

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.12
第41卷 第12期

目次(卷终)

我国地级及以上城市臭氧污染来源及控制区划分	闫慧, 张维, 侯墨, 李银松, 高平, 夏青, 孟晓艳, 范丽雅, 叶代启 (5215)
2015~2018年我国PM _{2.5} 健康损害价值的动态评估	李惠娟, 周德群, 魏永杰 (5225)
2011~2017年中国PM _{2.5} 多尺度时空分异特征分析	杨文涛, 谯鹏, 刘贤赵, 雷雨亮 (5236)
关中地区PM _{2.5} 时空演化及人口暴露风险	黄晓军, 祁明月, 李艳雨, 王森, 黄馨 (5245)
中原城市冬季两次重污染形成机制及来源	贾佳, 丛怡, 高清敏, 王玲玲, 杨静静, 张国辉 (5256)
西北工业城市冬季PM _{2.5} 污染特征及理化性质	杨燕萍, 陈强, 王莉娜, 杨丽丽 (5267)
基于PMF模型的PM _{2.5} 中金属元素污染及来源的区域特征分析	邓林俐, 张凯山, 殷子渊, 李欣悦, 武文琪, 向铎鹏 (5276)
重庆主城区降尘中重金属污染特征及评价	张夏, 刘斌, 肖柏林, 王佳, 万达 (5288)
鄂尔多斯市夏秋季气溶胶新粒子生成过程影响因素分析	孔祥晨, 王红磊, 张连霞, 呼群, 李瑞峰, 许彩琴 (5295)
杭州市城区挥发性有机物污染特征及反应活性	景盛翱, 高雅琴, 沈建东, 王倩, 彭亚荣, 李英杰, 王红丽 (5306)
成都市区夏季大气挥发性有机物污染特征及来源解析	徐晨曦, 陈军辉, 姜涛, 韩丽, 王波, 李英杰, 王成辉, 刘政, 钱骏 (5316)
石家庄市挥发性有机物和臭氧的污染特征及源解析	王帅, 崔建升, 冯亚平, 刘大喜, 陈静, 田亮, 冯超, 王梦璇, 王学臣, 王婷婷 (5325)
厦门市工业源VOCs排放清单及控制对策分析	吴冬阳, 庄马展, 吴艳聪, 金磊, 吴义诚, 高攀峰, 刘建福, 金月正, 潘亚雷, 傅海燕 (5336)
建筑胶黏剂使用VOCs排放系数与排放清单	梁小明, 孙西勃, 苏燕花, 黄礼海, 陈锋, 任璐, 卢清, 赖君怡, 陈朋龙, 陈来国 (5345)
我国西北工业区城市大气多氯联苯来源及健康风险	毛潇萱, 李子璇, 宋世杰, 章晓冬, 高宏, 李春新, 黄韬, 马建民 (5352)
基于广州塔观测的城市近地面甲醛垂直分布特征	黄山, 裴成磊, 张莹, 宋奇聪, 齐吉朋, 赵一鸣, 王鸣, 邵敏 (5362)
新水沙条件下长江中下游干流水体总磷时空变化分析	卓海华, 姜保峰, 吴云丽, 王瑞琳, 陈杰, 兰静 (5371)
三峡库区汉丰湖水体氮磷及化学计量比季节变化特征	钱田, 黄祺, 何丙辉, 李天阳, 刘淑婧, 付适, 曾荣昌, 向可翠 (5381)
衡水湖沉积物营养盐形态分布特征及污染评价	张嘉雯, 魏健, 刘利, 王俭, 朱元荣, 段亮 (5389)
宜兴市横山水库底泥内源污染及释放特征	崔会芳, 陈淑云, 杨春晖, 唐婉莹, 殷鹏, 尹洪斌 (5400)
梅江流域清凉山水库沉积物重金属污染、生态风险评价及来源解析	江涛, 林伟稳, 曹英杰, 黎坤, 翟映雪, 李睿, 陈建耀 (5410)
汉江流域金水河与淇河潜在硝化速率及硝化功能基因的影响因子	赵彬洁, 王旭, 张健, 谭香, 何睿, 周全, 史航, 张全发 (5419)
山东省滨海旅游度假区水体环境典型全氟化合物污染特征及潜在生态风险	王世亮, 曹雪稚 (5428)
太湖重点区域多介质水体中有机磷酸酯的分布特征及来源解析	吕佳佩, 张振飞, 刘杨, 张恒, 王春英, 罗莹, 郭昌胜, 徐建 (5438)
岩溶地下水水体中有机氯农药和多氯联苯的残留特征及健康风险评价	叶凯, 孙玉川, 贾亚男, 朱琳跃, 徐昕 (5448)
澜沧江硅藻的地理分布模式与关键驱动因素	孙胜浩, 陈娟, 王沛芳, 王超, 王洵, 苗令占, 刘胜, 袁秋生 (5458)
白洋淀优势鱼类中喹诺酮类抗生素的生物累积特征及其与环境因子相关性	申立娜, 付雨, 张璐璐, 秦珊, 剧泽佳, 姚波, 崔建升 (5470)
生物炭粒径对负载MgO生物炭吸附水体中磷的影响	王鹏飞, 甄蒙蒙, 储昭升, 崔冠楠 (5480)
Bi ₂ MoO ₆ /Bi ₂ S ₃ 异质结光催化降解四环素-铜复合物	黄文鑫, 魏虎, 蒋彩云, 王玉萍 (5488)
超滤膜负载UiO-66@Fe ₃ O ₄ @UiO-66强化PPCPs去除和膜污染控制	尹越, 吴道文, 孙梦瑶, 吕路, 张炜铭 (5500)
低温季节水平潜流和垂直潜流人工湿地尾水深度处理中试	廖雪珂, 严晗璐, 王智源, 陈诚, 何东, 吴月龙, 陈求稳 (5509)
盐度渐增对水解微生物群落结构与功能的影响	高京, 张少华, 王锐, 金鹏康 (5518)
限NH ₄ ⁺ 和限NO ₂ ⁻ 厌氧氨氧化系统的运行特性及微生物种群特征	宋家俊, 朱明奕, 郭凯成, 汪倩, 刘文如, 沈耀良 (5527)
厌氧氨氧化菌富集培养过程微生物群落结构及多样性	闫冰, 夏嵩, 桂双林, 付嘉琦, 吴九九, 熊继海, 魏源送 (5535)
二价铁活化过氧化钙提高剩余活性污泥的脱水性能	毕薇薇, 阮书瑜, 陈昊傲啸, 梁方艺, 陈智文, 谢松儒, 唐晶, 邓靖 (5544)
中国北方某城市绿地土壤重金属空间分布特征、污染评价及来源解析	赵靓, 梁云平, 陈倩, 徐谦, 荆红卫 (5552)
我国南方水稻产地镉环境质量类别划分技术	窦韦强, 安毅, 秦莉, 林大松, 董明明 (5562)
晒在土壤-农作物系统中的分布特征及富硒土壤阈值	王锐, 邓海, 贾中民, 严明书, 周皎, 何忠庠, 梁绍标, 董金秀, 苏黎明 (5571)
广东鼻咽癌高发区土壤-作物系统重金属迁移特征及健康风险评价	叶脉, 张景茹, 张路路, 李朝晖, 李兴远, 周永章 (5579)
胺鲜酯与螯合剂GLDA联合强化柳枝稷吸收积累镉效果	王正, 孙兆军, SAMEH Mohamed, 王珍, 何俊, 韩磊 (5589)
毛竹遗态Fe/C复合材料对As(V)污染土壤的钝化修复性能	赵宁宁, 何豪, 冯国杰, 朱宗强, 方雅莉, 李超, 朱义年, 张立浩 (5600)
大麦虫幼虫肠道菌群对聚苯乙烯泡沫塑料降解	杨莉, 刘颖, 高婕, 彭霞薇, 白志辉, 庄绪亮 (5609)
1株耐油甲醛降解菌的分离鉴定及降解特性	韩茜, 王蓉蓉, 史纯珍 (5617)
铜尾矿白羊草叶际和根际细菌群落特征	贾彤, 姚玉珊, 王瑞宏 (5628)
生物炭施用对再生水灌溉空心菜根际微生物群落结构及多样性的影响	崔丙健, 崔二革, 胡超, 樊向阳, 高峰 (5636)
废弃物基水热炭改良对水稻产量及氮素吸收的影响	侯朋福, 薛利红, 冯彦房, 余嫻, 杨林章 (5648)
基于GIS和PMF模型的石嘴山市土壤多环芳烃空间分布及来源解析	夏子书, 王玉玉, 钟艳霞, 白一茹, 王幼奇, 杨帆, 李鸣骥 (5656)
氮肥和秸秆还田方式对麦玉轮作土壤N ₂ O排放的影响	许宏伟, 李娜, 冯永忠, 任广鑫, 谢呈辉, 吕宏菲, 马星霞, 郝嘉琪 (5668)
《环境科学》第41卷(2020年)总目录	(5677)
《环境科学》征订启事(5344) 《环境科学》征稿简则(5361) 信息(5287, 5499, 5508)	

我国地级及以上城市臭氧污染来源及控制区划分

闫慧¹, 张维¹, 侯墨¹, 李银松¹, 高平¹, 夏青², 孟晓艳², 范丽雅^{1,3,4,5*}, 叶代启^{1,3,4,5}

(1. 华南理工大学环境与能源学院, 广州 510006; 2. 中国环境监测总站, 北京 100012; 3. 挥发性有机物污染治理技术与装备国家工程实验室, 广州 510006; 4. 广东省大气环境与污染控制重点实验室, 广州 510006; 5. 广东省环境风险防控与应急处置工程技术研究中心, 广州 510006)

