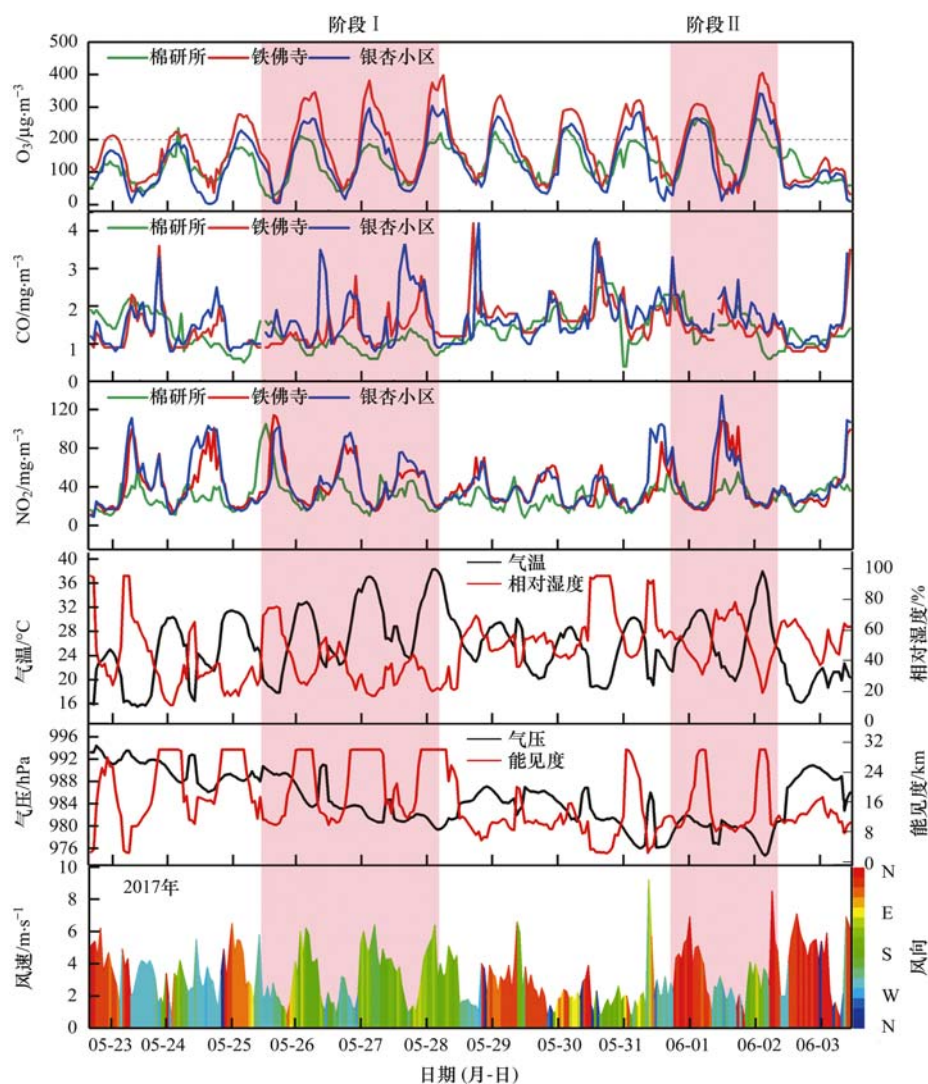


图9 重污染期间污染物浓度和气象参数时间序列

Fig. 9 Time series of O_3 , related trace gases, and meteorological parameters for the pollution episode event

气流入较少, 污染物扩散条件较差. 随着地表风向转向南部和西南部, 银杏小区和铁佛寺站同样出现 NO_2 的陡增, 分别达到 $134 \mu g \cdot m^{-3}$ 和 $108 \mu g \cdot m^{-3}$, 由于 NO_2 的积累和高温低湿等不利气象条件, O_3 在当天达到严重污染级别. 6月3日气温明显下降, 气压逐渐上升, 各站点 O_3 小时浓度均降到二级限值以下, 此次污染过程趋于结束.

3 结论

(1) 安阳市 2014 ~ 2017 年 O_3 污染状况加剧, 超标天出现时间不断提前, 各站点浓度水平差异明显, 棉研所 > 银杏小区 > 铁佛寺; O_3 月变化呈“M”型, O_3 每日峰值出现在 16:00, 棉研所站点在 3 个站点中 O_3 振幅最大.

