

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV

HUANJING KEXUE

基于碳减排目标与排放标准约束情景的火电大气污染物减排潜力

李辉, 孙雪丽, 庞博, 朱法华, 王圣, 晏培



■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2021年12月

第42卷 第12期

Vol.42 No.12

目次(卷终)

基于碳减排目标与排放标准约束情景的火电大气污染物减排潜力 李辉, 孙雪丽, 庞博, 朱法华, 王圣, 晏培 (5563)

汽修行业挥发性有机物排放与控制现状及对策 王海林, 杨涛, 聂磊, 方莉, 张中申, 郝郑平 (5574)

西宁市生物质燃烧源大气污染物排放清单 高玉宗, 姬亚芹, 林孜, 林宇, 杨益 (5585)

新冠疫情期间四川盆地空气质量及影响因素分析 陈军辉, 冯小球, 李媛, 王书肖 (5594)

基于 iLME + Geoi-RF 模型的四川省 PM_{2.5} 浓度估算 吴宇宏, 杜宁, 王莉, 蔡宏, 周彬, 吴磊, 敖迪 (5602)

《大气污染防治行动计划》后期成都大气 PM_{2.5} 中水溶性无机离子特征 李佳琪, 张军科, 董贵明, 邓嘉琳, 刘子锐, 王跃思 (5616)

洛阳市大气细颗粒物化学组分特征及溯源分析 孙佳侯, 董喆, 李利萍, 刘洋, 陈红阳, 张瑞芹 (5624)

北京市黑碳气溶胶浓度特征及其主要影响因素 曹阳, 安欣欣, 刘保献, 景宽, 王琴, 罗霄旭 (5633)

天津市郊夏季 VOCs 化学特征及其时间精细化的来源解析 王艺璇, 刘保双, 吴建会, 张裕芬, 冯银厂 (5644)

沈阳市挥发性有机物污染特征及反应活性 杜寒冰, 王男, 任万辉, 苏枞枞, 胡建林, 于兴娜 (5656)

典型化工集中区环境空气 SVOCs 污染特征及来源解析 葛祥, 吴健, 高松, 冯加良, 陈俊伟, 张舒惟, 焦正 (5663)

南京毒性挥发性有机化合物夏冬季源解析及健康风险评估 张子金, 林煜棋, 张煜烟, 曹梦瑶, 章炎麟 (5673)

基于排放清单和实地测试的工业 VOCs 排放特征:以郑州市高新区为例 任何, 卢轩, 刘洋, 尹沙沙, 胡鹤霄 (5687)

我国水性建筑涂料 VOCs 排放特征及其环境影响 高美平, 王海林, 刘文文, 聂磊, 李国昊, 安小拴 (5698)

VOCs 源强不确定性对臭氧生成及污染防治影响的模拟分析 王峰, 汪健伟, 杨宁, 翟菁, 侯灿 (5713)

山东省 O₃ 时空分布及影响因素分析 张森, 丁椿, 李彦, 王桂霞, 林晶晶, 孟赫, 许杨 (5723)

2020 年成都市典型臭氧污染过程特征及敏感性 钱骏, 徐晨曦, 陈军辉, 姜涛, 韩丽, 王成辉, 李英杰, 王波, 刘政 (5736)

基于高分辨率在线测量的轻型汽油车含氧挥发性有机物排放模型构建 郝钰琦, 袁自冰, 王梦雷, 沙青娥, 杜新悦, 刘元向, 刘学辉, 段乐君, 袁斌, 郑君瑜, 邵敏, 闫宇 (5747)

三重属性的承载力约束下中国水资源利用效率动态演进特征分析 张凯, 吴凤平, 成长春 (5757)

长江流域总氮排放量预测 丁肇慰, 郑华 (5768)

1980~2015 年长江流域净人为氮输入与河流氮输出动态特征 姚梦雅, 胡敏娟, 陈丁江 (5777)

黄河水环境特征与氮磷负荷时空分布 韩语, 潘保柱, 陈越, 刘亚平, 侯易明 (5786)

基于氮氧同位素解析不同降雨条件下硝酸盐污染源 邢子康, 余钟波, 衣鹏, 钱睿智, 王嘉毅 (5796)

水源水库真核微生物种群结构季相演替特征 张海涵, 黄鑫, 黄廷林, 刘凯文, 马曼丽, 刘祥, 苗雨甜, 宗容容 (5804)

达里湖表层水体浮游细菌群落结构的夏-冬季节差异 李文宝, 郭鑫, 张博亮, 杜蕾, 田雅楠 (5814)

尾水排放对受纳水体底栖生物膜细菌群落和水溶性有机质的影响机制 王钰涛, 范晨阳, 朱金鑫, 李轶, 王龙飞 (5826)

武汉典型饮用水水源中典型 POPs 污染特征与健康风险评估 张坤锋, 付青, 涂响, 昌盛, 樊月婷, 孙兴滨, 王山军 (5836)

上海沙田湖养殖区及周边水体中氟喹诺酮类抗性基因的分布特征及其与环境因子关系 徐慕, 李世豪, 马巾, 王丽卿, 张玮 (5848)

曝气人工湿地脱除低污染水中氮的影响因素 李琳琳, 李荣涛, 孔维静, 杨苹果, 杜志超, 毕斌, 卢少勇 (5857)

水平潜流人工湿地对畜禽养殖废水中特征污染物的去除 赵伟, 范增增, 杨新萍 (5865)

木屑生物炭对填料土的氮磷吸附及雨水滞留改良影响 孟依柯, 王媛, 汪传跃, 王报 (5876)

黑臭河道中聚乙烯醇/海藻酸钠固定微米沸石粉去除氨氮 魏超, 陈涛, 江桥, 王姝, 邱伟建, 成小英 (5884)

玉米秸秆生物炭对灰钙土吸附金霉素的影响 南志江, 蒋煜峰, 毛欢欢, 梁新茹, 邓雪儒 (5896)

饮用水砂滤池中微生物对微量污染物的降解潜力与途径 周洁, 王东麟, 林慧, 柏耀辉 (5905)

污水分析方法监测城市毒品滥用长期趋势 曹禹, 董小棠, 邵雪婷, 刘琳, 王德高 (5912)

阿奇霉素和铜对活性污泥古菌群落和 ARGs 的胁迫影响及后效应 高玉玺, 李星, 赵君如, 张忠兴, 樊晓燕 (5921)

典型冶炼行业场地土壤重金属空间分布特征及来源解析 李强, 曹莹, 何连生, 王耀锋, 龚成, 何书涵 (5930)

我国焦化场地多环芳烃和重金属分布情况及生态风险评价 王耀锋, 何连生, 姜登岭, 曹莹, 李强, 官健 (5938)

浙江省香榧主产区土壤重金属空间异质性及其生态风险 王敏, 董佳琦, 白龙龙, 张勇, 蒋仲龙, 姜霓雯, 吴家森, 张璐瑶, 方嘉, 傅伟军 (5949)

北方农田镉污染土壤玉米生产阈值及产区划分初探 管伟豆, 郭堤, 王萍, 张增强, 李荣华 (5958)

典型铅锌矿区耕地土壤团聚体重金属含量与农作物含量相关性及其风险评价 强瑛, 李英菊, 罗谦, 陈美凤, 李海燕, 黄先飞, 秦樊鑫 (5967)

雄安新区企业周边农田土壤-作物系统重金属污染风险及累积效应 周亚龙, 王乔林, 王成文, 刘飞, 宋云涛, 郭志娟, 杨志斌 (5977)

铜仁土壤-水稻重金属累积效应与安全种植区划 朱亮亮, 吴勇, 周浪, 唐乐斌, 宋波 (5988)

干湿交替对铈锰改性生物炭固定红壤 As 的影响 黄晓雅, 李莲芳, 朱昌雄, 黄金丽, 吴翠霞, 叶婧 (5997)

铵态氮肥和腐殖酸协同促进孔雀草对土壤中 Cd 的去除 王冰清, 阳琴, 李虹颖, 熊启中, 徐刚, 孙瑞波, 田达, 李军利, 郜红建, 叶新新 (6006)

稻田灌溉河流 CH₄ 和 N₂O 排放特征及影响因素 吴双, 杨蔚桐, 盛扬悦, 方贤滔, 张天睿, 胡靖, 刘树伟, 邹建文 (6014)

节水灌溉和控释肥施用耦合措施对单季稻田 CH₄ 和 N₂O 排放的影响 王永明, 徐永记, 纪洋, 冯彦房 (6025)

有机无机配施下西北旱区麦田土壤 N₂O 的排放特征及微生物特性 王楷, 史雷, 马龙, 王书停, 张然, 郑伟, 李紫燕, 翟丙年 (6038)

不同秸秆还田方式对旱地红壤细菌群落、有机碳矿化及玉米产量的影响 孔培君, 郑洁, 栾璐, 陈紫云, 薛敬荣, 孙波, 蒋瑞霖 (6047)

氮磷添加对盐渍化草地土壤微生物特征的影响 杨建强, 刁华杰, 胡姝姝, 陈晓鹏, 王常慧 (6058)

化肥和有机肥配施生物炭对紫色土壤养分及磷赋存形态的影响 向书江, 余砾, 熊子怡, 罗东海, 王莹燕, 邓正昕, 王子芳, 高明 (6067)

浒苔生物炭与木醋液复配改良碱化土壤效果及提高油菜产量 王正, 孙兆军, Sameh El-Sawy, 王珍, 何俊, 韩磊, 邹本涛 (6078)

《环境科学》第42卷(2021年)总目录 (6091)

《环境科学》征订启事(5593) 《环境科学》征稿简则(5623) 信息(5643, 5835, 5883)

VOCs 源强不确定性对臭氧生成及污染防治影响的模拟分析

王峰¹, 汪健伟¹, 杨宁², 翟菁³, 侯灿³

(1. 安徽环境科技研究院股份有限公司, 合肥 230031; 2. 宣州区生态环境分局综合执法大队, 宣城 242000; 3. 安徽省气象科学研究所, 合肥 230031)