摘要:为划分我国臭氧污染控制区,制定更加科学合理的臭氧污染控制措施,根据2018年地面臭氧浓度监测数据,分析了全国338个地级及以上城市的臭氧超标情况,利用TCEQ方法计算出各城市的本地生成 O_3 量与区域传输 O_3 量,对本地生成 O_3 量与 O_3 日最大8 h平均值进行相关性分析,根据决定系数(R^2)确定了各城市臭氧污染的主要来源。结果表明,2018年全国共有121个城市 O_3 浓度超标,超标率达35.8%;104个城市本地生成 O_3 对当地 O_3 污染影响较大,是 O_3 污染的主要来源;另外234个城市 O_3 污染的主要来源则以区域传输 O_3 为主。利用城市 O_3 超标情况与 O_3 污染来源将城市分为4类:超标-以本地生成 O_3 为主的城市(N-L)、超标-以区域传输 O_3 为主的城市(N-T)、达标-以本地生成 O_3 为主的城市(S-L)和达标-以区域传输 O_3 为主的城市(S-T)。最终根据各个省份中4类城市的占比,将全国划分为3类控制区:重度控制区、中度控制区及一般控制区。重度控制区中的N-L城市在3类控制区中占比最多(20.3%),污染最为严重;中度控制区中4类城市的占比均属于中等水平;一般控制区中S-T城市占比最多(65.4%),污染程度较轻。

关键词:臭氧; TCEQ方法; 决定系数; 城市分类; 控制区

中图分类号: X515 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2020)12-5215-10 DOI: 10.13227/j.hjxx.202005094

Sources and Control Area Division of Ozone Pollution in Cities at Prefecture Level and Above in China

YAN Hui¹, ZHANG Wei¹, HOU Mo¹, LI Yin-song¹, GAO Ping¹, XIA Qing², MENG Xiao-yan², FAN Li-ya^{1,3,4,5*}, YE Dai-qi^{1,3,4,5}

(1. School of Environment and Energy, South China University of Technology, Guangzhou 510006, China; 2. China National Environmental Monitoring Centre, Beijing 100012, China; 3. National Engineering Laboratory for Volatile Organic Compounds Pollution Control Technology and Equipment, Guangzhou 510006, China; 4. Guangdong Provincial Key Laboratory of Atmospheric Environment and Pollution Control, Guangzhou 510006, China; 5. Guangdong Provincial Engineering and Technology Research Centre for Environmental Risk Prevention and Emergency Disposal, Guangzhou 510006, China)

Abstract: Based on the ground-level ozone concentration monitoring data in 2018, the ozone concentrations in 338 cities at the prefecture level and above were analyzed, and the TCEQ method was utilized to calculate the amount of locally generated ozone and regionally transported ozone in each city to divide the national ozone pollution control area and develop appropriate ozone pollution control measures. Correlation analysis was conducted between the amount of locally generated ozone and the daily maximum 8 h average ozone in each city to determine the main source of ozone pollution by determination coefficient (R^2). The results show that 121 cities (35.8%) in China exceeded the standard in O_3 concentration in 2018. The local generation of O_3 in 104 cities has a great impact on the local O_3 pollution, and is its main cause. In the other 234 cities, the main source of O_3 pollution is regionally transported O_3 . Cities are classified into four categories based on their ozone concentration levels and pollution sources: cities with a nonattainment ozone situation and mainly locally generated ozone (N-L), cities with a nonattainment ozone situation and mainly regionally transported ozone (N-T), cities with a standard ozone situation and mainly locally generated ozone (S-L), and cities with a standard ozone situation and mainly regionally transported ozone (S-T). Finally, according to the proportion of four city types in each province, the whole country is divided into three types of control areas: severe, moderate, and general. N-L cities in the severe control area account for the largest proportion (20.3%) of the three types of control areas and the pollution is the highest; the proportion of the four categories of cities in the moderate control area are all medium; the general control area mainly includes S-T cities (65.4%), and the pollution is the lowest.

Key words: ozone; TCEQ method; determination coefficient; classification of cities; control area

随着我国工业的持续发展和机动车保有量的急剧增加,各项臭氧(O_3)前体物在大气中的含量逐渐上升,在一定的气象条件下发生光化学反应生成 O_3 ,进而导致 O_3 浓度不断升高^[1~4]。 O_3 在大气不同高度上都有一定量的分布,对于大气温度场和大

收稿日期: 2020-05-10; 修订日期: 2020-06-02

基金项目: 国家重点研发计划项目(2017YFC0212805, 2017YFC0212801); 国家自然科学基金项目(41605092)

作者简介: 闫慧(1996~),女,硕士研究生,主要研究方向为大气环境与污染控制, E-mail: yanhui_yh@foxmail.com

* 通信作者, E-mail: fanly@scut.edu.cn

气环流具有十分重要的作用. 其中平流层 O_3 具有阻挡紫外线的作用, 而对流层中适量的 O_3 有利于清洁大气, 但由于 O_3 的强氧化性, 近地面 O_3 浓度过高会对人体的呼吸及免疫系统造成危害, 同时也会影响植物生长, 降低农作物产量^[5~8]. 根据中国近年生态环境状况公报可知, 2018 年全国 338 个地级及以上城市 O_3 日最大 8 h 平均第 90 百分位数浓度为 $151 \mu g \cdot m^{-3}$, 相比 2017 年的 $149 \mu g \cdot m^{-3}$, 上升了 1.3%, 相比 2016 年的 $138 \mu g \cdot m^{-3}$, 上升了 9.4%, O_3 污染正在逐年加重^[9,10]. 目前, O_3 已经成为我国仅次于细颗粒物的主要环境空气污染物^[11~13].

我国各地工业结构和城市化进程等因素的不同, 导致各地 O_3 污染的原因也不相同, 因此对大气环境进行合理地划分, 分区制定治理目标和综合治理方案就显得格外重要. 为了更高效地治理 O_3 , 美国将全国大气环境划分为达标区、非达标区及未可分类区, 制定州政府治理计划, 采用分区的方法治理大气 O_3 污染问题^[14~16]. 欧盟将各成员国大气环境划分为不同的区域, 以划分后的小区域作为环境监管的单元^[15,17]. 此外, 相关学者也对我国臭氧分区治理进行了一些研究, 杨柳林等^[18] 利用层次聚类分析法将广东省划分为严格控制区、持续改善区和协调发展区这 3 种大气环境管理分区类型; Hayashida 等^[19] 利用 2004 年 10 月至 2013 年 12 月的臭氧监测仪 (OMI) 卫星数据揭示了中国 O_3 分布的时空变化, 利用所定义的 ΔO_3 值 (OMI O_3 反演数据与背景 O_3 值的差值) 的季节变化趋势将华北平原和四川盆地分为 9 个区域; 程麟钧等^[11] 采用旋转经验正交函数法 (REOF) 对 2016 年 5 ~ 10 月期间 O_3 污染随时间变化的特征进行分析, 将全国划分为 10 个控制区.

以往的研究多是通过 O_3 浓度的变化规律来进行分区. 然而, 一个区域的 O_3 主要包括本地生成 O_3 和区域传输 O_3 两个部分, 二者在不同区域的相对贡献往往是有差别的^[20~22]. 因此, 量化本地生成 O_3 与区域传输 O_3 的相对量, 了解当地 O_3 污染产生的主要来源, 才能更好地制定 O_3 污染防治对策^[23]. 量化区域传输 O_3 量的方法有很多, Xue 等^[24] 利用 OBM 模型对中国 4 个大城市 (北京、上海、广州和兰州) 的 4 个下风向站点进行分析, 得出北京下风向站点主要受区域传输 O_3 的影响, 上海、广州和兰州这 3 个站点主要受本地生成 O_3 的影响. Zong 等^[25] 利用 OBM 模型计算出山东禹城 46% 的 O_3 为本地生成, 54% 的 O_3 是通过城市羽流传输而来. 但通过模型模拟的结果可能会受到排放清单的不确定性等因素的影响.

TCEQ (texas commission on environmental quality) 方法是由美国得克萨斯州环境质量委员会提出, 一开始通过选择位于上风向的农村站点, 以该站点 O_3 日最大 8 h 平均值作为该地的区域传输 O_3 量; 后来 Nielsen-Gammon 等^[26] 进一步使用了一种更自动化的方法, 即利用区域周围监测站点中监测到的最小的 O_3 日最大 8 h 平均值作为区域传输 O_3 量, 假设该监测站点不受本地排放的影响, 将所有监测站点中的最大值作为该地的 O_3 最大浓度, 即作为区域传输 O_3 贡献值及光化学反应 O_3 生成值的总体值, 本地光化学反应生成的 O_3 即为二者之差, 并将该方法应用于休斯顿-加尔维斯敦大都市区、达拉斯-沃斯堡大都市区、泰勒-朗维-马歇尔以及奥斯汀等多个地区. Kemball-Cook 等^[23] 利用地面监测数据 (通过 TCEQ 方法进行处理)、飞机监测数据以及光化学网格模型计算了休斯顿和达拉斯 O_3 超标时期区域传输 O_3 和本地生成 O_3 的贡献量, 结果表明 3 种数据得到的结果基本一致. Langford 等^[27] 在得克萨斯州运用主成分分析法 (PCA) 计算了该地区区域传输 O_3 的贡献比例, 发现通过 PCA 方法所得到的结果和 Nielsen-Gammond 等^[26] 利用 TCEQ 方法计算的结果一致. Berlin 等^[22] 将休斯顿、加尔维斯敦和布拉佐里亚合并为大休斯顿地区, 利用 TCEQ 方法计算得到的区域传输 O_3 量和 PCA 方法所得结果相关性系数为 0.80, 其又对区域传输 O_3 量与 O_3 日最大 8 h 平均值进行相关性分析, 得出 O_3 日最大 8 h 平均值 63% 的变异是由区域传输 O_3 所决定. Xue 等^[21] 利用 TCEQ 方法对中国香港 2002 ~ 2013 年秋季 (9 ~ 11 月) 的空气质量监测数据进行分析, 计算得到了 12 a 中每一年秋季的区域传输 O_x ($O_x = O_3 + NO_2$) 值和本地生成 O_x 值, 通过相关性分析证明了 O_x 日最大 8 h 平均值 75% 的变异是由区域传输 O_x 值决定的, 并运用 OBM 模型模拟出当地的 O_x 生成速率, 二者都证明了在中国香港政府的控制下, 中国香港本地生成的 O_x 量下降, 但由于区域传输 O_x 量的增加, 最终导致中国香港总体 O_x 水平并没有减少.

