

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.2
第41卷 第2期

目次

基于GAM模型分析中国典型区域网格化PM _{2.5} 长期变化影响因素	南洋, 张倩倩, 张碧辉 (499)
我国PCDD/Fs网格化大气排放清单	陈露露, 黄韬, 陈凯杰, 宋世杰, 高宏, 马建民 (510)
成都平原PM _{2.5} 中碳质组分时空分布特征与来源	史芳天, 罗彬, 张巍, 刘培川, 郝宇放, 杨文文, 谢绍东 (520)
南京江北新区冬季PM _{2.5} 中化学组分的昼夜变化特征及其来源解析	邱晨晨, 于兴娜, 丁铨, 时政, 张瑞芳, 侯思宇, 侯新红 (529)
南京北郊四季PM _{2.5} 中有机胺的污染特征及来源解析	李栩婕, 施晓雯, 马嫣, 郑军 (537)
长三角背景点夏季大气PM _{2.5} 中正构烷烃和多环芳烃的污染特征和来源解析	薛国艳, 王格慧, 吴灿, 谢郁宁, 陈玉宝, 李杏茹, 王心培, 李大鹏, 张思, 葛双双, 丁志健 (554)
2017年秋季长春市PM _{2.5} 中多环芳烃的污染来源及健康风险评价	张艺璇, 曹芳, 郑涵, 张东东, 翟晓瑶, 范美益, 章炎麟 (564)
京津冀及周边区域PM _{2.5} 叠加沙尘重污染过程特征及预报效果分析	朱媛媛, 高愈霄, 柴文轩, 王帅, 李亮, 王威, 王光, 刘冰, 王晓彦, 李健军 (574)
河南省臭氧污染特征与气象因子影响分析	齐艳杰, 于世杰, 杨健, 尹沙沙, 程家合, 张瑞芹 (587)
河南省气溶胶光学特性的时空变化特征	张瑞芳, 于兴娜 (600)
黑炭气溶胶质谱仪(SP-AMS)分析春季PM _{2.5} 中水溶性有机气溶胶	黄雯倩, 陈彦彤, 李旭东, 赵竹子, 马帅帅, 叶招莲, 盖鑫磊 (609)
南京市黑炭气溶胶时间演变特征及其主要影响因素	杨晓旻, 施双双, 张晨, 王红磊, 王振彬, 朱彬 (620)
连云港不同功能区挥发性有机物污染特征及臭氧生成潜势	乔月珍, 陈凤, 李慧鹏, 赵秋月 (630)
挥发性有机物污染控制方案的运行费用效能比较	羌宁, 史天哲, 缪海超 (638)
西安市大气降水污染和沉降特征及其来源解析	丁铨, 于兴娜, 侯思宇 (647)
4种动物养殖场空气中抗生素耐药菌的生物多样性及群落结构	沙云菲, 孙兴滨, 辛文鹏, 高浩泽, 程首涛, 高敏, 王旭明 (656)
辽宁省2000~2030年机动车排放清单及情景分析	金嘉欣, 孙世达, 王芃, 林应超, 王婷, 吴琳, 魏宁, 常俊雨, 毛洪钧 (665)
国六柴油机DPF再生时VOCs排放特性	钱枫, 薛常鑫, 许小伟, 马东, 李朋, 祝能 (674)
南小河流域地表水和地下水的稳定同位素和水化学特征及其指示意义	郭亚文, 田富强, 胡宏昌, 刘亚平, 赵思晗 (682)
乐安河中下游重金属时空分布特征及风险评价	余杨, 吕雅宁, 王伟杰, 渠晓东, 刘聚涛, 温春云 (691)
温榆河水环境质量与浮游植物群落结构的时空变化及其相互关系	朱利英, 陈媛媛, 刘静, 王亚炜, 王春荣, 魏源送, 张育新 (702)
新安江水库河口区水质及藻类群落结构高频变化	宣文怡, 朱广伟, 黎云祥, 吴志旭, 郑文婷, 兰佳, 王裕成, 许海, 朱梦圆 (713)
环渤海芦苇湿地磷的吸附容量及释放风险评估	宋佳伟, 徐刚, 张扬, 吕迎春 (728)
洱海藻类水华高风险期沉积物氮磷释放通量时空变化	刘思儒, 赵继东, 肖尚斌, 倪兆奎, 王圣瑞 (734)
西安市降雪中DOM荧光特性和来源分析	杨毅, 韩丽媛, 刘焕武, 雷颖, 李兢, 徐会宁 (743)
透水砖铺装的设施构造对运行效果的影响	张佳炜, 刘勇, 金建荣, 李田 (750)
微米SiC/石墨烯复合物光催化降解罗丹明B	朱红庆, 杨兵, 魏世强, 杨静静, 张进忠 (756)