摘要: 本文基于三维区域空气质量模式 WRF-Chem, 通过修改模式化学模块, 量化输出过程量和诊断量, 提供了一种定量分析挥发性有机化合物(VOCs)源强不确定性对 O₃ 生成影响的方法. 为无法定量计算 VOCs 源强导致的臭氧生成率 $P(O_3)$ 偏差, 以及由此对 O₃ 体积分数分布和污染控制相关联的 VOCs 敏感区和 NO_x 敏感区分布的误判提供了方法参考. 采用标准统计参数对 WRF-Chem 模式的气象场与污染场模拟性能进行了评估, 相关指标均优于前人结果. 以 INTEX-B (intercontinental chemical transport experiment-phase B) 人为源、FINNV1 (fire inventory from NCAR version 1) 生物质燃烧源和 MEGAN (model of emissions of gases and aerosols from nature) 生物源作为基准源, 并以卫星观测数据作为约束, 对排放源进行改进, 评估了源改进前后臭氧生成率 $P(O_3)$ 、O₃ 体积分数和 O₃ 控制敏感区指标 (Ln/Q) 的变化情况. 仅人为 VOCs (AVOCs) 源增加 68% 后, $P(O_3)$ 模拟峰值增加比例达 13%~82%, 以北京观测站点为例, $P(O_3)$ 模拟月均峰值增加 42% ($22.5 \times 10^{-9} \text{ h}^{-1}$). 对 $P(O_3)$ 形成贡献比例最大的主要化学反应是 HO₂ + NO (占比约 68%), AVOCs 源增加 68% 后, 该反应贡献比例下降至 65%. 在改进源下, $P(O_3)$ 普遍增加达到 $2 \times 10^{-9} \sim 4 \times 10^{-9} \text{ h}^{-1}$, O₃ 各季节增幅较大的区域均主要集中在京津冀、长三角和珠三角中心城市及周边区域, 与我国大型城市区基本都是 VOCs 敏感区的结论一致. 整体而言, VOCs 源强改进后, NO_x 敏感区 O₃ 体积分数增加幅度不大, 不超过 4×10^{-9} , 而部分 VOCs 敏感区增幅超过 20×10^{-9} . VOCs 源强的不确定性会影响 O₃ 形成过程中 NO_x 和 VOCs 敏感区的判断, 特别是 VOCs 源强明显低估会夸大 VOCs 敏感区的范围, 从而降低 O₃ 调控对策的有效性.

关键词: 挥发性有机化合物(VOCs); 源强不确定性; 臭氧(O₃); WRF-Chem 模式; 调控对策

中图分类号: X51 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2021)12-5713-10 DOI: 10.13227/j.hjkk.202103188

WRF-Chem Simulations of the Impacts of Uncertainty in VOCs Emissions on Ozone Formation and Control Strategies

WANG Feng¹, WANG Jian-wei¹, YANG Ning², ZHAI Jing³, HOU Can³

(1. Anhui Institute of Environmental Science and Technology Co., Ltd., Hefei 230031, China; 2. Coordinated Law Enforcement Branch of Xuanchou Ecology and Environment District Bureau, Xuanchen 242000, China; 3. Anhui Institute of Meteorological Science, Hefei 230031, China)

Abstract: This study utilized the WRF-Chem model, with modified chemical modules that were added as diagnostic variables. This facilitated the evaluation of the impacts of uncertainty in VOC emissions on ozone formation and control strategies that few studies have investigated in China. The performance metrics of WRF-Chem meteorology simulations and O₃ and NO₂ simulations were evaluated. The results indicated that some metrics were far superior to those from previous studies. We used the bottom-up VOC emission inventories of intercontinental chemical transport experiment-phase B (INTEX-B) for anthropogenic sources, the fire inventory from NCAR version 1 (FINNV1) for biomass burning sources, and the model of emissions of gases and aerosols from nature (MEGAN) for biogenic sources. We evaluated the changes in the ozone production rate $P(O_3)$, ozone concentration, and the indicator of Ln/Q while the emission inventories were improved by the satellite observation data as a constraint. It produced 13%-82% increases in the $P(O_3)$ peaks in Beijing and resulted in a 42% ($22.5 \times 10^{-9} \text{ h}^{-1}$) enhancement in the $P(O_3)$ monthly average, with 68% increases in AVOC emissions. The predominant contribution to $P(O_3)$ was the reaction of HO₂ + NO, which accounted for 68% in Beijing. A 68% increase in AVOC emissions reduced the reaction to 65%. Under the improvement source, $P(O_3)$ generally increased to $2 \times 10^{-9} \sim 4 \times 10^{-9} \text{ h}^{-1}$. The areas with large seasonal increases in O₃ were mainly concentrated in the Beijing-Tianjin-Hebei, Yangtze River Delta, and Pearl River Delta central cities and surrounding areas and large cities in China. The conclusion that these areas are basically VOC-sensitive areas is consistent with those of previous studies. Overall, after the source of VOCs is improved, the increase in O₃ concentration in NO_x-sensitive areas is minor, not exceeding 4×10^{-9} , whereas the increase in some VOC-sensitive areas exceeds 20×10^{-9} . Changes in the source strength of VOCs will affect the determination of NO_x- and VOC-sensitive areas during the formation of O₃. In particular, a significant underestimation of the source strength of VOCs will exaggerate the range of VOC-sensitive areas, thereby reducing the effectiveness of O₃ control strategies.

Key words: volatile organic compounds(VOCs); uncertainty in VOCs emissions; ozone(O₃); WRF-Chem model; control strategies

伴随 2013 年“大气十条”的颁布实施, 全国各地直接排放细颗粒物 (PM_{2.5}) 显著降低, 2013 ~ 2019 年, 全国 74 个重点城市年均 PM_{2.5} 下降了 47.2%^[1], PM_{2.5} 得到有效控制^[2], 但另一方面光化学

以及由此引发的复合型污染使得污染治理变得更为复杂^[3,4]. “十三五”以来全国 337 个地级及以上城

收稿日期: 2021-03-22; 修订日期: 2021-05-27

基金项目: 国家自然科学基金项目(41505116)

作者简介: 王峰(1980~), 男, 博士, 高级工程师, 主要研究方向为大气环境与大气污染, E-mail: ahqx@163.com

市以 O_3 为首要污染物的超标天数占总超标天数的比例达 41.8%^[5], 很多地区 O_3 逐步取代 $PM_{2.5}$ 成为首要污染物^[6~8], 2019 年全国 119 个城市(占比 35.3%)首要污染物为臭氧的天数占比超过 50%, O_3 污染防治刻不容缓. 挥发性有机化合物(VOCs)是 O_3 生成的重要前体物和参与物, 在 O_3 污染形成及防控中有着关键性作用^[9~11], 由于 VOCs 来源广, 种类多, 化学反应复杂, 一直以来 VOCs 监管相对而言较为薄弱, 使得 VOCs 源强存在着较大的不确定性, 导致 VOCs 对 O_3 生成影响的研究存在较多的困难和瓶颈, 而定量分析, 特别是利用三维空气质量模式量化计算 VOCs 源强不确定性对 O_3 生成和控制影响的研究在国内鲜见报道.

本研究利用 WRF-Chem 模式, 并对模式化学反应模块(主要是 O_3 生成过程化学反应、各生成率、损耗率等)和相关诊断量(如 Ln/Q)等进行了修改和输出, 以目前在我国大气污染研究中广泛使用的 INTEX-B 人为排放源、FINNV1 生物质燃烧源和 MEGAN 生物源为例, 系统分析了 VOCs 源强不确定对 O_3 生成和控制的影响, 以期为国内 O_3 污染防治研究提供参考借鉴.

1 材料与方法

1.1 观测数据

本文气象场观测数据来自中国气象局气候中心, 选取京津冀、长三角和珠三角共 75 个气象观测站的时均观测值用于气象场模拟对比(每个区域 25 个站点). 观测要素主要选择对污染物形成和输送有较大影响的 4 个气象因子: 地面 2 m 处温度(T_2)、地面 2 m 处相对湿度(RH)、地面 10 m 处风速(WS)和地面 10 m 处风向(WD). 由于浓度场观测数据为 2007 年 8 月, 气象场模拟比较的时段也相应选择 2007 年 8 月.

污染物观测数据来自于中国科学院 2007 年夏季开展的“北京地区大气环境监测行动计划”. 选用的观测站点包括保定(115.51°E, 38.87°N)、北京 325 m 气象铁塔(116.41°E, 40.00°N)、沧州(116.80°E, 38.28°N)、石家庄(114.53°E, 38.03°N)、唐山(118.15°E, 39.62°N)和禹城(116.37°E, 36.67°N), 选择 O_3 和 NO_2 进行模拟与观测值对比, 模拟和观测时段为 2007 年 8 月.

除此之外, 本文还参考引用了臭氧生成率 [$P(O_3)$] 等观测资料或前人研究结果. 主要包括: 2006 年 6 月 Kanaya^[12] 在泰山山顶(36.26°N, 117.11°E, 1534 m)利用 OBM(观测为基础的模式, 利用地面观测的 O_3 、 H_2O 、 CO 、 NO 、 NO_2 、 $HCHO$

和 CH_3CHO 等体积分数计算臭氧生成率等)模式求算的 $P(O_3)$; Lu^[13] 在 CAREBeijing 项目中于 2006 年 8 月 14 日至 9 月 9 日在北京大学(39.99°N, 116.30°E)和榆垓(39.51°N, 116.30°E)的观测结果, 主要参考其 2006 年 8 月 $P(O_3)$ 小时观测或计算结果.

1.2 排放源数据

本研究选取 2007 年为参考年份(该年各主要观测资料均较为完备, 且排放源未因政策因素发生较大波动变化). 使用的人为源采用 2006/2007 年 INTEX-B 排放源清单. 该源清单空间分辨率为 $0.5^\circ \times 0.5^\circ$, 包括 SO_2 、 NO_x 、 CO 、NMVOC、 PM_{10} 、 $PM_{2.5}$ 、BC 和 OC 共 8 种污染物, 其中 VOCs 物种按照 SAPRC-99 化学机制进行分类, 共 30 种, 8 类物种按照电厂、工业、交通和居民生活分为 4 个大类; VOCs 物种按照电厂、工业、交通、居民化石燃料燃烧、居民生物燃料燃烧和居民非燃料燃烧分为 6 大类^[14]. 本文参考 Li 等^[15] 提供的方法对源排放清单处理为按月更新, 再制作成 WRF-Chem 模式所要求格式的人为源数据.