以上研究说明了利用 TCEQ 方法计算本地生成 O_3 量与区域传输 O_3 量的可行性, 并且通过与 O_3 日最大 8 h 平均值进行相关性分析可以得到两种来源对于当地 O_3 污染的贡献^[28], 但其主要针对个别城市或区域进行研究, 未对大区域的 O_3 来源特征进行分析及分类. 本文根据 2018 年地面 O_3 监测数据分析了全国 338 个地级及以上城市的 O_3 超标状况, 划分出 O_3 超标城市与达标城市; 利用 TCEQ 方法计算出各城市的区域传输 O_3 量和本地生成 O_3 量, 并

通过决定系数(R^2)对全国各城市的 O_3 来源进行解析,识别出以本地生成 O_3 污染为主的城市和以区域传输 O_3 污染为主的城市;最终根据各城市 O_3 超标状况与污染来源状况建立了 O_3 污染控制区的划分,以期为我国制定更加科学合理的 O_3 污染防控对策提供理论依据和技术支持。

1 材料与方法

1.1 数据来源

本文研究的范围为中国大陆(不包括中国香港、澳门和台湾),共 338 个地级及以上城市。 O_3 监测数据为中国环境监测总站 1 425 个国控监测点位的地面小时平均数据,根据《环境空气质量评价技术规范(试行)》(HJ 663-2013)^[29]和《环境空气质量标准》(GB 3095-2012)^[30]中数据统计的有效性规定,对所有有效数据进行统计,将由于监测仪器校准、停电或设备故障等不可抗拒因素造成的缺测或数据为零的 O_3 小时数据剔除,共剔除 26 328 个小时数据,数据有效率为 99.8%。气象数据为中国气象局国控点位的地面逐小时观测数据。

全国各城市 O_3 超标状况按照《环境空气质量评价技术规范(试行)》(HJ 663-2013)^[29]中的 O_3 年评价指标(1 a 中 O_3 日最大 8 h 平均值第 90 百分位数)以及《环境空气质量标准》(GB 3095-2012)^[30]中 O_3 的二级浓度限值($160 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)进行评价。

1.2 分析方法

1.2.1 TCEQ 方法

随着监测网络逐渐成熟,监测站点分布愈加广泛,通过 TCEQ 方法,利用研究区域内各监测站点的 O_3 日最大 8 h 平均值可计算出该地的本地生成 O_3 量和区域传输 O_3 量。为了便于环境管理政策的实施,本文以地级市为研究区域,依据由 Nielsen-Gammon 等^[26]改进后的 TCEQ 方法,筛选出各研究区域内城市化或工业化地区边缘或附近的监测站点,无论风向如何变化,总有一个筛选站点处于研究区域的上风向,可以监测到区域性气团,而其他站点或多或少地会受到本地生成 O_3 的影响,将这些筛选站点的 O_3 日最大 8 h 平均值的最小值作为区域传输 O_3 量,所有监测站点中的 O_3 日最大 8 h 平均值的最大值作为该地的最大 O_3 量(即区域传输 O_3 量与本地光化学反应生成 O_3 量的和)^[31],最终计算出每日的本地生成 O_3 量,即该地的最大 O_3 量与区域传输 O_3 量的差值:

$$LO_3 = DAO8_{\max} - DAO8_{\min}$$

式中, LO_3 表示本地生成 O_3 量; $DAO8_{\max}$ 表示区域

内所有站点中测得的 O_3 日最大 8 h 平均值的最大值; $DAO8_{\min}$ 表示区域内筛选站点中测得的 O_3 日最大 8 h 平均值的最小值。

TCEQ 方法对于城市站点数有一定要求,当城市中站点较少时,会影响 TCEQ 方法的准确性,甚至无法使用该方法。本研究中 15 个边远城市(海南藏族自治州、克孜勒苏柯尔克孜自治州和玉树藏族自治州等)由于监测站点较少无法准确使用 TCEQ 方法,根据地理位置特点,本文将其与周边城市合并形成 9 个新的区域再进行研究(包括:克孜勒苏柯尔克孜自治州与喀什地区;阿里地区与和田地区;塔城地区与克拉玛依市;五家渠市与昌吉回族自治州;海西蒙古族藏族自治州与玉树藏族自治州;海南藏族自治州、黄南藏族自治州、果洛藏族自治州与甘南藏族自治州;海北藏族自治州、西宁市与海东市;武威市与金昌市;黔南布依族苗族自治州与黔东南苗族侗族自治州)。

TCEQ 方法在一定条件下存在一些不确定性,如:①该地区前几日产生的 O_3 可能会因气流传输的影响再次回到该地区,导致过高地估计区域传输 O_3 量;②区域背景 O_3 可能具有比较大的空间梯度;③在山区等特殊地形中,TCEQ 方法有时并不一定能够完美捕捉到区域性气团;④对于沿海城市,如果海风比较微弱,只影响了部分沿海区域而未进入到整个城市地区,会造成部分沿海站点 O_3 测量值偏小,从而低估了该地的区域传输 O_3 量。前两种情况对于量化区域传输 O_3 量和本地生成 O_3 量来说是不可避免的。对于第 3 种情况,由于我国气候属于季风性气候,1 a 中主导风向发生着规律性的季节更替,夏季多为东南或西南风,冬季多为西北或东北风,本研究对 1 425 个国控监测点位全年的监测数据进行分析,统计了各种风向下的情况,最大限度地减小了山区地形对于 TCEQ 方法使用的影响。第 4 种情况可通过对数据的修正减少所造成的误差^[21,22],通过对全国各个沿海城市的站点位置进行检查,在其各自的海陆风盛行时间内,筛选出沿海站点监测数值远远小于内陆站点监测数值的天数,将内陆站点中的最小监测数值赋值给沿海站点,作为该区域的区域传输 O_3 量^[21]。本文共对 17 个城市 57 d 的数据进行了修正,这些城市修正时间内区域传输 O_3 量平均提高了 $32.0 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 。

1.2.2 决定系数(R^2)

决定系数(R^2)体现了回归模型中自变量的变异在因变量的变异中所占的比例。由于各 O_3 前体物的排放状况和气象条件的不同,各地光化学反应所产生的 O_3 对于本地 O_3 污染的贡献也不相同,因

此对本地生成 O_3 与 O_3 日最大 8 h 平均值进行相关性分析,利用 R^2 来评定本地光化学反应生成 O_3 的贡献. R^2 值越大,代表该地 O_3 污染受本地生成 O_3 的影响越大;反之,该地 O_3 污染受本地生成 O_3 的影响越小.

1.2.3 K-均值聚类分析

聚类分析是将一组样品中相似的对象组成一个类,最终形成“类内相似,类外有别”的多个类的一种统计分析方法.本文所使用的 K-均值聚类分析为非层次聚类分析,即分类前确定分为 K 类,随机选取每个类别的原始聚类中心,采用迭代的方法和距离最近的原则进行分类.通过该分类方法利用 R^2 值将全国 338 个城市分为两类: R^2 值较大的一类为 O_3 污染受本地生成 O_3 影响较大的城市; R^2 值较小的一类为 O_3 污染受外来传输 O_3 影响较大的城市.