锰铁改性针簇莫来石对水中BPA和EE2的去除	周秋红, 龙天渝, 何靖, 郭劲松, 高俊敏 (763)
载钼磁性水热生物炭的制备及其除磷性能	宋小宝, 何世颖, 冯彦房, 花昀, 唐婉莹, 朱秋蓉, 薛利红, 杨林章 (773)
复合金属改性生物炭对水体中低浓度磷的吸附性能	孙婷婷, 高菲, 李莉, 黎睿, 董磊 (784)
磁性硅藻土负载纳米过氧化钙对水中磷酸盐吸附	徐楚天, 李大鹏, 张帅, 耿雪, 陈丽媛, 宋小君, 郭超然, 黄勇 (792)
污水厂尾水受纳河段沉积物磷形态及释放风险效应	汤宁, 李如忠, 王丰庆, 何瑞亮, 刘超 (801)
生物膜生态浮床对城市尾水净化特征分析	赵志瑞, 张佳瑶, 李铎, 李方红 (809)
磁凝凝对市政污水中抗生素抗性基因和重金属抗性基因的削减效能	于雯超, 郑利兵, 魏源送, 王哲晓, 张鹤清, 黄光华, 焦赞仪, 吴振军 (815)
四环素抗生素对污泥中四环素抗性基因丰度和表达水平的作用影响	阮晓慧, 钱雅洁, 薛罡, 高品 (823)
异养硝化细菌Pseudomonas aeruginosa YL的脱氮过程及N ₂ O产生特性	杨垒, 崔坤, 任勇翔, 郭淋凯, 张志昊, 肖倩, 陈宁, 汪旭晖 (831)
包埋厌氧氨氧化菌的环境因子影响特性及群落结构分析	王晓瞳, 杨宏, 苏杨, 刘旭妍 (839)
包埋反硝化填料强化二级出水深度脱氮性能研究及中试应用	周亚坤, 杨宏, 王少伦, 何海超, 刘宗跃, 苏扬, 张辉 (849)
厌氧时间对间歇进水-间歇曝气的好氧颗粒污泥系统影响	张杰, 王玉颖, 李冬, 曹思雨, 李帅 (856)
除磷颗粒诱导的同步短程硝化反硝化除磷颗粒污泥工艺	李冬, 刘博, 王文琪, 张杰 (867)
桂西南地区地球化学异常区农田重金属空间分布特征及污染评价	王佛鹏, 肖乃川, 周浪, 虎瑞, 宋波 (876)
青藏高原表土重金属污染评价与来源解析	杨安, 王艺涵, 胡健, 刘小龙, 李军 (886)
黄河三角洲不同植物群落土壤酶活性特征及影响因子分析	莫雪, 陈斐杰, 游冲, 刘福德 (895)
管理措施对黄土高原油松人工林土壤水溶性碳氮及其三维荧光特征的影响	宋亚辉, 张娇阳, 刘鸿飞, 薛蕊, 李秧秧 (905)
生物炭输入对不同滨岸带土壤营养元素有效态变化的影响	周慧华, 袁旭音, 熊钰婷, 韩年, 叶宏萌, 陈耀祖 (914)
水热炭减少稻田氨挥发损失的效果与机制	余姗, 薛利红, 花昀, 李德天, 谢斐, 冯彦房, 孙庆业, 杨林章 (922)
接种菌根真菌对湿生植物根际土壤硝化反硝化活性的影响及其微生物机制	刘猷, 王磊, 曹湛波, 段灏 (932)
基于漂浮箱法和扩散模型测定淡水养殖鱼塘甲烷排放通量的比较	胡涛, 黄健, 丁颖, 孙志荣, 徐梦凡, 刘树伟, 邹建文, 吴双 (941)
超高效液相色谱串联质谱法同时测定叶菜中13种抗生素	陈乾, 刘洋, 肖丽君, 邹德玉, 刘海学, 吴惠惠 (952)
青菜中镉的吸收和累积对硒的响应规律	余焱, 罗丽韵, 刘哲, 付平南, 李花粉 (962)
两种不同镉富集能力油菜品种耐性机制	卞建林, 郭俊梅, 王学东, 杨俊兴, 杨军, 陈同斌, 曹柳, 成永霞, 任战红, 王杰, 周小勇 (970)
可生物降解螯合剂GLDA强化三叶草修复镉污染土壤	贺玉龙, 余江, 谢世前, 李佩柔, 周宽, 何欢 (979)
我国畜禽粪便重金属含量特征及土壤累积风险分析	穆虹宇, 庄重, 李彦明, 乔玉辉, 陈清, 熊静, 郭丽莉, 江荣凤, 李花粉 (986)
畜禽粪便和桃树枝工业化堆肥过程中微生物群落演替及其与环境因子的关系	蔡涵冰, 冯雯雯, 董永华, 马中良, 曹慧锦, 孙俊松, 张保国 (997)
4种粪便堆肥过程中抗生素的降解特性	朱为静, 朱凤香, 王卫平, 洪春来, 姚燕来 (1005)
《环境科学》征订启事(553)	
《环境科学》征稿简则(655)	
信息(664, 755, 885)	