(2) 安阳市 O_3 浓度与温度呈明显正相关性, 和湿度呈负相关, 高浓度 O_3 污染可能与气温 $> 23^\circ C$ 、相对湿度 $< 58\%$ 和 SSW(西南偏南)方向 $5 m \cdot s^{-1}$ 风速有关,

年平均温度升高对近几年 O_3 浓度升高有一定贡献.

(3) 除本地排放贡献外, 周边地区及远距离区域传输可能对 O_3 污染产生影响, 且不同季节来源差异明显, 春夏季主要受周边近距离传输, 秋季明显受长距离远途运输影响.

(4) 重污染案例研究表明, 工业站铁佛寺在污染过程重响应最快, 并会随西风对市区产生较大影响, 受西部干热气团影响, 高空受持续性弱槽影响时安阳市更容易出现 O_3 高浓度超标现象.

参考文献:

- [1] 唐孝炎, 张远航, 邵敏. 大气环境化学[M]. (第二版). 北京: 高等教育出版社, 2006. 103-110.
- [2] Myhre G, Aas W, Cherian R, et al. Multi-model simulations of aerosol and ozone radiative forcing due to anthropogenic emission changes during the period 1990-2015 [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2017, 17(4): 2709-2720.
- [3] Tai A P K, Val Martin M. Impacts of ozone air pollution and temperature extremes on crop yields: Spatial variability, adaptation and implications for future food security [J]. Atmospheric Environment, 2017, 169: 11-21.
- [4] Li K W, Chen L H, Han K, et al. Smog chamber study on aging