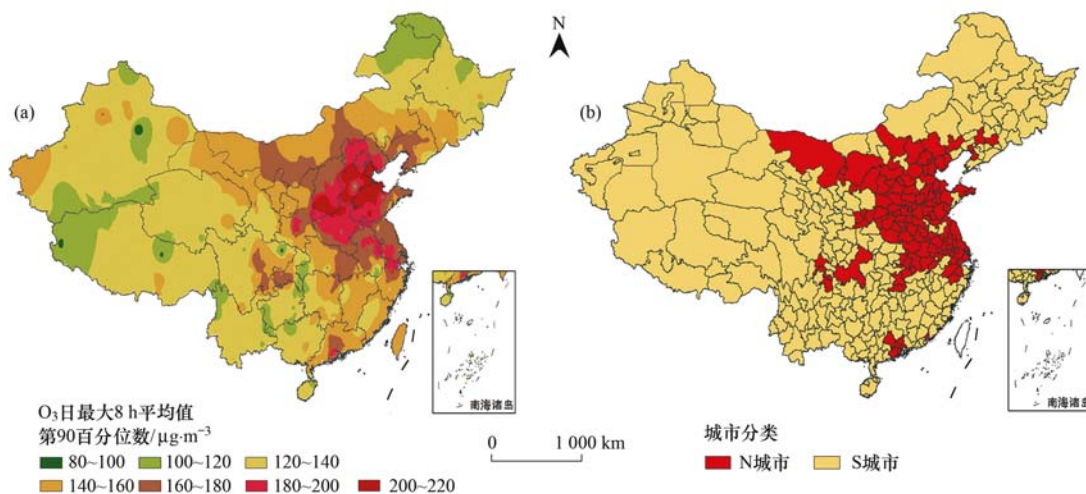
2 结果与讨论

2.1 我国 O_3 污染态势与超标情况

2018 年我国 338 个城市 O_3 日最大 8 h 平均值第 90 百分位数范围为 $85.3 \sim 218.5 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,平均值为 $(152.5 \pm 25.9) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. 图 1(a) 为 2018 年我

国 O_3 日最大 8 h 平均值第 90 百分位数空间分布,可以看出京津冀、长三角、珠三角、汾渭平原、成渝地区以及山东省西部、河南省北部等地 O_3 污染较为突出, O_3 浓度最高的前 5 个城市分别为临汾 ($218.5 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)、聊城 ($215.9 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)、滨州 ($214.6 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)、保定 ($211.0 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) 和晋城 ($210.9 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$). O_3 浓度最低的地区主要分布在黑龙江省北部、内蒙古东北部、新疆及西藏部分地区等,最低 O_3 浓度位于新疆吐鲁番地区,为 $85.3 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$.

图 1(b) 为 2018 年我国各城市的 O_3 超标情况空间分布,其中 O_3 浓度超标城市 (cities with ozone nonattainment situation, N 城市), O_3 浓度达标城市 (cities with ozone standard situation, S 城市). 2018 年全国共有 121 个城市 O_3 超标,超标率达 35.8%,包括北京、天津、上海、杭州、广州、佛山和东莞等地. O_3 超标城市分布特征较为明显,主要集中在发达城市及城市群. 这些 O_3 超标地区工业比较发达,人口稠密,机动车以及工业源排放的 O_3 前体物较多. 其中,内蒙古的乌兰察布、乌海市等地也出现了 O_3 超标的状况,这可能是来自京津冀地区及汾渭平原等地的 O_3 受气流影响,通过区域传输造成了下风向城市 O_3 浓度超标.



N 城市: O_3 超标城市; S 城市: O_3 达标城市; 数据不包括中国香港、澳门和台湾,下同

图 1 2018 年全国各城市 O_3 日最大 8 h 平均值第 90 百分位数及 O_3 超标情况空间分布

Fig. 1 Spatial distribution of 90th percentile of the daily maximum 8-h average O_3 and O_3 nonattainment situation in Chinese cities in 2018

2.2 各城市 O_3 污染主要来源

图 2 为 2018 年全国各城市本地生成 O_3 量和 R^2 值的分布. 其中,北京在 6 月本地生成 O_3 对于当地 O_3 污染的贡献为 16.7% (图略),这与赵芸程^[32]利用自主发展的空气质量数值模式 WRF-NAQPMS (weather research and forecasting model-nested air quality prediction modelling system) 以及生物源排放模式 MEGAN (model of emitting of gases and aerosols

from nature) 所计算出的 2018 年 6 月北京 O_3 日最大 8 h 平均值的来源解析结果中 18.6% 的本地贡献率相接近;王静^[33]利用 CAMx-OSAT 模型的污染源识别与追踪技术模拟解析了 2018 年 4 月 15 ~ 29 日不同区域对青岛市的 O_3 浓度贡献,结果表明其他城市长距离传输贡献约为 60% ~ 80%,这与本文计算的该时段内区域传输 O_3 贡献为 70.0% (图略) 相吻合.

由图 2 可以看出,本地生成 O_3 量高值点与 R^2

高值点(即以本地生成 O_3 污染为主的区域)分布比较广泛,但二者基本上相对应,主要分布在京津冀及周边地区、长三角、珠三角、成渝地区、甘肃兰州和山东半岛等地。而在新疆维吾尔自治区和黑龙江省这些本地生成 O_3 低值区域也出现了较大面积的 R^2 高值区域。这可能是由于新疆和黑龙江特殊的气候条

件与地形引起的^[6,34,35]。图3为2018年新疆维吾尔自治区与黑龙江省年均风速分布,在两省的 R^2 高值分布地区,年均风速均在 $2.5 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 左右,其较低的风速导致本地的 O_3 不易向外扩散,其他地区的 O_3 也较难传输过来,使得 R^2 值较高,因此当地 O_3 浓度主要受本地生成 O_3 的影响。

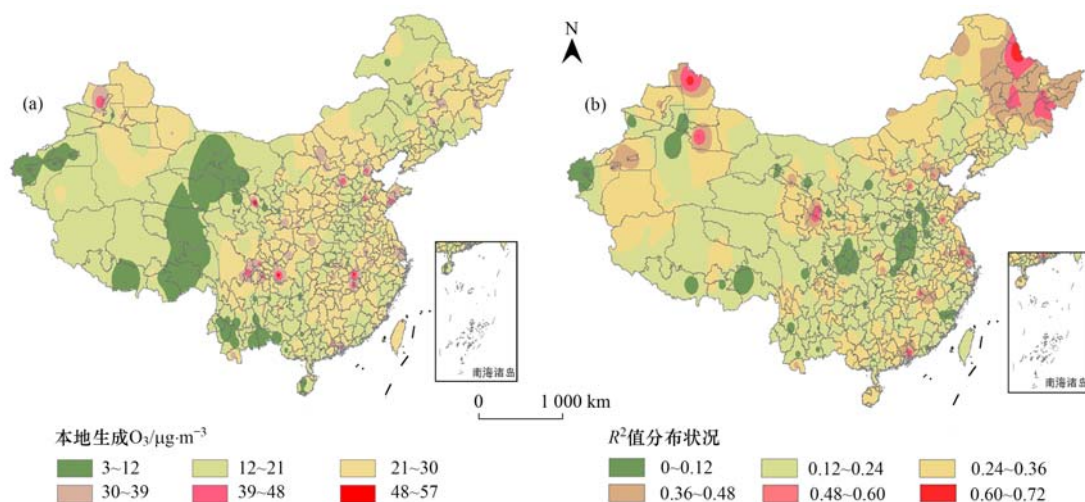


图2 2018年全国各城市本地生成 O_3 量及 R^2 分布

Fig. 2 Distribution of O_3 generated locally and R^2 in Chinese cities in 2018

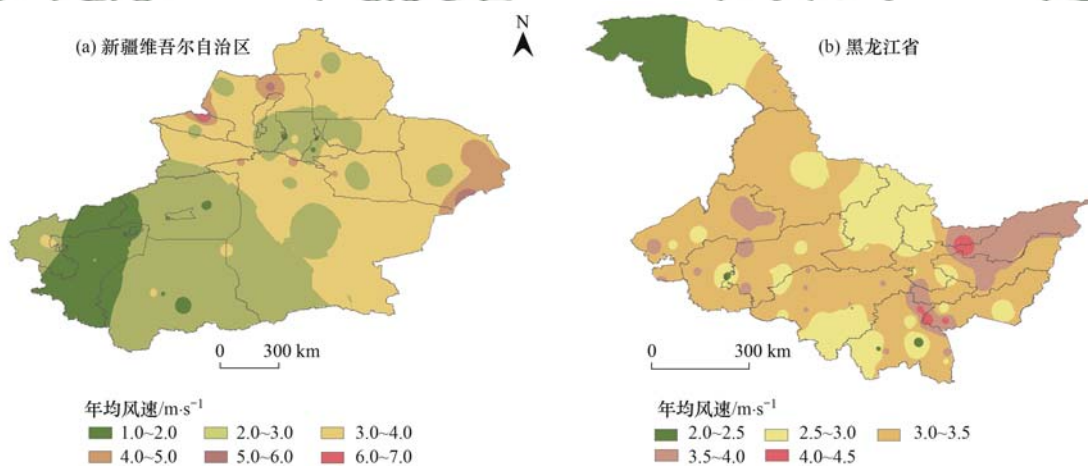


图3 2018年新疆维吾尔自治区与黑龙江省年均风速分布

Fig. 3 Distribution of annual wind speed in Xinjiang Uygur Autonomous Region and Heilongjiang Province in 2018

利用 R^2 值通过 K-均值聚类分析法对全国各城市 O_3 主要污染源进行聚类分析,表1和图4分别为2018年全国各城市 O_3 主要污染源聚类分析结果以及各城市 O_3 主要污染源分类,可以看出全国共分为两类城市,其中北京、天津、上海、广州和东莞等104个城市为聚类1城市, R^2 平均值为 0.435 ± 0.103 ,占总城市数的30.8%,即以本地生成 O_3 为主的(cities with mainly locally generated ozone, L城市)。在L城市中,本地生成 O_3 对于 O_3 浓度的贡献率均大于30.0%,这类城市通过对其属地进行治理,削减 O_3 前体物的排放量,可以显著改善 O_3 污染

状况。聚类2城市中,桂林、内江、绍兴、枣庄和廊坊等234个城市的 R^2 平均值为 0.156 ± 0.084 ,占总城市数的69.2%,即以区域传输 O_3 为主的(cities with mainly regionally transported ozone, T城市)。对于这些城市来说,其本地生成 O_3 在当地 O_3 污染中的贡献率均小于30.0%, O_3 污染主要受其上风向城市 O_3 传输的影响,所以在对当地 O_3 进行治理的同时,上风向城市也应承担较大的 O_3 治理责任。