INTEX-B 源清单中未包括生物质燃烧源, 本研究使用的生物质燃烧源采用 FINNV1 源^[16]. 该数据库是由 NCAR 大气化学分部开发的逐日变化, 1 km 分辨率的全球火源排放数据, 火源数据的收集主要针对开放式燃烧源, 包括野火(森林或草地)、农业燃烧, 其它有组织野外燃烧等, 但不包括生物燃料燃烧(该类并入人为源中计算). FINNV1 源具有更好的时空分辨率, 本文选用基于 FINNV1 模型 2007 年排放源作为模式生物质燃烧源.

本研究使用的生物源是由 NCAR 地球系统实验室(NCAR-ESL)大气化学分部(ACD)提供的 MEGAN 模块计算所得^[17].

1.3 WRF-Chem 模式

本研究使用 WRF-Chem 模式作为污染分析工具^[18], 模式气相化学机制采用的是在 VOCs- NO_x - O_3 关系研究中广泛使用的 CBM-Z 机制^[19], 对该机制中相关化学变量进行了修改. 光解率求解方案采用的是 Fast-J 方案^[20], 主要参数化方案见表 1.

表 1 WRF-Chem 模式求解物理和化学过程/参数化方案选择

过程类型	参数化/求解方案选择	过程类型	参数化/求解方案选择
微物理过程	Purdue Lin	边界层	YSU
积云对流	New Grell scheme (G3)	光解过程	Fast-J
长波辐射	RRTM	化学过程	CBM-Z
短波辐射	Goddard	气溶胶过程	MOZAIC
陆面过程	Noah		

模式采用两层嵌套,第一层区域覆盖东亚大部分地区,水平分辨率 81 km,格点数为 83 × 65,中心经纬度位于 35°N、110°E;第二层区域覆盖京津冀(北京、天津、河北)、长三角(上海、浙江、江苏、安徽)和珠三角(广东、香港)的大部分区域,水平分辨率为 27 km,格点数为 64 × 97,中心经纬度位于 31.5°N、115°E。模式垂直分层共 28 层,顶层气压设置为 50 kPa,模式第一层距离地面约 30 m。模拟时段为 2006 年和 2007 年。模式气象场初始和边界条件是从 NCEP 获取的逐 6 h 更新文件,化学场初始和边界条件是由全球模式 MOZART-4 提供^[21],每 6 h 更新一次。模式按月模拟,初始化时间为一周。

2 结果与讨论

2.1 WRF-Chem 模式模拟性能评估

本研究对模式模拟的主要气象要素与主要污染物与观测数据进行了对比分析。采用的主要统计参数包括:平均偏差(mean bias, MB)、平均误差(mean error, ME)、均方根误差(root mean square error, RMSE)、标准平均偏差(normalized mean bias, NMB)、标准平均误差(normalized mean error, NME)、一致性指数(index of agreement, IOA)和相关系数(correlation coefficient, CC)。各指标计算公式与定义见表 2^[22]。气象与污染物观测数据时段以 2007 年 8 月为例。

表 2 模拟性能评价指标计算公式及取值范围¹⁾

Table 2 Definitions of model performance metrics

中文含义	缩写	计算公式	取值范围
平均偏差	MB	$\frac{1}{N} \sum (M_i - O_i) = \bar{M} - \bar{O}$	0 ~ ∞
平均误差	ME	$\frac{1}{N} \sum M_i - O_i $	0 ~ ∞
均方根误差	RMSE	$\sqrt{\sum (M_i - O_i)^2 / N}$	0 ~ ∞
标准平均偏差	NMB	$100\% \times \sum (M_i - O_i) / \sum O_i$	-100% ~ ∞%
标准平均误差	NME	$100\% \times \sum M_i - O_i / \sum O_i$	0 ~ ∞%
一致性指数	IOA	$1 - \frac{\sum (M_i - \bar{O})^2}{\sum (M_i - \bar{O} + O_i - \bar{O})^2}$	0 ~ 1
相关系数	CC	$\frac{\sum [(M_i - \bar{M}) \times (O_i - \bar{O})]}{\sqrt{\sum (M_i - \bar{M})^2 \sum (O_i - \bar{O})^2}}$	-1 ~ 1

1) M_i 表示模式在 i 点位或时间的模拟值, O_i 表示 i 点位或时间的观测值, N 表示模拟或观测值的数量, \bar{M} 表示模式平均值, \bar{O} 表示观测平均值

主要气象要素模拟主要性能指标值见表 3。本研究中温度、相对湿度、风速和风向的均方根误差(RMSE)分别为 2.5℃、16.3%、2.5 m·s⁻¹ 和 99.3°,一致性指数(IOA)分别为 0.90、0.78、0.56 和 0.65。以上结果说明,模式对温度和相对湿度的模拟效果要好于对风向和风速的模拟。与文献[23, 24]利用 MM5 模式模拟的结果及文献[25]利用 WRF 模式模拟的结果相比,本研究模拟结果部分指标优于已有研究的模拟性能。

本研究利用 WRF-Chem 模式模拟的 O₃ 结果与

京津冀 6 个观测站点实测结果均有较好的一致性,对比结果见图 1(a),其中相关系数 CC 为 0.84,标准平均偏差 NMB 为 -4.0%,标准平均误差 NME 为 35.0%,一致性指数 IOA 为 0.91,相关结果见表 4。本研究结果性能指标优于文献[23, 24]的研究结果。模式 NO₂ 模拟与观测对比情况见图 1(b),模式较好地反映了 NO₂ 总体变化趋势,但模拟的峰值多数情况下高估,特别是保定和禹城。以上高估可能与排放源中 VOCs 源强的低估有关^[26]。本结果相关系数 CC 为 0.43,标准平均偏差 NMB 为 -33.0%,标

表 3 2007 年 8 月 WRF-Chem 气象场模拟性能指标¹⁾

Table 3 Performance metrics of WRF-Chem meteorology simulations in August, 2007

温度/℃			相对湿度/%			风速/m·s ⁻¹			风向/(°)			文献
RMSE	MB	IOA	RMSE	MB	IOA	RMSE	MB	IOA	RMSE	MB	IOA	
2.5	0.2	0.90	16.3	-5.5	0.78	2.5	1.6	0.56	99.3	2.6	0.65	本研究
—	-0.9	0.90	—	-1.3	0.78	2.1	0.9	0.65	—	2.5	—	[23]
—	0.5	0.88	—	-1.1	0.86	1.5	0.6	0.62	—	2.6	—	[24]
3.1	0.8	—	17.4	-5.7	—	2.2	1.1	—	60.9	8.2	—	[25]

1) “—”表示文献未提供该数据

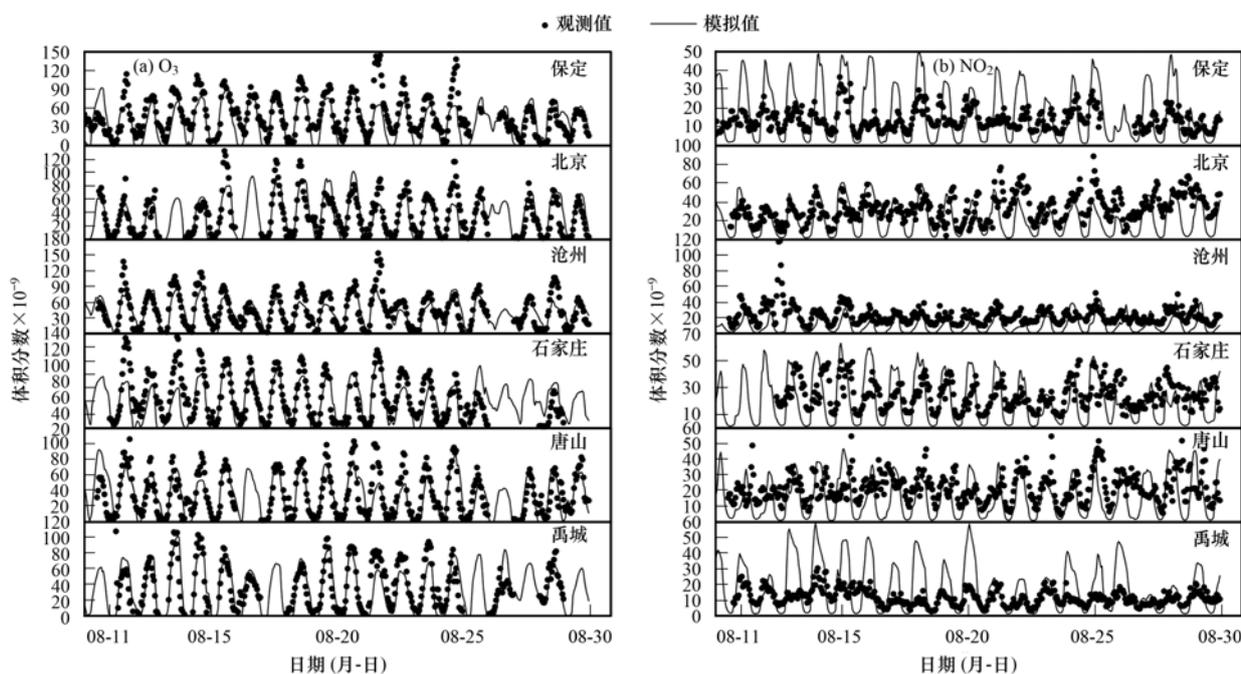


图 1 2007 年 8 月近地面 O_3 和 NO_2 在京津冀 6 个观测站模拟值与观测值对比序列

Fig. 1 Time series of simulated and observed concentrations of O_3 and NO_2 at six stations of the BTH in August, 2007

表 4 2007 年 8 月 WRF-Chem 模拟的 O_3 和 NO_2 模拟性能指标

Table 4 Performance metrics of WRF-Chem simulations of O_3 and NO_2 in August, 2007

项目	MB $\times 10^{-9}$	ME $\times 10^{-9}$	RMSE $\times 10^{-9}$	NMB/%	NME/%	IOA	CC	文献
O_3	-1.4	12.0	16.6	-4.0	35.0	0.91	0.84	本研究 ¹⁾
	— ²⁾	—	—	-5.4	37.1	—	0.73	[23]
	—	—	—	30.2	55.8	0.91	0.78	[24] ³⁾
NO_2	-10.9	16.5	20.5	-33.0	50.0	0.61	0.43	本研究 ¹⁾
	—	—	—	-26.8	52.1	—	0.52	[23]
	—	—	—	13.8	48.4	0.91	0.53	[24] ³⁾