河南省臭氧污染特征与气象因子影响分析

齐艳杰¹, 于世杰¹, 杨健¹, 尹沙沙^{1*}, 程家合², 张瑞芹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. 河南省气象服务中心, 郑州 450003)

摘要: 利用环境空气质量监测站和国家基准地面气候站数据, 研究了2017年河南省臭氧(O_3)污染时空特征及其与颗粒物、前体物和气象因子关系。结果表明, 河南省2017年 O_3 日最大8 h滑动平均值(MDA8)呈现夏季>春季>秋季>冬季的特征, 年均值为 $108 \mu g \cdot m^{-3}$; 各地市均有不同程度 O_3 超标情况, 其中, 安阳超标天数高达88 d, 信阳最少为17 d; 春末夏初(5月和6月) O_3 污染最为严重, O_3 MDA8月均浓度在 $140 \mu g \cdot m^{-3}$ 以上, 并在6月达到峰值; 定性和定量分析显示 O_3 MDA8月均浓度与颗粒物、 O_3 小时浓度与CO、 NO_2 呈负相关; 不同季节、不同城市 O_3 MDA8与气象因子(日照时长、气温、降雨、能见度、相对湿度及风速)的相关性具有差异。

关键词: 河南省; 臭氧(O_3); 时空特征; 气象因子; 空间差异率

中图分类号: X515 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2020)02-0587-13 DOI: 10.13227/j.hjxx.201908122

Analysis of Characteristics and Meteorological Influence Factors of Ozone Pollution in Henan Province

QI Yan-jie¹, YU Shi-jie¹, YANG Jian¹, YIN Sha-sha^{1*}, CHENG Jia-he², ZHANG Rui-qin¹

(1. Research Institute of Environmental Science, College of Chemistry and Molecular Engineering, Zhengzhou University, Zhengzhou 450001, China; 2. Henan Meteorological Service, Zhengzhou 450003, China)

Abstract: The spatio-temporal characteristics of ozone (O_3) pollution in the Henan Province in 2017 and its relationship with particulate matter, precursors, and meteorological factors were studied using the data obtained from the air quality monitoring station and national baseline ground climate station. Results showed that the annual mean O_3 concentration of a maximum daily 8-h average (MDA8) was $108 \mu g \cdot m^{-3}$ in the Henan Province with the trend of summer > spring > autumn > winter. Different levels of O_3 were observed in various cities. The number of days exceeding the standard was up to 88 days in Anyang, while the lowest was found in Xinyang with 17 days. The most severe of O_3 pollution occurred during late spring and early summer. During this period, the average monthly concentration of O_3 MDA8 was above $140 \mu g \cdot m^{-3}$, and peaked in June. The qualitative and quantitative analysis showed that the monthly average concentration of O_3 MDA8 was negatively correlated with particulate matter, and the O_3 hourly concentration was also negatively correlated with CO and NO_2 . The O_3 MDA8 concentration and meteorological factors (sunshine duration, temperature, rainfall, visibility, humidity, and wind speed) had different correlations during different seasons and various cities.