- of combustion soot in isoprene/SO₂/NO_x system: changes of mass, size, effective density, morphology and mixing state[J]. *Atmospheric Research*, 2017, **184**: 139-148.
- [5] Wang T, Kwok J Y H. Measurement and analysis of a multiday photochemical smog episode in the Pearl River Delta of China [J]. *Journal of Applied Meteorology*, 2003, **42**(3): 404-416.
- [6] 程念亮, 李云婷, 张大伟, 等. 2014 年北京市城区臭氧超标日浓度特征及与气象条件的关系[J]. *环境科学*, 2016, **37**(6): 2041-2051.
- Cheng N L, Li Y T, Zhang D W, *et al.* Characteristics of ozone over standard and its relationships with meteorological conditions in Beijing City in 2014[J]. *Environmental Science*, 2016, **37**(6): 2041-2051.
- [7] Wang Z S, Li Y T, Chen T, *et al.* Ground-level ozone in urban Beijing over a 1-year period: Temporal variations and relationship to atmospheric oxidation[J]. *Atmospheric Research*, 2015, **164**: 110-117.
- [8] 刘玉莲, 周贺玲, 裴宇航, 等. 哈尔滨近地面 O₃ 浓度特征[J]. *环境科学学报*, 2018, **38**(11): 4454-4463.
- Liu Y L, Zhou H L, Pei Y H, *et al.* Characteristics of near surface O₃ concentration in Harbin [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2018, **38**(11): 4454-4463.
- [9] 程麟钧, 王帅, 宫正宇, 等. 中国臭氧浓度的时空变化特征及分区[J]. *中国环境科学*, 2017, **37**(11): 4003-4012.
- Cheng L J, Wang S, Gong Z Y, *et al.* Spatial and seasonal variation and regionalization of ozone concentrations in China[J]. *China Environmental Science*, 2017, **37**(11): 4003-4012.
- [10] 齐冰, 牛彧文, 杜荣光, 等. 杭州市近地面大气臭氧浓度变化特征分析[J]. *中国环境科学*, 2017, **37**(2): 443-451.
- Qi B, Niu Y W, Du R G, *et al.* Characteristics of surface ozone concentration in urban site of Hangzhou [J]. *China Environmental Science*, 2017, **37**(2): 443-451.
- [11] Wang T, Ding A J, Gao J, *et al.* Strong ozone production in urban plumes from Beijing, China[J]. *Geophysical Research Letters*, 2006, **33**(21): L21806.
- [12] Gao W, Tie X X, Xu J M, *et al.* Long-term trend of O₃ in a mega City (Shanghai), China: Characteristics, causes, and interactions with precursors [J]. *Science of the Total Environment*, 2017, **603-604**: 425-433.
- [13] Tie X X, Geng F H, Peng L, *et al.* Measurement and modeling of O₃ variability in Shanghai, China: application of the WRF-Chem model[J]. *Atmospheric Environment*, 2009, **43**(28): 4289-4302.
- [14] 陈培章, 陈道劲. 兰州主城臭氧污染特征及气象因子分析[J]. *气象与环境学报*, 2019, **35**(2): 46-54.
- Chen P Z, Chen D J. Analysis of ozone pollution characteristics and meteorological factors over Lanzhou city [J]. *Journal of Meteorology and Environment*, 2019, **35**(2): 46-54.
- [15] HJ 633-2012, 环境空气质量指数 (AQI) 技术规定 (试行) [S].
- [16] Nicolás J, Chiari M, Crespo J, *et al.* Assessment of potential source regions of PM_{2.5} components at a southwestern Mediterranean site [J]. *Tellus B: Chemical and Physical Meteorology*, 2011, **63**(1): 96-106.
- [17] 王艳, 柴发合, 王永红, 等. 长江三角洲地区大气污染物输送规律研究[J]. *环境科学*, 2008, **29**(5): 1430-1435.
- Wang Y, Chai F H, Wang Y L, *et al.* Transport characteristics of air pollutants over the Yangtze Delta [J]. *Environmental Science*, 2008, **29**(5): 1430-1435.
- [18] 赵恒, 王体健, 江飞, 等. 利用后向轨迹模式研究 TRACE-P 期间香港大气污染物的来源[J]. *热带气象学报*, 2009, **25**(2): 181-186.
- Zhao H, Wang T J, Jiang F, *et al.* Investigation into the source of air pollutants to Hong Kong by using backward trajectory method during the TRACE-P campaign [J]. *Journal of Tropical Meteorology*, 2009, **25**(2): 181-186.
- [19] Wang Y Q, Zhang X Y, Draxler R R. TrajStat: GIS-based software that uses various trajectory statistical analysis methods to identify potential sources from long-term air pollution measurement data [J]. *Environmental Modelling & Software*, 2009, **24**(8): 938-939.
- [20] Dimitriou K, Kassomenos P. Combining AOT, angstrom exponent and PM concentration data, with PSCF model, to distinguish fine and coarse aerosol intrusions in Southern France [J]. *Atmospheric Research*, 2016, **172-173**: 74-82.
- [21] 王玫, 郑有飞, 柳艳菊, 等. 京津冀臭氧变化特征及与气象要素的关系[J]. *中国环境科学*, 2019, **39**(7): 2689-2698.
- Wang M, Zheng Y F, Liu Y J, *et al.* Characteristics of ozone and its relationship with meteorological factors in Beijing-Tianjin-Hebei Region [J]. *China Environmental Science*, 2019, **39**(7): 2689-2698.
- [22] Jo W K, Park J H. Characteristics of roadside air pollution in Korean metropolitan city (Daegu) over last 5 to 6 years: temporal variations, standard exceedances, and dependence on meteorological conditions [J]. *Chemosphere*, 2005, **59**(11): 1557-1573.
- [23] Reddy B S K, Kumar K R, Balakrishnaiah G, *et al.* Analysis of diurnal and seasonal behavior of surface ozone and its precursors (NO_x) at a Semi-Arid rural site in southern India [J]. *Aerosol and Air Quality Research*, 2012, **12**(6): 1081-1094.
- [24] Li K W, Chen L H, Ying F, *et al.* Meteorological and chemical impacts on ozone formation: a case study in Hangzhou, China [J]. *Atmospheric Research*, 2017, **196**: 40-52.
- [25] 王磊, 刘端阳, 韩桂荣, 等. 南京地区近地面臭氧浓度与气象条件关系研究[J]. *环境科学学报*, 2018, **38**(4): 1285-1296.
- Wang L, Liu D Y, Han G R, *et al.* Study on the relationship between surface ozone concentrations and meteorological conditions in Nanjing, China [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2018, **38**(4): 1285-1296.
- [26] 李月清. 南京大气污染物 NO₂、O₃、SO₂ 的城郊对比分析 [D]. 南京: 南京信息工程大学, 2011. 33-38
- [27] Awang N R, Ramli N A, Yahaya A S, *et al.* Multivariate methods to predict ground level ozone during daytime, nighttime, and critical conversion time in urban areas [J]. *Atmospheric Pollution Research*, 2015, **6**(5): 726-734.
- [28] McNider R T, Pielke R A. Diurnal boundary-layer development over sloping terrain [J]. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 1981, **38**(10): 2198-2212.
- [29] Atkinson R. Gas-phase tropospheric chemistry of organic compounds: a review [J]. *Atmospheric Environment. Part A. General Topics*, 1990, **24**(1): 1-41.
- [30] Tu J, Xia Z G, Wang H S, *et al.* Temporal variations in surface ozone and its precursors and meteorological effects at an urban site in China [J]. *Atmospheric Research*, 2007, **85**(3-4): 310-337.
- [31] Liu N W, Lin W L, Ma J Z, *et al.* Seasonal variation in surface ozone and its regional characteristics at global atmosphere watch stations in China [J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2019, **77**: 291-302.
- [32] Steiner A L, Davis A J, Sillman S, *et al.* Observed suppression of ozone formation at extremely high temperatures due to chemical and biophysical feedbacks [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2010, **107**(46): 19685-19690.