1) 基于京津冀 6 个观测站计算结果; 2) “—”表示文献未提供该数据; 3) 使用 CMAQ 模式计算结果

准平均误差 NME 为 50.0%, 一致性指数 IOA 为 0.61, 优于文献[23, 24]利用 CMAQ 模式模拟结果。

2.2 VOCs 源不确定性对 $P(O_3)$ 的影响

臭氧生成率 $P(O_3)$ 是考察臭氧光化学反应过

$$P(O_3) = [NO](K_{HO_2+NO}[HO_2\cdot] + K_{CH_3O_2+NO}[CH_3O_2] + K_{RO_2+NO}[RO_2\cdot] + K_{othersR+NO}[othersR\cdot])$$

$$L(O_3) = K_{O_1D+H_2O}[O^1D][H_2O] + [O_3](K_{OH+O_3}[\cdot OH] + K_{HO_2+O_3}[HO_2\cdot] + K_{VOCs+O_3}[VOCs])$$

式中, othersR 表示其它自由基, 例如 C_2O_3 (过氧酰基自由基) 等。

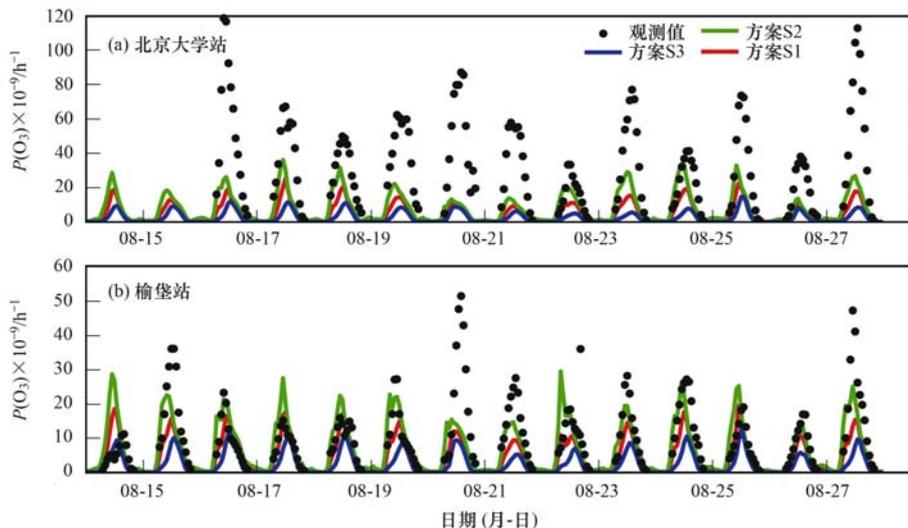
为了便于分析, 本研究仅变动人为 VOCs 排放源 (AVOCs), 考察 VOCs 排放源对 O_3 模拟的影响。文献[14]指出 INTEX-B 中 AVOCs 源排放量的不确定性变化范围是 $\pm 68\%$, 本文 2.1 节中对模式模拟性能评估时, 出现部分模拟偏差 (特别是 NO_2 在个别站点的明显高估, 以及 O_3 峰值的低估), 笔者认为 VOCs 排放源低估导致的, 本研究设计 3 种敏感性试验方案, 方案 S1: 基准 INTEX-B 人为源 (AVOCs 源不变); 方案 S2: AVOCs 源排放量增加 68%; 方案 S3: AVOCs 源排放量减少 68%。

程的重要考量, 能够反映臭氧形成过程中各反应的相对重要性。参考文献[12, 27]对 $P(O_3)$ 的定义, 臭氧生成率 $P(O_3)$ 及其损耗率 $L(O_3)$ 计算公式可表述为:

本研究中 WRF-Chem 模式模拟的 $P(O_3)$ 与在北京大学站和榆垓站利用 OBM 模式计算结果^[13]对比见图 2。WRF-Chem 模式很好反映了 $P(O_3)$ 的日变化, 但普遍明显低估了 $P(O_3)$ 峰值, 特别是代表城区的北京大学站 (方案 S1)。当 AVOCs 源排放量增加 68% (方案 S2) 后, $P(O_3)$ 模拟峰值显著改善, 增升比例达 13% ~ 82%, 特别是榆垓站, WRF-Chem 模式模拟的 $P(O_3)$ 峰值与利用 OBM 模式模拟的 $P(O_3)$ 峰值^[13]有较好的一致性, 但北京大学站的 $P(O_3)$ 模拟峰值仍明显偏低。 $P(O_3)$ 峰值的增升主要是 AVOCs 源排放量增加后, 引起了 HO_2 和 RO_2 自由基体积分数的显著增大。同样

道理,当 AVOCs 源排放量减少 68% (方案 S3)后,引起 HO₂ 和 RO₂ 体积分数显著降低,导致 P(O₃) 峰值降低了 13%~69% (图 2). 这个结果表明, AVOCs 源排放量的显著改变导致 P(O₃) 峰值的明

显变化,对 P(O₃) 值影响较大, VOCs 源强不确定性直接关系到 O₃ 的生成过程. 同时也说明, INTEX-B 中 AVOCs 源排放量明显低估,并且城区比郊区低估程度更大.

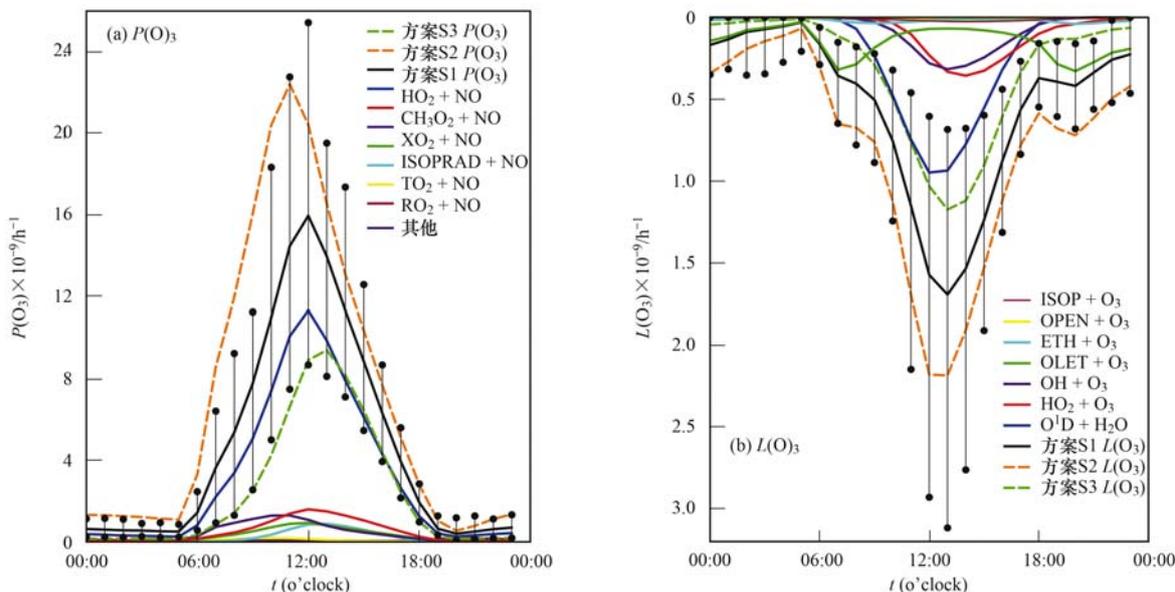


方案 S1 ~ S3 使用 WRF-Chem 模式 (本研究), 观测值使用 OBM 模式 (文献 [13])
 图 2 2006 年 8 月 WRF-Chem 模式与 OBM 模式模拟北京大学和榆堡站 P(O₃) 小时均值结果对比

Fig. 2 Comparison of hourly simulations of P(O₃) based on the WRF-Chem model and OBM model at the PKU and YUFA stations in August, 2006

为了考察 VOCs 源排放量的增减对 O₃ 生成和损耗反应的影响,本研究以北京为例 (模拟时段为 2007 年 8 月), 计算了主要化学反应对 P(O₃) 和 L(O₃) 的贡献以及源排放量的变化对 P(O₃) 和 L(O₃) 月均日变化的影响, 结果如图 3 所示.

从图 3 可以看出,在方案 S1 下, WRF-Chem 模式模拟的 P(O₃) 和 L(O₃) 月均峰值分别为 15.9 × 10⁻⁹ h⁻¹ 和 1.7 × 10⁻⁹ h⁻¹, 该结果与 2006 年 6 月泰山的结果接近 [其中 P(O₃) 峰值为 13.6 × 10⁻⁹ h⁻¹, L(O₃) 峰值为 2.0 × 10⁻⁹ h⁻¹] [12], 但比利用 OBM 模式模拟北京的 P(O₃) [峰值在北京大学站为 69.5 ×



垂直线条表示偏差, 黑色圆点表示偏差的最大值和最小值

图 3 2007 年 8 月方案 S1、S2 和 S3 下, WRF-Chem 模式模拟北京 P(O₃) 和 L(O₃) 月均日变化

Fig. 3 Monthly average diurnal profiles of P(O₃) and L(O₃) for cases S1, S2, and S3 calculated with the WRF-Chem in Beijing in August, 2007

10^{-9} h^{-1} , 在榆垓站为 $25.8 \times 10^{-9} \text{ h}^{-1}$] 明显偏低^[13]; 当 AVOCs 源排放量增加 68% (方案 S2) 后, $P(\text{O}_3)$ 月均峰值增加了 42% ($22.5 \times 10^{-9} \text{ h}^{-1}$), $L(\text{O}_3)$ 月均峰值增升了 35% ($2.3 \times 10^{-9} \text{ h}^{-1}$), 该结果与榆垓站计算结果接近^[13], 但仍然比北京大学站的计算值低很多. 当 AVOCs 源排放量减少 68% (方案 S3) 后, $P(\text{O}_3)$ 和 $L(\text{O}_3)$ 月均小时峰值分别减少了 40% ($9.5 \times 10^{-9} \text{ h}^{-1}$) 和 29% ($1.2 \times 10^{-9} \text{ h}^{-1}$). O_3 形成的主要化学反应是 $\text{HO}_2 + \text{NO}$ [图 3(a)], 该反应对 $P(\text{O}_3)$ 贡献约 68%; O_3 损耗的主要化学反应为 $\text{O}^1\text{D} + \text{H}_2\text{O}$ [图 3(b)], 该反应对 $L(\text{O}_3)$ 贡献约 47%. AVOCs 源排放量的增加 (方案 S2) 会导致 $\text{HO}_2 + \text{NO}$ 反应对 $P(\text{O}_3)$ 的贡献比例减小 (下降为 65%). 同时, AVOCs 源排放量的增加也会导致 $\text{O}^1\text{D} + \text{H}_2\text{O}$ 反应对 $L(\text{O}_3)$ 的贡献比例减小 (减少为 40%). 相反, AVOCs 源排放量的减少则会使 $\text{HO}_2 + \text{NO}$ 反应对 $P(\text{O}_3)$ 的贡献比例增大, $\text{O}^1\text{D} + \text{H}_2\text{O}$ 反应对 $L(\text{O}_3)$ 的贡献比例增升.