2.3 城市分类结果

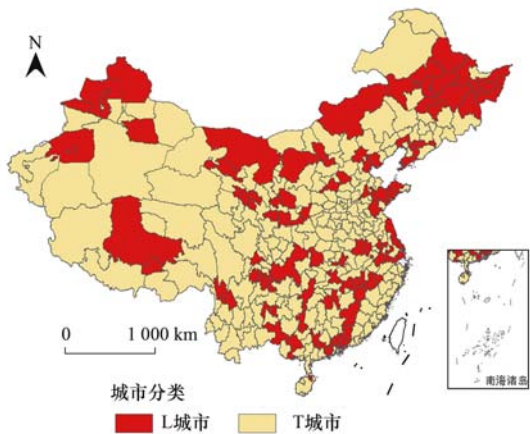
综合以上分析的全国338个城市 O_3 超标情况以及由 R^2 判定的 O_3 污染主要来源结果,将全国

表 1 2018 年全国各城市 O₃ 主要污染源聚类分析结果¹⁾

Table 1 Cluster analysis results of major sources of O₃ pollution in Chinese cities in 2018

类别	城市类别	城市数量	R ²	
			均值	标准差
聚类 1	L 城市	104	0.435	0.103
聚类 2	T 城市	234	0.156	0.084

1) 聚类 1: R² > 0.300 的城市; 聚类 2: R² < 0.300 的城市



城市分类
L 城市:以本地生成 O₃ 为主的城市;
T 城市:以区域传输 O₃ 为主的城市

图 4 2018 年全国各城市 O₃ 主要污染源分类

Fig. 4 Classification of major sources of O₃ pollution in Chinese cities in 2018

338 个地级及以上城市分为以下 4 类:超标-以本地生成 O₃ 为主的城市 (cities with ozone nonattainment situation and mainly locally generated ozone, N-L 城市);超标-以区域传输 O₃ 为主的城市 (cities with ozone nonattainment situation and mainly regionally transported ozone, N-T 城市);达标-以本地生成 O₃ 为主的城市 (cities with ozone standard situation and mainly locally generated ozone, S-L 城市) 和达标-以区域传输 O₃ 为主的城市 (cities with ozone standard situation and mainly regionally transported ozone, S-T 城市)。

表 2 为全国 4 类城市的 O₃ 浓度与 R² 值。从中可以看出,属于 N-L 的城市有 35 个,占全国城市总

数的 10.4%,主要包括北京、天津、石家庄、上海、广州、佛山、济南和重庆等地,其 2018 年 O₃ 日最大 8 h 平均值第 90 百分位数均值为 178.5 μg·m⁻³, R² 均值为 0.433,最大值可达 0.646。图 5 为全国 4 类城市的分类,从中可知,红色区域为 N-L 城市,主要分布在京津冀及周边地区、长三角、珠三角、成渝地区以及山东省部分地区。这类城市工业发达,人口稠密,机动车排放的 O₃ 前体物数量较大,光化学反应强烈,在导致本地 O₃ 浓度超标的同时,甚至有可能使下风向城市 O₃ 浓度升高,属于需重点控制的城市。

属于 N-T 的城市有 86 个,占城市总数的 25.4%,主要包括保定、承德、绍兴、肇庆、扬州和苏州等地。该区域的 2018 年 O₃ 日最大 8 h 平均值第 90 百分位数均值为 181.9 μg·m⁻³, R² 均值为 0.165,最小值为 0.015。图 5 中粉色区域为 N-T 城市,可以看出该类城市主要分布在 N-L 城市附近,虽然本地生成 O₃ 贡献不大,但处于 O₃ 污染严重城市的下风向时, O₃ 可通过传输的方式进入到该类城市中,进而导致了较为严重的 O₃ 超标现象。

属于 S-L 的城市有 69 个,占比为 20.4%,主要包括深圳、兰州、青岛、哈尔滨、惠州和海口等地。该区域的 2018 年 O₃ 日最大 8 h 平均值第 90 百分位数均值为 135.6 μg·m⁻³, R² 均值为 0.436,最大值为 0.729。图 5 中深蓝色区域为 S-L 城市,这类城市多属于经济发达城市,人口较多,虽然 O₃ 浓度未超标,但光化学反应比较活跃, O₃ 浓度变化主要是受当地生成 O₃ 的影响。

属于 S-T 的城市有 148 个,占比达到 43.8%,主要包括汕头、宿州、温州、韶关、雅安和宿迁等地。该区域的 2018 年 O₃ 日最大 8 h 平均值第 90 百分位数均值为 137.7 μg·m⁻³, R² 均值为 0.153,最小值为 0.000 5。图 5 中浅蓝色区域为 S-T 城市,这些城市经济发达程度略低,重工业相对较少,前体物排放量不大,使得光化学反应较弱,本地生成 O₃ 量少, O₃ 浓度也相对较低。

表 2 不同城市类别 O₃ 浓度与 R² 值

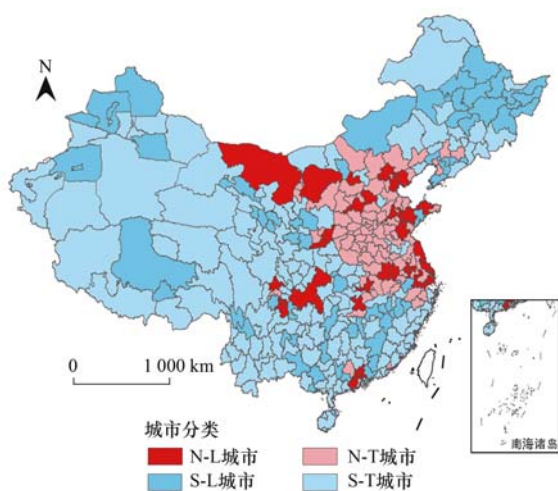
Table 2 O₃ concentration and R² values in different city categories

城市类别	城市数量	代表城市	O ₃ 日最大 8 h 平均值 第 90 百分位数 /μg·m ⁻³	R ²		
				平均值	最大值	最小值
N-L	35	北京、上海、广州和重庆	178.5	0.433	0.646	0.301
N-T	86	保定、承德、绍兴和太原	181.9	0.165	0.288	0.015
S-L	69	哈尔滨、兰州、惠州和青岛	135.6	0.436	0.729	0.300
S-T	148	汕头、宿州、韶关和雅安	137.7	0.153	0.296	0.000 5

2.4 全国臭氧控制区划分结果

为了能最大限度达到 O₃ 控制措施实施的便利

性和有效性, O₃ 控制区的划分应尽量达成同一控制区内特征的一致性和不同控制区之间的差异性,及协



N-L 城市:超标-以本地生成 O_3 为主的城市; N-T 城市:超标-以区域传输 O_3 为主的城市; S-L 城市:达标-以本地生成 O_3 为主的城市; S-T 城市:达标-以区域传输 O_3 为主的城市

图 5 2018 年全国城市 O_3 污染分类

Fig. 5 Classification of O_3 pollution in Chinese cities in 2018

调性. 结合已有研究,张南南等^[36]在对宜昌市进行空气资源等级分区时,以国家环保部颁布的《制定地方大气污染物排放标准的技术方法》(GB/T 13201-91)中所规定的通风系数 A 值为依据,将宜昌地区空气资源禀赋等级共分为 4 级:充裕、较好、一般和稀少. 此类等级的划分,具有一定的经验性和探索性,体现的不是某个地区的绝对量,而是空间分布差异和相对大小. 本研究根据各省份中 4 类城市的占比情况,将全国划分为 3 个等级的控制区. 图 6(a) 为初步分区结果,其中蓝色区域为一般控制区,主要包括黑龙江、新疆、吉林、甘肃、广西和江西等 12 个省(自治区). 如表 3 所示,这些省(自治区)中的 N-L 城市与 N-T 城市占比均为 0%,在 S 城市中又主要以 S-T 城市为主(65.4%),本地生成 O_3 对该区域影响较小, O_3 污染情况较轻. 红色区域为

重点控制区,其 2018 年 O_3 城市超标率(N-L 城市与 N-T 城市总占比)为 57.7%, 4 类城市均有分布,其中 N-T 城市占比最高(41.9%). 而在重点控制区中又存在一部分省份,其 S-T 城市占比较高,属于重点控制区中污染状况较轻,本地光化学反应产生 O_3 对其贡献较小的区域,将这部分省份进一步划分为中度控制区. 对于 O_3 超标问题严重(N-L 城市与 N-T 城市总占比较大)并且本地生成 O_3 对 O_3 污染影响较大(N-L 城市占比明显大于其他地区)的省份,则进一步划分为重度控制区,如图 6(b) 所示.

表 4 为最终划分出的重度控制区、中度控制区和一般控制区中 4 类城市所占比例的特征,可以看出重度控制区包括 13 个省(自治区、直辖市),主要有北京、天津、上海、重庆、江苏、广东、山东、河南、山西、河北和安徽等, N 城市及 N-L 城市占比分别为 73.9% 和 20.3%,在 3 类控制区中比例最大,污染最为严重,本地生成 O_3 影响也较大;中度控制区主要有浙江、宁夏、内蒙古、辽宁、四川和湖南等 6 个省(自治区),其 4 类城市占比分别为 7.8%、20.8%、20.8% 和 50.6%,均属于 3 类控制区的中等水平. 由于 R^2 高值点分布较为广泛,三类控制区中 L 城市占比差距并不明显,依次为 27.5%、28.6% 和 34.6%. 一般控制区比例最高主要是由于新疆维吾尔自治区和黑龙江省的贡献,若去掉这两个省份的影响,一般控制区的 L 城市占比为 24.1%.