CONTENTS

Spatiotemporal Variations of PM _{2.5} Pollution Evolution in China in Recent 20 Years	SHI Yan, LIU Rui-mei, LUO Yi, <i>et al.</i>	(1)
Characteristics of Aerosol Particulate Concentrations and Their Climate Background in Shanghai During 2007-2016	ZHENG Qing-feng, SHI Jun, TAN Jian-guo, <i>et al.</i>	(14)
Characteristics and Sources of Elements in PM _{2.5} During Summer for Three Typical Cities in Pingdingshan-Suizhou-Wuhan, Central China	LIU Wei-jie, SHI Ming-ming, CHENG Cheng, <i>et al.</i>	(23)
PM _{2.5} Pollution Characteristics During Winter and Summer in the Hohhot-Baotou-Ordos Region, China	LI Yi-ming, LIU Jia-yuan, SHI Guo-liang, <i>et al.</i>	(31)
Analysis of Pollution Characteristics and Sources of PM _{2.5} During Heavy Pollution in Shijiazhuang City Around New Year's Day 2019	ZHOU Jing-bo, DUAN Jing-chun, WANG Jian-guo, <i>et al.</i>	(39)
Modeling Studies of Source Contributions to PM _{2.5} in Chengdu, China	XU Yan-ling, YI Ai-hua, XUE Wen-bo	(50)
Chemical Characteristics of Arsenic in PM _{2.5} in Beijing	SHI Shao-xuan, YANG Yan-rong, QIN Juan-juan, <i>et al.</i>	(57)
Pollution Characteristics and Potential Source Contributions of Gaseous Elemental Mercury (GEM) During Summer and Autumn in Ningbo City	YI Hui, LIN Jia-mei, CAI Qiu-liang, <i>et al.</i>	(65)
Seasonal Characteristics and Source Analysis of Water-Soluble Ions in PM _{2.5} of Anyang City	SUN You-chang, JIANG Nan, WANG Shen-bo, <i>et al.</i>	(75)
Analysis of Stable Carbon Isotope Characteristics of PM _{2.5} in Summer and Winter Season in Xinxiang City	YAN Guang-xuan, SONG Xin, ZHANG Jing-wen, <i>et al.</i>	(82)
Construction and Evaluation on Size Resolved Source Apportionment Methods Based on Particle Size Distribution of Chemical Species	LIANG Yong-li, TIAN Ying-ze, LIU Tong, <i>et al.</i>	(90)
Fine Particulate Emission Characteristics of an Ultra-Low Emission Coal-Fired Power Plant	WANG Run-fang, MA Da-wei, JIANG Shao-yi, <i>et al.</i>	(98)
Driving Factors of the Significant Increase in Surface Ozone in the Beijing-Tianjin-Hebei Region, China, During 2013-2018	YU Yi-jun, MENG Xiao-yan, WANG Zhen, <i>et al.</i>	(106)
Characteristic of Surface Ozone and Meteorological Parameters Analysis in Anyang City	YANG Jian, YIN Sha-sha, YU Shi-jie, <i>et al.</i>	(115)
Emission Inventory of Intermediate Volatility Organic Compounds from Vehicles in the Yangtze River Delta in 2017 and the Impact on the Formation Potential of Secondary Organic Aerosols	WANG Qian, HUANG Ling, WANG Yang-jun, <i>et al.</i>	(125)
Exhaust Smoke of Non-Road Vehicles in Typical Cities of Eastern China	LU Jun, HU Qing-yao, YANG Qiang, <i>et al.</i>	(133)
Emission Status and Standards of Volatile Organic Compounds from Chinese and Foreign Bulk Petroleum Terminals	HU Wei, REN Bi-qi, HUANG Yu-hu, <i>et al.</i>	(139)
Secondary Organic Aerosol Mass Yield and Characteristics from 4-ethylguaiaacol Aqueous •OH Oxidation: Effects of Initial Concentration	ZHUANG Yu, CHEN Yan-tong, LI Xu-dong, <i>et al.</i>	(146)
Stable Isotope Characteristics and Vapor Source of Precipitation in the South and North Slopes of Wushaoling Mountain	XU Xiu-ting, JIA Wen-xiong, ZHU Guo-feng, <i>et al.</i>	(155)