2.3 VOCs 源不确定性对 O_3 体积分数分布的影响

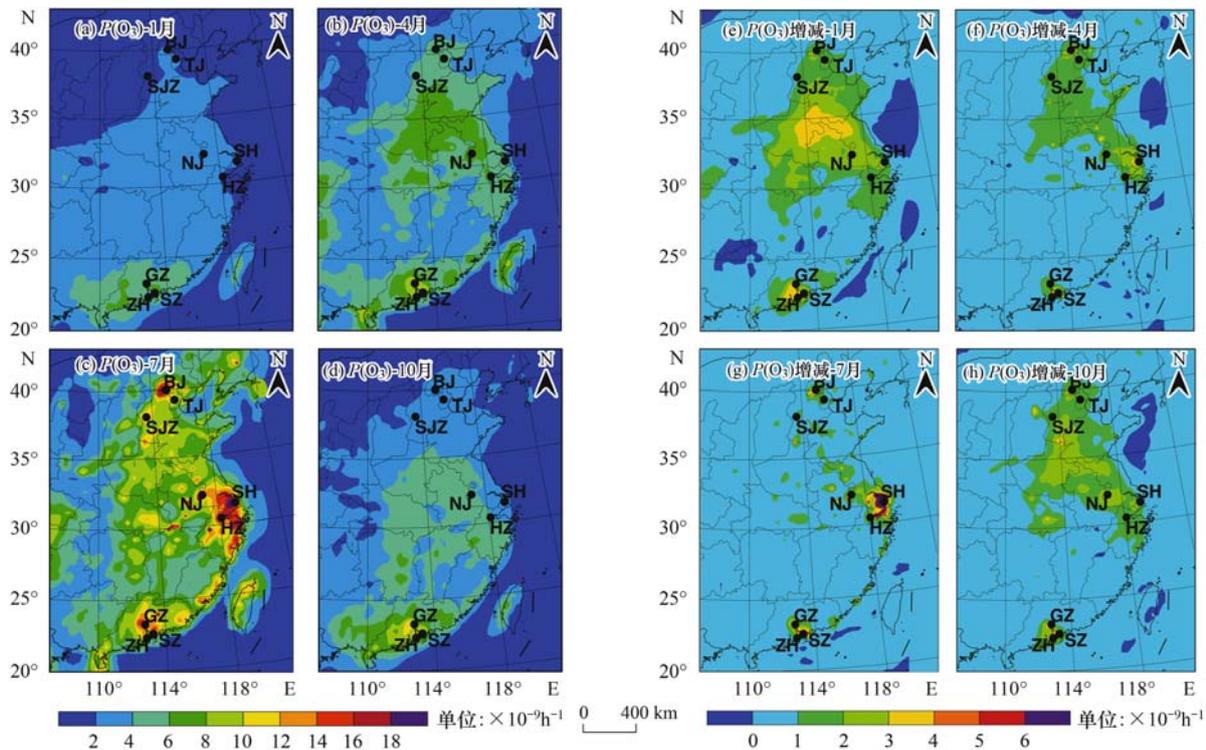
2.3.1 VOCs 源强改变对 $P(\text{O}_3)$ 分布的影响

从前节的分析可知, INTEX-B 排放源对 VOCs 源强有较为明显的低估, 本研究使用卫星观测资料约束地面源的方法对 VOCs 排放源进行了改进^[26].

图 4 是 WRF-Chem 模式模拟 1、4、7 和 10 月我国东部沿海地区白天 (06:00 ~ 18:00) 在基准源条件下 $P(\text{O}_3)$ 空间分布和 VOCs 源改进后 $P(\text{O}_3)$ 增减量分布情况. 可以看出, $P(\text{O}_3)$ 季节变化显著, $P(\text{O}_3)$ 夏季高, 春季次之, 秋冬季节小. 京津冀、长三角和珠三角中心城市夏季出现明显高值区. 冬季我国北方大部分区域处于 VOCs 敏感区, VOCs 源强的增加会促进 $P(\text{O}_3)$ 的增升, 普遍增加达到 $2 \times 10^{-9} \sim 4 \times 10^{-9} \text{ h}^{-1}$, 珠三角地区也有较明显的增强, 中心城市均增升 $4 \times 10^{-9} \text{ h}^{-1}$. 春季 $P(\text{O}_3)$ 的增加主要集中在京津冀、长三角和珠三角中心城市, 增幅达 $2 \times 10^{-9} \sim 4 \times 10^{-9} \text{ h}^{-1}$. 夏季 $P(\text{O}_3)$ 增加范围缩小, 但增幅加大, 其中京津冀、长三角和珠三角中心城市最高增幅超过 $4 \times 10^{-9} \text{ h}^{-1}$, 其余地区增幅小于 $2 \times 10^{-9} \text{ h}^{-1}$. 秋季, VOCs 敏感区扩大, $P(\text{O}_3)$ 增加范围扩大, 但增幅减小, 增幅普遍降至 $4 \times 10^{-9} \text{ h}^{-1}$ 以下, 中心城市增幅较大可能与 VOCs 源增加后中心城区自由基增幅较大有关.

2.3.2 VOCs 源强改变对 O_3 体积分数分布的影响

图 5 为 WRF-Chem 模式模拟的 1、4、7 和 10 月我国东部沿海地区白天 (06:00 ~ 18:00) 基准源条件下 $\varphi(\text{O}_3)$ 空间分布和 VOCs 源强改进后 $\varphi(\text{O}_3)$ 变化情况. 基准源条件下, O_3 呈现冬季小, 夏季高的季



BJ 表示北京, TJ 表示天津, SJZ 表示石家庄, SH 表示上海, NJ 表示南京, HZ 表示杭州, GZ 表示广州, SZ 表示深圳, ZH 表示珠海, 下同
图 4 基准源条件下和 VOCs 源强改进后 WRF-Chem 模式模拟我国东部沿海地区白天 $P(\text{O}_3)$ 空间分布及增减情况

Fig. 4 Monthly mean and increasing daytime surface $P(\text{O}_3)$ simulated by the WRF-Chem model

by using the bottom-up inventories and modified inventories

节变化趋势,冬季,我国东部沿海地区 $\varphi(\text{O}_3)$ 约 $20 \times 10^{-9} \sim 60 \times 10^{-9}$,其中 $20^\circ \sim 25^\circ\text{N}$ 区间为 $\varphi(\text{O}_3)$ 最高值区域 ($40 \times 10^{-9} \sim 60 \times 10^{-9}$); 低值区出现在华北及长三角中心城市一带 ($20 \times 10^{-9} \sim 30 \times 10^{-9}$). 这些城区 NO_x 排放量较高,但冬季光照偏弱,不利于光化学反应发生,过多的 NO 会滴定 O_3 , 导致 O_3 降低. 这与前人的研究结果一致^[29-31]. VOCs 源强改进后, $\varphi(\text{O}_3)$ 在各个季节均有不同幅度的增加,其中,冬季增加幅度和范围较大,春季增加幅度最小. 具体来说,冬季 O_3 在华北及华东地区增幅达 $10 \times 10^{-9} \sim 18 \times 10^{-9}$,在珠三角城市增幅达 10×10^{-9} ,其它地区仅增加 $3 \times 10^{-9} \sim 5 \times 10^{-9}$. 春季, O_3 在京津冀、长三角、珠三角中心城市及其周边地区均增加 $6 \times 10^{-9} \sim 8 \times 10^{-9}$,其它地区增幅不到 4

$\times 10^{-9}$. 夏季,在长三角地区普遍增升 10×10^{-9} 以上,部分城市增幅达 20×10^{-9} 以上,京津冀增加 $6 \times 10^{-9} \sim 11 \times 10^{-9}$,珠三角增幅 $5 \times 10^{-9} \sim 7 \times 10^{-9}$,其它地区仅增加 $2 \times 10^{-9} \sim 4 \times 10^{-9}$. 秋季,华北及华东 VOCs 敏感区扩大, VOCs 源强的增加促使相应区域 O_3 明显增大,华北及华东大部分地区增加了 7×10^{-9} 以上,部分城市增加 11×10^{-9} 以上,珠三角中心城市增加约 12×10^{-9} ,其它区域增加约 3×10^{-9} . 总之,各季节增幅较大的区域均主要集中在京津冀、长三角和珠三角中心城市及周边区域,与我国大型城市区基本都是 VOCs 敏感区的结论一致^[13,32]. 整体而言, VOCs 源强改进后, NO_x 敏感区 $\varphi(\text{O}_3)$ 增加幅度不大,不超过 4×10^{-9} ,而部分 VOCs 敏感区增幅超过 20×10^{-9} .