在所划分出的 3 类控制区中,重度控制区涵盖了京津冀、长三角、珠三角、山东城市群、汾渭平原等国家所确定的 O_3 重污染地区,但由于本研究在考虑 O_3 浓度是否超标的同时,还考虑了引起该地 O_3 污染的主要来源,所以划定的重点控制城市不完全相同,如长三角地区的扬州、泰州、绍兴等,虽然这些城市 O_3 超标,但其本地 O_3 浓度主要受区

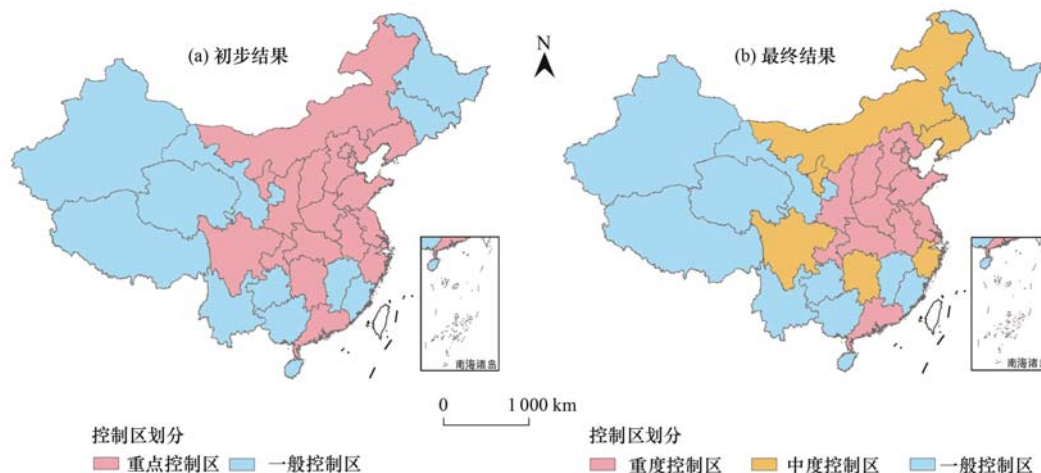


图 6 2018 年全国 O_3 控制区划分初步与最终结果

Fig. 6 Preliminary and final divisions of national O_3 control areas in China in 2018

域传输的影响,在本次研究中未被列为重点控制城市.此外,重度控制区与一般控制区分别同李霄阳等^[12]利用 Global Moran's I 和 Getis-Ord G_i^* 指数划分出的热点区(O_3 高值聚集紧密的地区)和冷点区(O_3 低值聚集紧密的地区)基本一致,但珠三角等地被其划为了冷点区,这是由于利用 O_3 年平均值进行统计的原因,而本文是利用 O_3 日最大 8

h 平均值第 90 百分位数对城市 O_3 状况进行评价,并通过珠三角等地的 O_3 来源状况最终将其划分为重度控制区,与国家划分的大气重污染地区基本一致.另外, O_3 控制区的划分除应考虑 O_3 污染状况、区域传输等因素外, O_3 与前体物的关系及 O_3 敏感性的差异也应纳入考虑,这也是本研究下一步要进行的内容.

表 3 重点控制区和一般控制区各类城市占比

Table 3 Proportion of various cities in key and general control areas

控制区	省(自治区、直辖市) 数量/个	N-L 城市占比 /%	N-T 城市占比 /%	S-L 城市占比 /%	S-T 城市占比 /%
重点	19	15.8	41.9	12.1	30.2
一般	12	0	0	34.6	65.4

表 4 全国 O_3 控制区各类城市占比

Table 4 Proportion of various cities in O_3 pollution control areas

项目	省(自治区、直辖市)	数量/个	N-L 城市 占比/%	N-T 城市 占比/%	S-L 城市 占比/%	S-T 城市 占比/%
重度控制区	北京、上海、天津、重庆、江苏、广东、山东、河南、山西、河北、安徽、陕西和湖北	13	20.3	53.6	7.2	18.8
中度控制区	浙江、内蒙古、湖南、四川、辽宁和宁夏	6	7.8	20.8	20.8	50.6
一般控制区	黑龙江、新疆、吉林、甘肃、西藏、青海、福建、江西、广西、云南、贵州和海南	12	0	0	34.6	65.4

2.5 基于臭氧污染分区的管理建议

O_3 能在区域内进行传输,具有非常明显的区域性特征,如果仅仅对其进行属地管理,效果甚微^[24].因此,区域性大气联防联控机制的建立是解决 O_3 等二次污染问题的重要途径.在划定区域内,各城市之间应统一管理,共同制定大气污染防治计划和目标.但不同城市由于经济发展状况不同,对于 O_3 污染的贡献也不同.基于此,在各城市之间应建立区别性的责任体系^[15].第一类 N-L 城市 O_3 浓度超标,污染较为严重, O_3 前体物排放量也较大,污染主要受本地生成 O_3 的影响;而第三类 S-L 城市虽然 O_3 浓度未超标,但光化学反应生成的 O_3 是当地 O_3 的主要来源,如果不做好 O_3 污染的防治工作,在 NO_x 与 VOCs 的排放量增加,气象条件适宜的情况下,很容易造成 O_3 污染加剧,并且可能导致附近城市的 O_3 浓度也相应升高.以上两类城市在区域联防联控中应该承担主要的减排责任,从而更有效地降低当地 O_3 浓度.第二类 N-T 城市与第四类 S-T 城市,主要受外来传输 O_3 的影响,本地生成的 O_3 贡献较小,联防联控中应该承担较小的减排责任,在控制当地前体物排放的同时,更应该对其上风向城市进行污染物管控.

3 结论

(1)2018 年我国 338 个地级及以上城市 O_3 日

最大 8 h 第 90 百分位数浓度为 $85.3 \sim 218.5 \mu g \cdot m^{-3}$,平均值为 $(152.5 + 25.9) \mu g \cdot m^{-3}$,共有 121 个城市超标,超标率达到 35.8%,主要分布在京津冀、长三角、珠三角、汾渭平原、成渝地区以及山东省西部、河南省北部等地.

(2) O_3 污染受本地生成 O_3 影响较大(R^2 值较大)的区域分布较为分散,主要分布在京津冀及周边地区、长三角、珠三角、成渝地区、甘肃兰州和山东半岛等地,大致与本地生成 O_3 高值点相对应.但在新疆维吾尔自治区和黑龙江省的本地生成 O_3 低值点也出现了较大面积的 R^2 高值现象,这主要与当地的低风速有关.利用 R^2 进行 K-均值聚类分析将全国 338 个城市分为两类: O_3 污染主要受本地生成 O_3 影响的,即 L 城市($R^2 > 0.300$)共有 104 个; O_3 污染主要受区域传输 O_3 影响的,即 T 城市($R^2 < 0.300$)共有 234 个.

(3)根据各城市的 O_3 超标状况以及主要污染来源,最终将 338 个城市分为 4 类:N-L 城市、N-T 城市、S-L 城市和 S-T 城市.其中 N-L 城市有 35 个,占比 10.4%,主要包括北京、天津、石家庄、上海、广州、佛山、济南和重庆等地;N-T 城市有 86 个,占比 25.4%,主要包括保定、承德、绍兴、肇庆、扬州和苏州等地;S-L 城市有 69 个,占比 20.4%,主要包括哈尔滨、兰州、惠州、深圳、青岛和海口等地;S-T 城市有 148 个,占比 43.8%,主要包括汕头、宿州、韶关、

雅安、温州和宿迁等地。

(4)根据各省份中4类城市占比,将全国划分为3类控制区:重度控制区、中度控制区及一般控制区。在重度控制区中N-L城市(20.3%)在3类控制区中占比最多,污染最为严重;中度控制区中,4类城市的占比均处于中等水平;一般控制区中,则主要以S-T城市(65.4%)为主,本地生成 O_3 量较少,污染程度较轻。

参考文献:

- [1] 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.
- [2] Wang T, Xue L K, Brimblecombe P, *et al.* Ozone pollution in China: a review of concentrations, meteorological influences, chemical precursors, and effects[J]. Science of the Total Environment, 2017, **575**: 1582-1596.
- [3] Duncan B N, Yoshida Y, Olson J R, *et al.* Application of OMI observations to a space-based indicator of NO_x and VOC controls on surface ozone formation[J]. Atmospheric Environment, 2010, **44**(18): 2213-2223.
- [4] Li K, Jacob D J, Liao H, *et al.* Anthropogenic drivers of 2013-2017 trends in summer surface ozone in China[J]. Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America, 2019, **116**(2): 422-427.
- [5] 刘小正,楼晟荣,陈勇航,等.基于OMI数据的中国中东部城市近地面臭氧时空分布特征研究[J]. 环境科学学报, 2016, **36**(8): 2811-2818.
Liu X Z, Lou S R, Chen Y H, *et al.* Spatiotemporal distribution of ground-level ozone in mid-east China based on OMI observations[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2016, **36**(8): 2811-2818.
- [6] 黄秋霞.新疆典型区域近地面臭氧浓度特征分析[D]. 乌鲁木齐:新疆大学, 2014.
Huang Q X. The characteristics analysis of surface ozone at typical areas of Xinjiang[D]. Urumqi: Xinjiang University, 2014.
- [7] Wang Z B, Li J X, Liang L W. Spatio-temporal evolution of ozone pollution and its influencing factors in the Beijing-Tianjin-Hebei Urban Agglomeration[J]. Environmental Pollution, 2020, **256**, doi: 10.1016/j.envpol.2019.113419.
- [8] 班婕,李湉湉.北京市不同度量方式下臭氧短期暴露人群急性健康效应研究[J]. 环境与健康杂志, 2016, **33**(4): 287-291.
Ban J, Li T T. Short-term effects of different ozone metrics on daily mortality in Beijing[J]. Journal of Environment and Health, 2016, **33**(4): 287-291.
- [9] 中华人民共和国生态环境部. 2017 中国生态环境状况公报[EB/OL]. <http://www.mee.gov.cn/hjzl/zghjzkgh/lnzghjzkgh/201805/P020180531534645032372.pdf>, 2018-05-22.
- [10] 中华人民共和国生态环境部. 2018 中国生态环境状况公报[EB/OL]. <http://www.mee.gov.cn/hjzl/zghjzkgh/lnzghjzkgh/201905/P020190619587632630618.pdf>, 2019-05-22.
- [11] 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.
- [12] 李霄阳,李思杰,刘鹏飞,等.2016年中国城市臭氧浓度的时空变化规律[J]. 环境科学学报, 2018, **38**(4): 1263-1274.
Li X Y, Li S J, Liu P F, *et al.* Spatial and temporal variations of ozone concentrations in China in 2016[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2018, **38**(4): 1263-1274.
- [13] 张远航,邵可声,唐孝炎,等.中国城市光化学烟雾污染研究[J]. 北京大学学报(自然科学版), 1998, **34**(2-3): 260-268.
Zhang Y H, Shao K S, Tang X Y, *et al.* The study of urban photochemical smog pollution in China[J]. Acta Scientiarum Naturalium Universitatis Pekinensis, 1998, **34**(2-3): 260-268.
- [14] 李媛媛,黄新皓.美国臭氧污染控制经验及其对中国的启示[J]. 世界环境, 2018, (1): 24-27.
Li Y Y, Huang X H. The experience of ozone pollution control in the United States and its implications to China[J]. World Environment, 2018, (1): 24-27.
- [15] 柴发合,王璐,罗宏,等.美国与欧盟关于 $PM_{2.5}$ 和臭氧的监管政策述评[J]. 环境工程技术学报, 2013, **3**(1): 46-52.
Chai F H, Wang X, Luo H, *et al.* Review of supervision policies of USA and European Union on $PM_{2.5}$ and O_3 [J]. Journal of Environmental Engineering Technology, 2013, **3**(1): 46-52.
- [16] 杨昆,黄一彦,石峰,等.美日臭氧污染问题及治理经验借鉴研究[J]. 中国环境管理, 2018, **10**(2): 85-90.
Yang K, Huang Y Y, Shi F, *et al.* Research on the ozone pollution and control measures in US and Japan[J]. Chinese Journal of Environmental Management, 2018, **10**(2): 85-90.
- [17] Tabler S K. EPA's Program for establishing national emission standards for hazardous air pollutants[J]. Journal of the Air Pollution Control Association, 1984, **34**(5): 532-536.
- [18] 杨柳林,李敏辉,廖程浩,等.大气环境分区管理:以广东省为例[J]. 环境科学, 2018, **39**(1): 49-56.
Yang L L, Li M H, Liao C H, *et al.* Air quality subarea management: a case study of Guangdong Province[J]. Environmental Science, 2018, **39**(1): 49-56.
- [19] Hayashida S, Kajino M, Deushi M, *et al.* Seasonality of the lower tropospheric ozone over China observed by the Ozone Monitoring Instrument[J]. Atmospheric Environment, 2018, **184**: 244-253.
- [20] Li Y, Lau A K H, Fung J C H, *et al.* Ozone source apportionment (OSAT) to differentiate local regional and super-regional source contributions in the Pearl River Delta region, China[J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2012, **117**(D15): D15305, doi: 10.1029/2011JD017340.
- [21] Xue L K, Wang T, Louie P K K, *et al.* Increasing external effects negate local efforts to control ozone air pollution: A case study of Hong Kong and implications for other Chinese cities[J]. Environmental Science & Technology, 2014, **48**(18): 10769-10775.
- [22] Berlin S R, Langford A O, Estes M, *et al.* Magnitude, decadal changes, and impact of regional background ozone transported into the Greater Houston, Texas, area[J]. Environmental Science & Technology, 2013, **47**(24): 13985-13992.
- [23] Kemball-Cook S, Parrish D, Ryerson T, *et al.* Contributions of regional transport and local sources to ozone exceedances in Houston and Dallas: comparison of results from a photochemical

- grid model to aircraft and surface measurements[J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2009, **114**(D7), doi: 10.1029/2008JD010248.
- [24] Xue L K, Wang T, Gao J, *et al.* Ground-level ozone in four Chinese cities: precursors, regional transport and heterogeneous processes[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2014, **14**(23): 13175-13188.
- [25] Zong R H, Yang X, Wen L, *et al.* Strong ozone production at a rural site in the North China Plain: Mixed effects of urban plumes and biogenic emissions[J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2018, **71**: 261-270.
- [26] Nielsen-Gammon J, Tobin J, McNeel A, *et al.* A conceptual model for eight-hour ozone exceedances in Houston, Texas part I: background ozone levels in Eastern Texas[R]. Texas: Center for Atmospheric Chemistry and the Environment, Texas A&M University, 2005. 1-52.
- [27] Langford A O, Senff C J, Banta R M, *et al.* Regional and local background ozone in Houston during Texas Air Quality Study 2006[J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2009, **114**(D7), doi: 10.1029/2008JD011687.
- [28] 王亚军. 相关系数与决定系数辨析[A]. 见: 长江流域暨西北地区科技期刊协作网 2008 年学术年会论文集[G]. 西安: 中国科学技术期刊编辑学会, 2008. 74-77.
- [29] HJ 663-2013, . 环境空气质量评价技术规范(试行)[S].
- [30] GB 3095-2012, 环境空气质量标准[S].
- [31] 吴琳, 薛丽坤, 王文兴. 基于观测的臭氧污染研究方法[J]. *地球环境学报*, 2017, **8**(6): 479-491.
- Wu L, Xue L K, Wang W X. Review on the observation-based methods for ozone air pollution research[J]. *Journal of Earth Environment*, 2017, **8**(6): 479-491.
- [32] 赵芸程, 李杰, 杜惠云, 等. 北京夏季近地面臭氧及其来源的数值模拟研究[J]. *环境科学学报*, 2019, **39**(7): 2315-2328.
- Zhao Y C, Li J, Du H Y, *et al.* Numerical simulation of near-surface ozone and its sources in Beijing in summer[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2019, **39**(7): 2315-2328.
- [33] 王静, 束蕾, 石来元, 等. 基于数值模拟的青岛市 O₃ 快速来源解析[J]. *中国环境监测*, 2020, **36**(2): 184-195.
- Wang J, Shu L, Shi L Y, *et al.* Fast ozone source apportionment based on numerical simulation in Qingdao[J]. *Environmental Monitoring in China*, 2020, **36**(2): 184-195.
- [34] 刘海群, 张海鹰. 黑龙江省大气污染的主要气候特征[J]. *黑龙江气象*, 1997, (1): 19-21, 25.
- Liu H Q, Zhang H Y. The main climatic characteristics of air pollution in Heilongjiang Province [J]. *Heilongjiang Meteorology*, 1997, (1): 19-21, 25.
- [35] 何平平, 邢佳, 倪艳芳. 黑龙江省大气污染防治思路研究[J]. *环境科学与管理*, 2015, **40**(3): 21-23.
- He P P, Xing J, Ni Y F. Prevention of atmospheric pollution in Heilongjiang Province [J]. *Environmental Science and Management*, 2015, **40**(3): 21-23.
- [36] 张南南, 万军, 苑魁魁, 等. 空气资源评估方法及其在城市环境总体规划中的应用[J]. *环境科学学报*, 2014, **34**(6): 1572-1578.
- Zhang N N, Wan J, Yuan K K, *et al.* Air source assessment method and its application in urban environmental master planning[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2014, **34**(6): 1572-1578.