Characteristics and Influencing Factors of Stable Hydrogen and Oxygen Isotopes in Groundwater in the Permafrost Region of the Source Region of the Yangtze River	WANG Shao-yong, HE Xiao-bo, DING Yong-jian, <i>et al.</i>	(166)
Hydrochemical and Isotopic Characteristics of the Lake Balkhash Catchment, Kazakhstan	SHEN Bei-bei, WU Jing-lu, JILILI Abuduwali, <i>et al.</i>	(173)
Effect of a Comprehensive Improvement Project on Water Quality in Urban Lakes: A Case Study of Water Quality Variation in Lihu Lake Over the Past 30 Years	TIAN Wei, YANG Zhou-sheng, SHAO Ke-qiang, <i>et al.</i>	(183)
Detection Method, Distribution, and Risk Assessment of Pharmaceuticals and Personal Care Products in the Yellow Sea and the East China Sea	CHEN Xian, ZHANG Cai-jie, YANG Gui-peng, <i>et al.</i>	(194)
Occurrence and Risk Assessment of Organophosphate Esters in Source Water of the Nanjing Section of the Yangtze River	LI Dong, ZHANG Sheng-hu, ZHANG Qin, <i>et al.</i>	(205)
Spatial Distribution, Spectral Characteristics, and Sources Analysis of Dissolved Organic Matter from Baiyangdian Lake in Xiong'an New District During the Winter Freezing Period	ZHOU Shi-lei, SUN Yue, ZHANG Yi-ran, <i>et al.</i>	(213)
Spatial Characteristics, Risk Assessment, and Source Analysis of Elements in Surface Sediments from the Baiyangdian Lake	WANG Jing-zhong, LIU Zhao, WEI Hao, <i>et al.</i>	(224)
Distribution Characteristics and Ecological Risk Assessment of Phthalate Esters in Surface Sediments of the Songhua River	WANG Huan, YANG Yong-zhe, WANG Hai-yan, <i>et al.</i>	(232)
Occurrence Relationship Between Microplastics and Heavy Metals Pollutants in the Estuarine Sediments of Poyang Lake and the Yangtze River	LI Wen-hua, JIAN Min-fei, LIU Shu-li, <i>et al.</i>	(242)
Effect of Ozonation on Microorganism in the Biological Activated Carbon and Disinfection By-Products in the Effluent	LIU Bao-ming, WANG Xi-xi, ZHANG Xiao-xia, <i>et al.</i>	(253)
Refined Assessment of Exposure and Health Risks of Heavy Metals in Water for the Children in Xigu District, Lanzhou	CHEN Yue-fang, SUN Shan-wei, DUAN Xiao-li, <i>et al.</i>	(262)
Adsorption of Phosphate on Mg/Fe Layered Double Hydroxides (Mg/Fe-LDH) and Use of Mg/Fe-LDH as an Amendment for Controlling Phosphorus Release from Sediments	WU Jun-lin, LIN Jian-wei, ZHAN Yan-hui, <i>et al.</i>	(273)
Characteristics and Mechanism of Monothioarsenate Adsorption on Sand, Sediment, and Goethite	LIAO Dan-xue, SHAN Hui-mei, PENG San-xi, <i>et al.</i>	(284)
Substructure Characteristics of Combined Acid-Base Modified Sepiolite and Its Adsorption for Cd(II)	XIE Sha, XU Ying-ming, YAN Cui-xia, <i>et al.</i>	(293)
Characteristics of Nitrogen Metabolism by Denitrifying Bacterial Agents in Low Dissolved Oxygen Black Odor Water	ZHAO Zhi-rui, LIU Shuo, LI Duo, <i>et al.</i>	(304)
Metagenomic Analysis of Antibiotic Resistant Bacteria and Resistance Genes in a Pharmaceutical and Chemical Wastewater Treatment Plant	CHEN Hong-ling, ZHANG Xing-tao, WANG Qing, <i>et al.</i>	(313)
Measurements of Bacterial Community and Biodiversity from Activated Sludge for a Wastewater Treatment Containing Starch	ZHAO Ting-ting, QIAO Kai, WANG Lei, <i>et al.</i>	(321)
Process Control and Operation Optimization of PN-SAD Coupling Process Based on SBR-ABR	CHEN Chong-jun, ZHANG Min, JIANG Ying, <i>et al.</i>	(330)