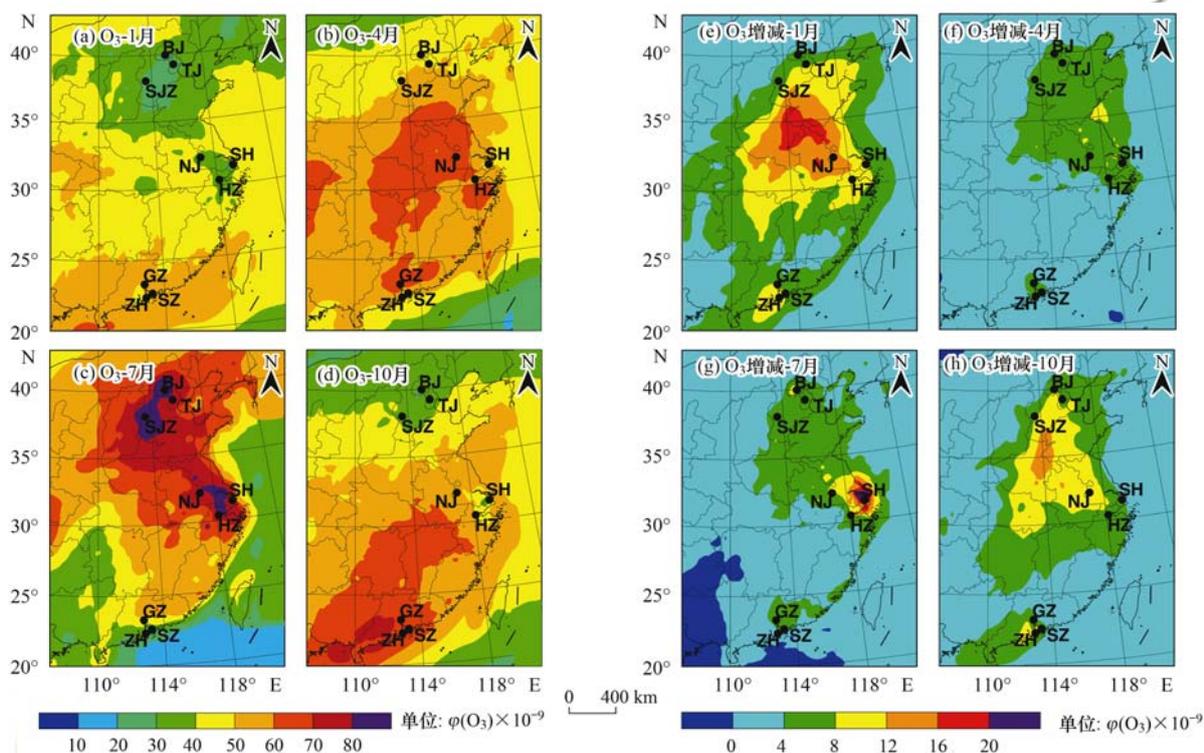


图5 基准源条件下和 VOCs 源强改进后 WRF-Chem 模式模拟我国东部沿海地区白天 $\varphi(\text{O}_3)$ 空间分布及变化情况

Fig. 5 Monthly mean and increasing daytime surface ozone concentration simulated by WRF-Chem using the bottom-up inventories and modified inventories

2.3.3 VOCs 源不确定性对 O_3 防控策略的影响

O_3 、 NO_x 和 VOCs 之间存在复杂的非线性关系, O_3 污染防控策略的制定与准确划定 O_3 生成控制区是 NO_x 敏感区还是 VOCs 敏感区密不可分. Ln/Q 是目前被广泛应用于 O_3 - NO_x -VOCs 敏感性判别的一个重要指示性判据^[13, 33, 34], 其中 Ln 表示与 NO_x 反应的 RO_x 损耗率, Q 是 RO_x 生成率. 如果某个区域 $\text{Ln}/Q > 0.5$, 代表该区域光化学反应为 VOCs 敏感(说明该区域 NO_x 较丰富, VOCs 体积分数的改变容易引起 O_3 的变化); 某个区域 $\text{Ln}/Q < 0.5$, 则

代表该区域的光化学反应为 NO_x 敏感; $\text{Ln}/Q = 0.5$ 为过渡区域. 为详细考察 VOCs 源对 O_3 的影响, 本研究对 WRF-Chem 模式化学模块进行了修改, 使之能即时输出 Ln/Q 值, 用于分析 O_3 控制区变化情况.

图6给出了 WRF-Chem 模式模拟 1、4、7 和 10 月我国东部沿海地区白天 (06:00 ~ 18:00) 基准源条件下和 VOCs 源强改进后 Ln/Q 空间分布及变化情况. 可以看出, Ln/Q 季节变化较明显. 冬季, 大型城市及我国华东、华北大部分地区均处于 VOCs 敏

感区;春季,VOCs敏感区缩小,集中在华北大部分地区和大型城市;夏季,VOCs敏感区基本集中在大型城市,而大部分地区基本处于 NO_x 敏感区;秋季,VOCs敏感区从华北向华东地区扩大。 Ln/Q 季节变化较显著的一个重要原因是 NO_x 体积分数的季节变化, NO_x 体积分数冬季最高,秋季次之,夏季最低。冬季较高的 NO_x 排放量,不利的气象条件(气温偏低、大气边界层高度偏低等)以及污染物跨界输送的季节变换特征^[35]是导致冬季 NO_x 体积分数最高的主要原因。VOCs源强改进后,部分地区 O_3 生成从VOCs敏感区($\text{Ln}/Q > 0.5$)转变为 NO_x 敏感区($\text{Ln}/Q < 0.5$)。秋冬季节,发生改变的区域主要集中在 NO_x 排放量相对较低的地区;春夏两季主要集中在大型城市周边地区。主要因为秋冬季节大型城市及其周边 NO_x 维持在较高水

平,这些区域处于VOCs敏感区,VOCs源强的少量增加不会改变这些区域的VOCs敏感属性,而 NO_x 排放量相对较低的地区,VOCs源强的增加可能导致部分VOCs体积分数较高的地区从VOCs敏感区向 NO_x 敏感区转变。春夏两季大型城市及其周边 NO_x 体积分数下降,随着太阳辐射的增强,这些区域的光化学反应也逐步增强,加强了 NO_x 循环,部分地区 NO_x 体积分数出现较大幅度改变,VOCs源强的增加会使部分过渡区域从原来的VOCs敏感区转变为 NO_x 敏感区。

上述结果表明,不同季节 Ln/Q 存在显著差异,VOCs源强不确定性会影响 O_3 形成过程中 NO_x 和VOCs敏感区的判断,特别是VOCs源强明显低估会夸大VOCs敏感区的范围,从而降低 O_3 调控对策的有效性。

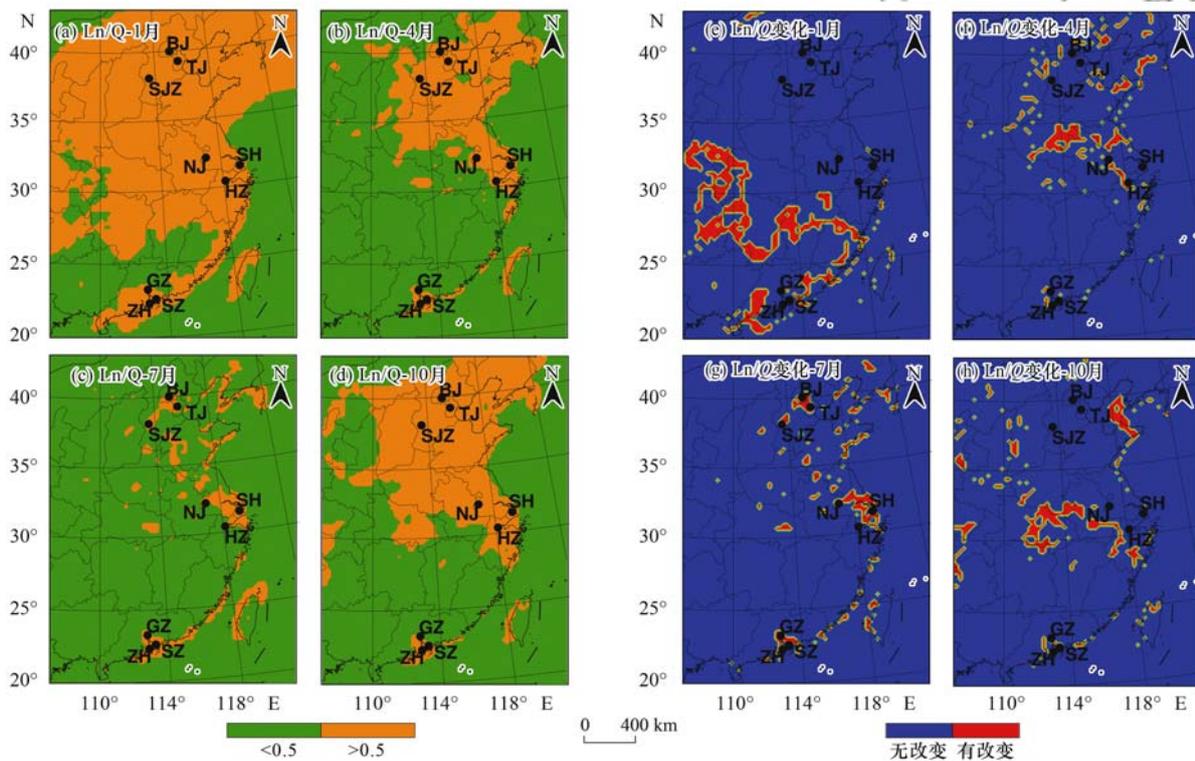


图6 基准源条件下和VOCs源强改进后WRF-Chem模式模拟我国东部沿海地区白天 Ln/Q 空间分布及变化情况

Fig. 6 Monthly mean and changing daytime Ln/Q simulated by WRF-Chem using the bottom-up inventories and modified inventories

3 结论

(1) WRF-Chem模式能较客观地模拟出气象场和污染物浓度场,模拟值与观测值有较好地一致性,模拟性能个别指标优于前人模拟结果, O_3 模拟指标比其他结果更优,能较真实地反映区域污染现状,可评估主要大气化学过程。

(2) VOCs源强的不确定性影响到 $P(\text{O}_3)$ 中各主要化学反应过程贡献比例,从而会影响到 $P(\text{O}_3)$ 日变化和峰值变化,影响到 O_3 生成过程。

(3) VOCs源强的不确定性影响到 $P(\text{O}_3)$ 的空间分布变化,进而影响到 O_3 体积分数分布变化,VOCs源强调整后各季节增幅较大的区域均主要集中在京津冀、长三角和珠三角中心城市及周边区域,因此VOCs源强不确定性造成的影响也重点集中在这些复合型污染较为严重的区域。

(4) VOCs源强的不确定性影响 O_3 形成过程中 NO_x 和VOCs敏感区的判断,特别是VOCs源强明显低估会夸大VOCs敏感区的范围,从而降低 O_3 调控对策的有效性。

参考文献:

- [1] 张远航, 郑君瑜. 中国大气臭氧污染防治蓝皮书(2020年) [EB/OL]. <https://img74.hbzhan.com/4/20201016/637384586133551705645.pdf>, 2021-03-20.
- [2] 王跃思, 李文杰, 高文康, 等. 2013~2017年中国重点区域颗粒物质量浓度和化学成分变化趋势[J]. 中国科学: 地球科学, 2020, **50**(4): 453-468.
Wang Y S, Li W J, Gao W K, *et al.* Trends in particulate matter and its chemical compositions in China from 2013-2017 [J]. *Scientia Sinica (Terrae)*, 2020, **50**(4): 453-468.
- [3] 孙金金, 黄琳, 龚康佳, 等. 2014—2019年北京和南京地区PM_{2.5}和臭氧质量浓度相关性研究[J]. 南京信息工程大学学报(自然科学版), 2020, **12**(6): 656-664.
Sun J J, Huang L, Gong K J, *et al.* Correlation between surface PM_{2.5} and ozone during 2014-2019 in Beijing and Nanjing [J]. *Journal of Nanjing University of Information Science & Technology (Natural Science Edition)*, 2020, **12**(6): 656-664.
- [4] Zheng B, Tong D, Li M, *et al.* Trends in China's anthropogenic emissions since 2010 as the consequence of clean air actions [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2018, **18**(19): 14095-14111.
- [5] 严刚, 王凤, 蔡俊, 等. 挥发性有机物治理实用手册 [M]. 北京: 中国环境出版社, 2020.
- [6] 韩婷婷, 李颖若, 邱雨露, 等. 上甸子区域背景站VOCs污染特征及其对臭氧生成贡献[J]. 环境科学, 2020, **41**(6): 2586-2595.
Han T T, Li Y R, Qiu Y L, *et al.* Characteristics of VOCs and their roles in ozone formation at a regional background site in Beijing, China [J]. *Environmental Science*, 2020, **41**(6): 2586-2595.
- [7] Mozaffar A, Zhang Y L, Fan M Y, *et al.* Characteristics of summertime ambient VOCs and their contributions to O₃ and SOA formation in a suburban area of Nanjing, China [J]. *Atmospheric Research*, 2020, **240**, doi: 10.1016/j.atmosres.2020.104923.
- [8] Lu X, Hong J Y, Zhang L, *et al.* Severe surface ozone pollution in China: a global perspective [J]. *Environmental Science & Technology Letters*, 2018, **5**(8): 487-494.
- [9] Hatfield M L, Huff Hartz K E. Secondary organic aerosol from biogenic volatile organic compound mixtures [J]. *Atmospheric Environment*, 2011, **45**(13): 2211-2219.
- [10] Wei W, Wang S X, Chatani S, *et al.* Emission and speciation of non-methane volatile organic compounds from anthropogenic sources in China [J]. *Atmospheric Environment*, 2008, **42**(20): 4976-4988.
- [11] 朱彬, 安俊岭, 王自发, 等. 光化学臭氧日变化特征与其前体物关系的探讨 [J]. 南京气象学院学报, 2006, **29**(6): 744-749.
Zhu B, An J L, Wang Z F, *et al.* Relations of diurnal variations of photochemical ozone to its precursors [J]. *Journal of Nanjing Institute of Meteorology*, 2006, **29**(6): 744-749.
- [12] Kanaya Y, Pochanart P, Liu Y, *et al.* Rates and regimes of photochemical ozone production over Central East China in June 2006: a box model analysis using comprehensive measurements of ozone precursors [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2009, **9**(20): 7711-7723.
- [13] Lu K D, Zhang Y H, Su H, *et al.* Oxidant (O₃ + NO₂) production processes and formation regimes in Beijing [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2010, **115**(D7), doi: 10.1029/2009JD012714.
- [14] Zhang Q, Streets D G, Carmichael G R, *et al.* Asian emissions in 2006 for the NASA INTEX-B mission [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2009, **9**(14): 5131-5153.
- [15] Li Y, An J L, Min M, *et al.* Impacts of HONO sources on the air quality in Beijing, Tianjin and Hebei Province of China [J]. *Atmospheric Environment*, 2011, **45**(27): 4735-4744.
- [16] Wiedinmyer C, Akagi S K, Yokelson R J, *et al.* The Fire INventory from NCAR (FINN): a high resolution global model to estimate the emissions from open burning [J]. *Geoscientific Model Development*, 2011, **4**(3): 625-641.
- [17] Guenther A, Karl T, Harley P, *et al.* Estimates of global terrestrial isoprene emissions using MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature) [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2006, **6**(11): 3181-3210.
- [18] Grell G A, Peckham S E, Schmitz R, *et al.* Fully coupled "online" chemistry within the WRF model [J]. *Atmospheric Environment*, 2005, **39**(37): 6957-6975.
- [19] Zaveri R A, Peters L K. A new lumped structure photochemical mechanism for large-scale applications [J]. *Journal of Geophysical Research*, 1999, **104**(D23): 30387-30415.
- [20] Fast J D, Gustafson W I Jr, Easter R C, *et al.* Evolution of ozone, particulates, and aerosol direct radiative forcing in the vicinity of Houston using a fully coupled meteorology-chemistry-aerosol model [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2006, **111**(D21), doi: 10.1029/2005JD006721.
- [21] Emmons L K, Walters S, Hess P G, *et al.* Description and evaluation of the Model for Ozone and Related chemical Tracers, version 4 (MOZART-4) [J]. *Geoscientific Model Development*, 2010, **3**(1): 43-67.
- [22] Simon H, Baker K R, Phillips S. Compilation and interpretation of photochemical model performance statistics published between 2006 and 2012 [J]. *Atmospheric Environment*, 2012, **61**: 124-139.
- [23] Wang X, Zhang Y, Hu Y, *et al.* Process analysis and sensitivity study of regional ozone formation over the Pearl River Delta, China, during the PRIDE-PRD2004 campaign using the Community Multiscale Air Quality modeling system [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2010, **10**(9): 4423-4437.
- [24] Li L, Chen C H, Huang C, *et al.* Process analysis of regional ozone formation over the Yangtze River Delta, China using the Community Multi-scale Air Quality modeling system [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2012, **12**(22): 10971-10987.
- [25] Zhang H L, Li J Y, Ying Q, *et al.* Source apportionment of PM_{2.5} nitrate and sulfate in China using a source-oriented chemical transport model [J]. *Atmospheric Environment*, 2012, **62**: 228-242.
- [26] Wang F, An J L, Li Y, *et al.* Impacts of uncertainty in AVOC emissions on the summer ROx budget and ozone production rate in the three most rapidly-developing economic growth regions of China [J]. *Advances in Atmospheric Sciences*, 2014, **31**(6): 1331-1342.
- [27] 安俊岭. 北京近交通主干道地区的臭氧生成效率 [J]. 环境科学学报, 2006, **26**(4): 652-657.
An J L. Ozone production efficiency in Beijing area with high NO_x emissions [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2006, **26**(4): 652-657.
- [28] 王峰, 汪健伟, 翟菁, 等. 卫星观测资料改进活性挥发性有机化合物源排放及其对臭氧模拟影响 [J]. 中国环境科学, 2021, **41**(6): 2504-2514.
Wang F, Wang J W, Zhai J, *et al.* Emission improvements of reactive VOCs based on satellite observations and their impact on

- ozone simulations[J]. *China Environmental Science*, 2021, **41**(6): 2504-2514.
- [29] 杨文夷, 李杰, 陈焕盛, 等. 东亚边界层臭氧时空分布的数值模拟研究[J]. *中国环境科学*, 2014, **34**(7): 1633-1641.
Yang W Y, Li J, Chen H S, *et al.* Modeling analysis of boundary layer ozone distributions over East Asia[J]. *China Environmental Science*, 2014, **34**(7): 1633-1641.
- [30] 宗雪梅, 王庚辰, 陈洪滨, 等. 北京地区边界层大气臭氧浓度变化特征分析[J]. *环境科学*, 2007, **28**(11): 2615-2619.
Zong X M, Wang G C, Chen H B, *et al.* Analysis on concentration variety characteristics of atmospheric ozone under the boundary layer in Beijing[J]. *Environmental Science*, 2007, **28**(11): 2615-2619.
- [31] 刘洁, 张小玲, 张晓春, 等. 上甸子本底站地面臭氧变化特征及影响因素[J]. *环境科学研究*, 2006, **19**(4): 19-25.
Liu J, Zhang X L, Zhang X C, *et al.* Surface ozone characteristics and the correlated factors at Shangdianzi atmospheric background monitoring station [J]. *Research of Environmental Sciences*, 2006, **19**(4): 19-25.
- [32] Shao M, Lu S H, Liu Y, *et al.* Volatile organic compounds measured in summer in Beijing and their role in ground-level ozone formation [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2009, **114**(D2), doi: 10.1029/2008JD010863.
- [33] Kleinman L I, Daum P H, Lee J H, *et al.* Dependence of ozone production on NO and hydrocarbons in the troposphere [J]. *Geophysical Research Letters*, 1997, **24**(18): 2299-2302.
- [34] Song S K, Kim Y K, Shon Z H, *et al.* Photochemical analyses of ozone and related compounds under various environmental conditions[J]. *Atmospheric Environment*, 2012, **47**: 446-458.
- [35] 安俊岭, 李健, 张伟, 等. 京津冀污染物跨界输送通量模拟[J]. *环境科学学报*, 2012, **32**(11): 2684-2692.
An J L, Li J, Zhang W, *et al.* Simulation of transboundary transport fluxes of air pollutants among Beijing, Tianjin, and Hebei Province of China [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2012, **32**(11): 2684-2692.