Key words: Henan Province; ozone (O_3); temporal-spatial characteristic; meteorological factor; coefficient of divergence

对流层中的臭氧(O_3)主要由氮氧化物(NO_x)和挥发性有机物(VOCs)经过一系列复杂的光化学反应生成, 是大气中重要的污染物之一, 影响区域和城市空气质量^[1]。同时, 作为一种强氧化剂, 近地面层 O_3 浓度的升高对人体健康和动植物会产生危害^[2,3]。因此, O_3 污染问题一直受到研究人员的广泛关注。

曹庭伟等^[4]、易睿等^[5]、Zheng等^[6]和程麟钧等^[7]分别对成渝城市群、长江三角洲(长三角)、珠江三角洲(珠三角)和京津冀区域进行了 O_3 污染特征研究, 均表明 O_3 污染具有显著且差异化的时空特征。成渝城市群由于盆地地形易形成“污染物滞留区”, 高值区分布在城市群西北部; 海岛城市舟山 O_3 污染谷值出现在6月, 长三角在5月和8月出现双峰的时间变化特征; 珠三角 O_3 污染则表现出秋季严重、夏季较轻的特征; 京津冀区域 O_3 日最大8 h滑动平均(MDA8)年均值的高值区主要分布在北京中

北部、承德和衡水等地区。李昌龙等^[8]、叶芳等^[9]、Xu等^[10]和王占山等^[11]的研究显示, 对流层底层 O_3 MDA8与其前体物CO、 NO_x 和VOCs浓度呈负相关关系。此外学者分别对我国香港^[12]、北京^[13]和天津^[14]地区气象因素对 O_3 污染影响进行了研究, 表明气象因子对 O_3 MDA8浓度变化有显著影响, 并表现出区域差异。如降水和云量是影响香港地区 O_3 MDA8浓度的重要因素, 北京地区气温与 O_3 MDA8浓度表现出良好的正相关性, 而气温、相对湿度、风速和风向则是影响天津地区 O_3 MDA8浓度的主要气象因子。因此, 对不同地区 O_3 污染特征及与气象因子关系的研究是非常有必要的。

据统计, 2017年河南省总人口达10 853万人,

收稿日期: 2019-08-10; 修订日期: 2019-09-26

基金项目: 国家重点研发计划项目(2017YFC0212403)

作者简介: 齐艳杰(1996~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为大气污染防治, E-mail: 1125017693@qq.com

* 通信作者, E-mail: shashayin@zzu.edu.cn

机动车保有量1 286万辆,由于经济和城市化的快速发展带来大量污染物排放, O_3 污染逐渐凸显.近几年,以 O_3 为首要污染物的天数不断增加,以省会郑州市为例,2013~2017 年以 O_3 为首要污染物天数分别为 16、11、39、115 和 128 d,然而以河南为代表的中原地区相关研究还较为缺乏.

因此,本文以河南省为研究对象,选取 2017 年为基准年,基于在线空气质量数据和气象数据,开展河南省 O_3 污染时空特征及其影响因素的定性及定量评估研究,以期为本区域 O_3 污染问题识别提供参考.

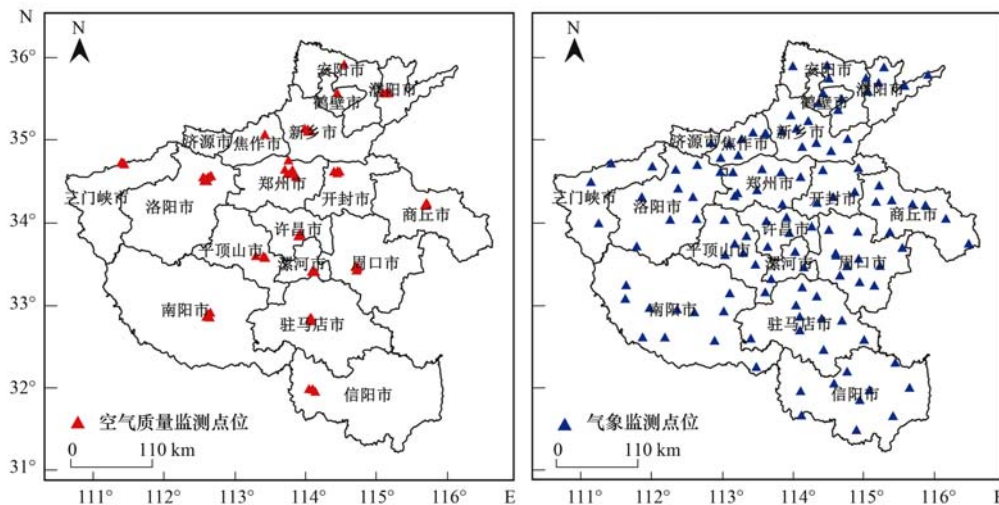


图 1 河南省空气质量和气象监测点分布

Fig. 1 Air quality and meteorological monitoring stations in Henan Province

1.2 分析方法

首先,依据环境空气质量评价技术规范(试行)^[15]、环境空气质量标准^[16]和环境空气质量指数(AQI)技术规定(试行)^[16]判定数据的有效性和评价方法,统计 O_3 MDA8 的月均浓度和超标天数,分析河南省 O_3 污染状况,并与其它主要城市群对比.