Effects of Intermittent Starvation on the Operation of the SNAD Process	LI Dong, LIU Zhi-cheng, XU Gui-da, <i>et al.</i>	(337)
Nitrogen Removal from Mature Landfill Leachate via Denitrification-Partial Nitrification-ANAMMOX Based on a Zeolite Biological Aerated Filter	CHEN Xiao-zhen, WANG Xiao-jun, Karasuta Chayangkun, <i>et al.</i>	(345)
Rapid Achievement of Nitrifying Micro-granular Sludge and Its Nitrification Function	LIU Wen-ru, SONG Jia-jun, WANG Jian-fang, <i>et al.</i>	(353)
Effect of On/Off Aeration Time Ratio Under High Frequency On/Off Aeration on Performance of Nitrosated Granular Sludge	ZHANG Jie, LAO Hui-mei, LI Dong, <i>et al.</i>	(360)
Occurrence, Distribution, Source, and Health Risk Assessment of Polybrominated Diphenyl Ethers in Surface Soil from the Shen-Fu Region, Northeast China	XIANG Xin-xin, LU Yin-tao, RUAN Qi-yang, <i>et al.</i>	(368)
Vertical Pollution Characteristics and Sources of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in a Heterogeneous Unsaturated Zone Under a Coking Plant	MENG Xiang-shuai, WU Meng-meng, CHEN Hong-han, <i>et al.</i>	(377)
Distribution Characteristics of Antibiotic Resistance Genes and Mobile Genetic Elements in Beijing Vegetable Base Soils	ZHANG Ru-feng, SONG Yuan, GAO Hao-ze, <i>et al.</i>	(385)
Stoichiometric Characteristics of Purple Sloping Cropland Under Long-term Fertilization and Cultivation	DU Ying-ni, LI Tian-yang, HE Tian-hui, <i>et al.</i>	(394)
Ecological Stoichiometry of Carbon, Nitrogen, and Phosphorus in Subtropical Paddy Soils	SONG Jia-ling, SHENG Hao, ZHOU Ping, <i>et al.</i>	(403)
Denitrification and Anaerobic Ammonium Oxidation in Soil Nitrogen Migration Process in a Farmland of Wanshangang Lake	CHEN Zhi-hao, QIN Yun-bin, DING Bang-jing, <i>et al.</i>	(412)
Effects of Straw Biochar on Soil Microbial Metabolism and Bacterial Community Composition in Drip-irrigated Cotton Field	WANG Jing, MA Li-juan, LONG Ze-hua, <i>et al.</i>	(420)
Source Appointment of Heavy Metals in Agricultural Soils of the Jiulong River Basin Based on Positive Matrix Factorization	HUANG Hua-bin, LIN Cheng-qi, HU Gong-ren, <i>et al.</i>	(430)
Spatial Distribution of Soil Arsenic and Arsenic Enrichment in Crops in the Oasis Region of the Southeastern Tarim Basin	CHEN Yun-fei, ZHOU Jin-long, ZENG Yan-yan, <i>et al.</i>	(438)
Bioavailability, Translocation, and Accumulation Characteristic of Heavy Metals in a Soil-Crop System from a Typical Carbonate Rock Area in Guangxi, China	MA Hong-hong, PENG Min, LIU Fei, <i>et al.</i>	(449)
Effects of Different Amendments on Fractions and Uptake by Winter Wheat in Slightly Alkaline Soil Contaminated by Cadmium and Nickel	ZHANG Jing-jing, ZHU Shuang-ge, ZHU Li-nan, <i>et al.</i>	(460)
Effect of Different Passivating Agents on the Stabilization of Heavy Metals in Chicken Manure Compost and Its Maturity Evaluating Indexes	LUAN Run-yu, GAO Shan, XU Ying-ming, <i>et al.</i>	(469)
Response of Soil Respiration and Its Components to Nitrogen and Phosphorus Addition in Farming-Withdrawn Grassland in the Semiarid Loess Hilly-Gully Region	ZHOU Jun-jie, CHEN Zhi-fei, YANG Quan, <i>et al.</i>	(479)
Subsequent Effects of Slag and Biochar Application on Greenhouse Gas Emissions from Paddy Fields in the Fuzhou Plain	LAN Xing-fu, WANG Xiao-tong, ZHOU Ya-xin, <i>et al.</i>	(489)