CONTENTS

Emission Reduction Potential of Air Pollutants of Thermal Power Industry Based on Carbon Emission Reduction Target and Emission Standard Constraint Scenarios	LI Hui, SUN Xue-li, PANG Bo, <i>et al.</i> (5563)
Volatile Organic Compounds in the Vehicle Repairing Industry of China; Emission, Management, Purification, and Policy	WANG Hai-lin, YANG Tao, NIE Lei, <i>et al.</i> (5574)
Pollutant Emission Inventory of Biomass Combustion Sources in Xining City	GAO Yu-zong, JI Ya-qin, LIN Zi, <i>et al.</i> (5585)
Analysis of Air Quality and Influencing Factors in Sichuan Basin During the COVID-19 Outbreak	CHEN Jun-hui, FENG Xiao-qiong, LI Yuan, <i>et al.</i> (5594)
Estimation of PM _{2.5} Concentration in Sichuan Province Based on Improved Linear Mixed Effect Model and Geo-intelligent Random Forest	WU Yu-hong, DU Ning, WANG Li, <i>et al.</i> (5602)
Characterization of Water-soluble Inorganic Ions in Atmospheric PM _{2.5} in Chengdu During the Later Stage of the Air Pollution Prevention and Control Action Plan	LI Jia-qi, ZHANG Jun-ke, DONG Gui-ming, <i>et al.</i> (5616)
Characteristics of Chemical Composition and Source Apportionment of Atmospheric Fine Particulate Matter in Luoyang	SUN Jia-bin, DONG Zhe, LI Li-ping, <i>et al.</i> (5624)
Characteristics and Main Influencing Factors of Black Carbon Aerosol in Beijing	CAO Yang, AN Xin-xin, LIU Bao-xian, <i>et al.</i> (5633)
Chemical Characteristics and Source Apportionment with Temporal Refinement for VOCs in Tianjin Suburb in Summer	WANG Yi-xuan, LIU Bao-shuang, WU Jian-hui, <i>et al.</i> (5644)
Pollution Characteristics and Reactivity of Volatile Organic Compounds in Shenyang	DU Han-bing, WANG Nan, REN Wan-hui, <i>et al.</i> (5656)
Characteristics and Source Apportionment of Atmospheric SVOCs Around Typical Chemical Industry Zones	GE Xiang, WU Jian, GAO Song, <i>et al.</i> (5663)
Source Analysis and Health Risk Assessment of Toxic Volatile Organic Compounds in Nanjing in Summer and Winter	ZHANG Zi-jin, LIN Yu-chi, ZHANG Yu-xian, <i>et al.</i> (5673)
Emission Characteristics of Industrial VOCs Based on Emission Inventory and Field Test: A Case Zhengzhou High-tech Zone	REN He, LU Xuan, LIU Yang, <i>et al.</i> (5687)
VOCs Emission Characteristics of Water-based Architectural Coatings and the Influence on the Atmospheric Environment in China	GAO Mei-ping, WANG Hai-lin, LIU Wen-wen, <i>et al.</i> (5698)
WRF-Chem Simulations of the Impacts of Uncertainty in VOCs Emissions on Ozone Formation and Control Strategies	WANG Feng, WANG Jian-wei, YANG Ning, <i>et al.</i> (5713)
Spatial and Temporal Distribution of Ozone and Influencing Factors in Shandong Province	ZHANG Miao, DING Chun, LI Yan, <i>et al.</i> (5723)
Chemical Characteristics and Contaminant Sensitivity During the Typical Ozone Pollution Processes of Chengdu in 2020	QIAN Jun, XU Chen-xi, CHEN Jun-hui, <i>et al.</i> (5736)
Development of an Emission Model for Oxygenated Volatile Organic Compounds from Gasoline Vehicles Based on the Online Measurement	HAO Yu-qi, YUAN Zi-bing, WANG Meng-lei, <i>et al.</i> (5747)
Dynamic Evolution Characteristics of Water Resources Utilization Efficiency in China Under the Constraint of Triple Attribute Carrying Capacity	ZHANG Kai, WU Feng-ping, CHENG Chang-chun (5757)
Prediction of Total Nitrogen Load in Yangtze River Basin	DING Zhao-wei, ZHENG Hua (5768)
Dynamic of Net Anthropogenic Nitrogen Inputs and Riverine Nitrogen Export in the Yangtze River Basin in 1980-2015	YAO Meng-ya, HU Min-peng, CHEN Ding-jiang (5777)
Characteristics of Water Environment and Spatial-temporal Distribution of Nitrogen and Phosphorus Load in the Yellow River	HAN Xu, PAN Bao-zhu, CHEN Yue, <i>et al.</i> (5786)
Analysis of Nitrate Pollution Sources Under Different Rainfall Conditions Based on $\delta^{15}\text{N}$ and $\delta^{18}\text{O}$ Values	XING Zi-kang, YU Zhong-bo, YI Peng, <i>et al.</i> (5796)
Seasonal Variation Characteristics of Eukaryotic Microbial Community Composition in the Source Water Reservoir	ZHANG Hai-han, HUANG Xin, HUANG Ting-lin, <i>et al.</i> (5804)
Characteristics of Planktonic Bacteria Community Between Summer and Winter Surface Water in Dali Lake	LI Wen-bao, GUO Xin, ZHANG Bo-yao, <i>et al.</i> (5814)
Impacts of Wastewater Effluent Discharge on Bacteria Community and Water-soluble Organic Matter in Benthic Biofilm in Receiving River	WANG Yu-tao, FAN Chen-yang, ZHU Jin-xin, <i>et al.</i> (5826)
Pollution Characteristics and Risk Assessment of Typical POPs in Typical Drinking Water Sources in Wuhan	ZHANG Kun-feng, FU Qing, TU Xiang, <i>et al.</i> (5836)
Investigation on Fluoroquinolone Resistance Genes in the Intensive Aquaculture Area of Shatianhu Intensive Aquaculture Farm and Surrounding Waterbodies in Shanghai, China	XU Mu, LI Shi-hao, MA Jin, <i>et al.</i> (5848)
Influencing Factors of Nitrogen Removal from Low-Pollution Water by Aerated Constructed Wetland	LI Lin-lin, LI Rong-tao, KONG Wei-jing, <i>et al.</i> (5857)
Removal of Characteristic Pollutants in Livestock Wastewater by Horizontal Subsurface Flow Constructed Wetlands	ZHAO Wei, FAN Zeng-zeng, YANG Xin-ping (5865)
Improvement of Nitrogen and Phosphorus Adsorption and Stormwater Retention Capacity by Hardwood Biochar as an Additive Material in Filler Soil	MENG Yi-ke, WANG Yuan, WANG Chuan-yue, <i>et al.</i> (5876)
Removal of Ammonia Nitrogen from Polyvinyl Alcohol/Sodium Alginate Fixed Micron Zeolite Powder in Black and Smelly Rivers	WEI Chao, CHEN Tao, JIANG Qiao, <i>et al.</i> (5884)
Effect of Corn Stalk Biochar on the Adsorption of Aureomycin from Sizozem	NAN Zhi-jiang, JIANG Yu-feng, MAO Huan-huan, <i>et al.</i> (5896)
Microbial Degradation Potential and Transformation Pathway of Micropollutants in Sand Filters of Drinking Water Treatment Plants	ZHOU Jie, WANG Dong-lin, LIN Hui, <i>et al.</i> (5905)
Long-term Trends in Illicit Drugs Abuse in the City Assessed by Wastewater Analysis	CAO Yu, DONG Xiao-tang, SHAO Xue-ting, <i>et al.</i> (5912)
Stress and Post Effects of Azithromycin and Copper on Archaeal Community and ARGs in Activated Sludge	GAO Yu-xi, LI Xing, ZHAO Jun-ru, <i>et al.</i> (5921)
Spatial Distribution Characteristics and Source Analysis of Soil Heavy Metals at Typical Smelting Industry Sites	LI Qiang, CAO Ying, HE Lian-sheng, <i>et al.</i> (5930)
Distribution and Ecological Risk Assessment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Heavy Metals in Coking Sites in China	WANG Yao-feng, HE Lian-sheng, JIANG Deng-ling, <i>et al.</i> (5938)
Spatial Variation and Risk Assessment of Heavy Metals in Soils of Main <i>Torreya grandis</i> Plantation Region in Zhejiang Province	WANG Min, DONG Jia-qi, BAI Long-long, <i>et al.</i> (5949)
Investigations on the Derivation of Safe Maize-Producing Threshold of Soil Cd Content and on Classification of Cd Contaminated Maize-Producing Areas in Northern China	GUAN Wei-dou, GUO Di, WANG Ping, <i>et al.</i> (5958)
Relationship Characteristics and Risk Assessment of Heavy Metal Contents in Soil Aggregates and in Crops Around a Typical Pb-Zn Mining Area	QIANG Yu, LI Ying-ju, LUO Qian, <i>et al.</i> (5967)
Heavy Metal Pollution and Cumulative Effect of Soil-crop Systems Around Typical Enterprises in Xiong'an New District	ZHOU Ya-long, WANG Qiao-lin, WANG Cheng-wen, <i>et al.</i> (5977)
Heavy Metal Accumulation Effect and Safe Planting Zoning of Soil and Rice in Tongren	ZHU Liang-liang, WU Yong, ZHOU Lang, <i>et al.</i> (5988)
Effect of Dry-Wet Alternation on the Immobilization of Arsenic in Red Soil by Cerium Manganese Modified Biochar	HUANG Xiao-ya, LI Lian-fang, ZHU Chang-xiong, <i>et al.</i> (5997)
Ammonium Nitrogen Fertilizer and Humic Acid Synergically Promote the Removal of Cd from Soil by <i>Tagetes patula</i> L.	WANG Bing-qing, YANG Qin, LI Hong-ying, <i>et al.</i> (6006)
Characteristics and Influencing Factors of the Dissolved Methane and Nitrous Oxide Concentrations and Emissions from a Rice Paddy Drainage River in China	WU Shuang, YANG Wei-tong, SHENG Yang-yue, <i>et al.</i> (6014)
Coupling Effects of Water-saving Irrigation and Controlled-release Fertilizer (CRF) Application on CH ₄ and N ₂ O Emission in Single Cropping Paddy Field	WANG Yong-ming, XU Yong-ji, JI Yang, <i>et al.</i> (6025)
Effects of Manure Combined Chemical Fertilizers on Soil N ₂ O Emission and Microbial Characteristics of Wheat Crop System in Northwest Arid	WANG Kai, SHI Lei, MA Long, <i>et al.</i> (6038)
Effects of Different Types of Straw Returning on the Bacterial Community, Organic Carbon Mineralization and Maize Yield in Upland Red Soil	KONG Pei-jun, ZHENG Jie, LUAN Lu, <i>et al.</i> (6047)
Effects of Nitrogen and Phosphorus Additions on Soil Microorganisms in Saline-alkaline Grassland	YANG Jian-qiang, DIAO Hua-jie, HU Shu-ya, <i>et al.</i> (6058)
Effects of Combined Application of Biochar with Chemical Fertilizers and Organic Fertilizers on Nutrients and Phosphorus Forms in Purple Soils	XIANG Shu-jiang, YU Luo, XIONG Zi-yi, <i>et al.</i> (6067)
Effects of <i>Enteromorpha prolifera</i> Biochar and Wood Vinegar Co-application on Takyric Solonetz Improvement and Yield of Oil Sunflower	WANG Zheng, SUN Zhao-jun, Sameh El-Sawy, <i>et al.</i> (6078)