CONTENTS

Sources and Control Area Division of Ozone Pollution in Cities at Prefecture Level and Above in China	YAN Hui, ZHANG Wei, HOU Mo, <i>et al.</i> (5215)
Dynamic Assessment of PM _{2.5} Health Damage Value in China from 2015 to 2018	LI Hui-juan, ZHOU De-qun, WEI Yong-jie (5225)
Analysis of Multi-scale Spatio-temporal Differentiation Characteristics of PM _{2.5} in China from 2011 to 2017	YANG Wen-tao, QIAO Peng, LIU Xian-zhao, <i>et al.</i> (5236)
Spatio-temporal Evolution and Population Exposure Risk to PM _{2.5} in the Guanzhong Area	HUANG Xiao-jun, QI Ming-yue, LI Yan-yu, <i>et al.</i> (5245)
Formation Mechanism and Source Analysis of Two Heavy Pollution Periods in Winter in a Central Plains City	JIA Jia, CONG Yi, GAO Qing-min, <i>et al.</i> (5256)
Winter Pollution Characteristics and Physicochemical Properties of PM _{2.5} in a Northwest Industrial City	YANG Yan-ping, CHEN Qiang, WANG Li-na, <i>et al.</i> (5267)
Characterization of Metal Pollution of Regional Atmospheric PM _{2.5} and Its Sources Based on the PMF Model	DENG Lin-li, ZHANG Kai-shan, YIN Zi-yuan, <i>et al.</i> (5276)
Pollution Characteristics and Assessment of Heavy Metals in Atmospheric Deposition in Core Urban Areas, Chongqing	ZHANG Xia, LIU Bin, XIAO Bo-lin, <i>et al.</i> (5288)
Factors Influencing New Atmospheric Particle Formation in Ordos During Summer and Autumn 2019	KONG Xiang-chen, WANG Hong-lei, ZHANG Lian-xia, <i>et al.</i> (5295)
Characteristics and Reactivity of Ambient VOCs in Urban Hangzhou, China	JING Sheng-ao, GAO Ya-qin, SHEN Jian-dong, <i>et al.</i> (5306)
Characteristics and Sources of Atmospheric Volatile Organic Compounds Pollution in Summer in Chengdu	XU Chen-xi, CHEN Jun-hui, JIANG Tao, <i>et al.</i> (5316)
Characteristics and Source Apportionment of VOCs and O ₃ in Shijiazhuang	WANG Shuai, CUI Jian-sheng, FENG Ya-ping, <i>et al.</i> (5325)
Analysis of Industrial VOCs Emission Inventory and Countermeasures in Xiamen	WU Dong-yang, ZHUANG Ma-zhan, WU Yan-cong, <i>et al.</i> (5336)
Emission Inventory and Emission Factors of Volatile Organic Compounds (VOCs) from Architectural Adhesives	LIANG Xiao-ming, SUN Xi-bo, SU Yan-hua, <i>et al.</i> (5345)
Sources and Health Risks of Atmospheric Polychlorinated Biphenyls in an Urban/Industrial Areas, Northwest China	MAO Xiao-xuan, LI Zi-xuan, SONG Shi-jie, <i>et al.</i> (5352)
Vertical Distribution of Surface Formaldehyde in the Pearl River Delta Urban Area Based on Observations at the Canton Tower	HUANG Shan, PEI Cheng-lei, ZHANG Ying, <i>et al.</i> (5362)
Temporal and Spatial Characteristics of Total Phosphorus in the Middle and Lower Yangtze River Mainstem Under New Water and Sediment Conditions	ZHUO Hai-hua, LOU Bao-feng, WU Yun-li, <i>et al.</i> (5371)
Seasonal Variations in Nitrogen and Phosphorus Concentration and Stoichiometry of Hanfeng Lake in the Three Gorges Reservoir Area	QIAN Tian, HUANG Qi, HE Bing-hui, <i>et al.</i> (5381)
Distribution Characteristics and Pollution Assessment of Nutrients in Hengshui Lake Sediments	ZHANG Jia-wen, WEI Jian, LIU Li, <i>et al.</i> (5389)
Endogenous Pollution and Release Characteristics of Bottom Sediments of Hengshan Reservoir in Yixing City	CUI Hui-fang, CHEN Shu-yun, YANG Chun-hui, <i>et al.</i> (5400)
Pollution and Ecological Risk Assessment and Source Apportionment of Heavy Metals in Sediments of Qingliangshan Reservoir in the Meijiang Basin	JIANG Tao, LIN Wei-wen, CAO Ying-jie, <i>et al.</i> (5410)
Influence Factors of Potential Nitrification Rates and Functional Genes Abundance in the Jinshui River and the Qihe River of the Hanjiang River Basin	ZHAO Bin-jie, WANG Xu, ZHANG Jian, <i>et al.</i> (5419)
Contamination Characteristics and Potential Ecological Risks of Typical Perfluoroalkyl Substances in the Water and Sediment of Coastal Tourism Resorts in Shandong Province	WANG Shi-liang, CAO Xue-zhi (5428)
Distribution Characteristics and Source Identification of Organophosphate Esters in Key Waters Areas of Taihu Lake	LÜ Jia-pei, ZHANG Zhen-fei, LIU Yang, <i>et al.</i> (5438)
Residual Characteristics and Health Assessment Analysis of OCPs and PCBs in Karst Groundwater	YE Kai, SUN Yu-chuan, JIA Ya-nan, <i>et al.</i> (5448)
Biogeographic Distribution Patterns of Diatoms in Lancang River and Their Key Drivers	SUN Sheng-hao, CHEN Juan, WANG Pei-fang, <i>et al.</i> (5458)
Bioaccumulation Characteristics of Quinolones (QNs) in Dominant Fish Species and Their Correlation with Environmental Factors in Baiyangdian Lake	SHEN Li-na, FU Yu, ZHANG Lu-lu, <i>et al.</i> (5470)
Effect of Biomass Particle Size on the Adsorption of Phosphorus from Aqueous Solution by MgO-loaded Biochar	WANG Peng-fei, ZHI Meng-meng, CHU Zhao-sheng, <i>et al.</i> (5480)
Photocatalytic Degradation of Tetracycline and Copper Complex by Bi ₂ MoO ₆ /Bi ₂ S ₃ Heterojunction	HUANG Wen-xin, WEI Hu, JIANG Cai-yun, <i>et al.</i> (5488)
Enhancing PPCPs Removal and Membrane Fouling Control of Ultrafiltration Membrane by UiO-66@Fe ₃ O ₄ @UiO-66	YIN Yue, WU Dao-wen, SUN Meng-yao, <i>et al.</i> (5500)
Advanced Treatment of Tail Water Using Pilot-scale Horizontal and Vertical Subsurface Flow Constructed Wetlands in Low-temperature Seasons	LIAO Xue-ke, YAN Han-lu, WANG Zhi-yuan, <i>et al.</i> (5509)
Metagenomic Insights into Salinity Build-up in Microbial Communities and Metabolism of Hydrolytic Bioreactor Treating High-color PDWW	GAO Jing, ZHANG Shao-hua, WANG Rui, <i>et al.</i> (5518)
Performance and Microbial Characteristics of Ammonium-limited and Nitrite-limited ANAMMOX Systems	SONG Jia-jun, ZHU Ming-yi, GUO Kai-cheng, <i>et al.</i> (5527)
Microbial Community Structure and Diversity During the Enrichment of Anaerobic Ammonium Oxidation Bacteria	YAN Bing, XIA Song, GUI Shuang-lin, <i>et al.</i> (5535)
Enhanced Dewaterability of Waste-Activated Sludge in Presence of Fe(II)-Activated Calcium Peroxide	BI Wei-wei, RUAN Shu-yu, CHEN Wu-ao-xiao, <i>et al.</i> (5544)
Spatial Distribution, Contamination Assessment, and Sources of Heavy Metals in the Urban Green Space Soils of a City in North China	ZHAO Liang, LIANG Yun-ping, CHEN Qian, <i>et al.</i> (5552)
Technological Classification of Cadmium Quality in the Rice Producing Areas of South China	DOU Wei-qiang, AN Yi, QIN Li, <i>et al.</i> (5562)
Distribution Characteristics of Selenium in a Soil-Crop System and the Threshold of Selenium-Rich Soils	WANG Rui, DENG Hai, JIA Zhong-min, <i>et al.</i> (5571)
Transfer Factor and Health Risk Assessment of Heavy Metals in a Soil-Crop System in a High Incidence Area of Nasopharyngeal Carcinoma, Guangdong	YE Mai, ZHANG Jing-ru, ZHANG Lu-lu, <i>et al.</i> (5579)
DA-6 and GLDA Enhanced <i>Panicum virgatum</i> L. to Phytoextract Cd from Contaminated Soils	WANG Zheng, SUN Zhao-jun, Sameh Mohamed, <i>et al.</i> (5589)
Remediation Performance via the Passivation of a Porous Biomorph Genetic Composite of α -Fe ₂ O ₃ /Fe ₃ O ₄ /C Using a Bamboo Template on As(V) Contaminated Soils	ZHAO Ning-ning, HE Hao, FENG Guo-jie, <i>et al.</i> (5600)
Biodegradation of Expanded Polystyrene Foams in <i>Zophobas morio</i> : Effects of Gut Microbiota	YANG Li, LIU Ying, GAO Jie, <i>et al.</i> (5609)
Isolation, Identification, and Degrading Characteristics of an Oil Resistant Formaldehyde-Degrading Bacterium	HAN Xi, WANG Rong-rong, SHI Chun-zhen (5617)
Characteristics of Phyllosphere and Rhizosphere Bacterial Communities in <i>Bothriochloa ischaemum</i> in Copper Tailings	JIA Tong, YAO Yu-shan, WANG Rui-hong (5628)
Effects of Selected Biochars Application on the Microbial Community Structures and Diversities in the Rhizosphere of Water Spinach (<i>Ipomoea aquatica</i> Forssk.) Irrigated with Reclaimed Water	CUI Bing-jian, CUI Er-ping, HU Chao, <i>et al.</i> (5636)
Effects of Modified Biowaste-based Hydrochar on Rice Yield and Nitrogen Uptake	HOU Peng-fu, XUE Li-hong, FENG Yan-fang, <i>et al.</i> (5648)
Spatial Distribution Characteristics and Source Apportionment of Soil PAHs in Shizuishan City Based on GIS and PMF Model	XIA Zi-shu, WANG Yu-yu, ZHONG Yan-xia, <i>et al.</i> (5656)
Effects of Nitrogen Fertilizer and Straw Returning Methods on N ₂ O Emissions in Wheat-Maize Rotational Soils	XU Hong-wei, LI Na, FENG Yong-zhong, <i>et al.</i> (5668)