同时,通过计算空间差异率(coefficient of divergence, COD)定量分析 17 个地市 O_3 污染程度的差异.具体公式如下:

$$COD_{jk} = \sqrt{\frac{1}{p} \sum_{i=1}^p \left(\frac{X_{ij} - X_{ik}}{X_{ij} + X_{ik}} \right)^2} \quad (1)$$

式中, j 和 k 为两个城市; X_{ij} 和 X_{ik} 为 j 和 k 城市同一污染物 i 的浓度值; p 为城市个数; COD_{jk} 为 j 和 k 城市的空间差异率.一般认为, COD_{jk} 接近于零,表明城市 j 和城市 k 的污染程度相似,当 $COD > 0.3$ 时,两个城市污染程度存在显著差异^[18].

此外,采用反距离加权法(inverse distance weighted, IDW)识别河南省四季 O_3 MDA8 浓度空间分布,并对同期 121 个站点的气温、降水、相对湿度、能见度和风速及 20 个站点的日照时长等气象因子进行空间插值,识别其空间分布特征.并运用 Origin 9.0

1 材料与方法

1.1 数据来源

选取河南省为研究区域(图 1),研究时段为 2017 年 1~12 月,空气质量观测数据源于河南省 17 个地级市(除济源市)共 66 个国控空气质量自动监测站点,包含 $PM_{2.5}$ 、 PM_{10} 、 SO_2 、 NO_2 、 CO 和 O_3 小时浓度.同期地面气象数据来自河南省 121 个站点的常规气象观测数据,包括逐时的日照时长、气温、降水、相对湿度、能见度和风速.

对影响 O_3 污染的气象因素进行定量评估.

2 结果与讨论

2.1 O_3 污染时空特征

2.1.1 总体概况

经统计分析,2017 年河南省 17 个城市环境空气质量超标总天数为 4 031 d, O_3 MDA8 超过二级标准限值总天数为 1 122 d,占超标总天数的 27.8%,占监测总天数(17 个城市有效监测天数之和为 6 037 d)的 18.6%.虽然整体上超标天数仍以颗粒物($PM_{2.5}$ 和 PM_{10})为首要污染物天数居多,但 O_3 超标天数明显多于 CO 、 NO_2 和 SO_2 . 其中, O_3 轻度污染为 890 d,占 O_3 MDA8 超标总天数的 79.3%,中度污染为 215 d,占 19.2%,重度污染为 17 d,占 1.5%,无严重污染天气.除信阳市外,其余 16 个城市 2017 年 O_3 年均评价结果均超标.

与三大城市群的月均 O_3 MDA8 浓度第 90 百分位数进行对比(图 2)可知:河南省月均 O_3 MDA8 浓度第 90 百分位数处于较高水平,与京津冀地区特征相似,均在 1 a 中的 6 月份出现最高值.河南省与京津冀地区同属于温带大陆性季风气候,地理位置接

近,天气现象变化相似.而珠三角地区位于南部亚热带地区,夏季降雨量大,冲刷作用明显,且盛行南风,气团来自较清洁的南海,因此差别较大.

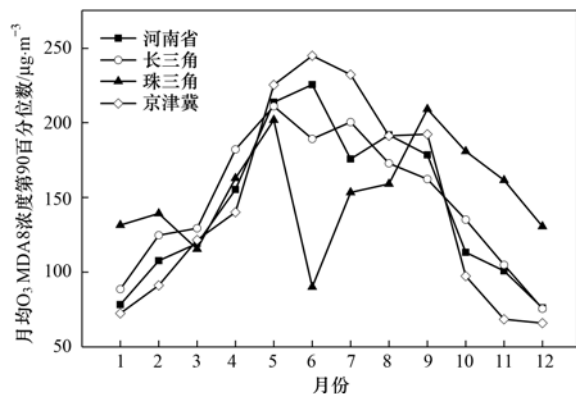


图2 河南省、长三角、珠三角和京津冀月均 O₃ MDA8 浓度第 90 百分位数

Fig. 2 The 90th percentile of O₃ MDA8 monthly concentrations in Henan, Yangtze River Delta, Pearl River Delta, and Beijing-Tianjin-Hebei regions

进一步对比各市 O₃ 浓度超标情况(图 3),可以看出,信阳 O₃ 超标天数最少,仅为 17 d,除漯河和周口 O₃ 超标天数在 50 d 以下(分别为 47 d 和 43 d)外,其余城市超标天数均大于 50 d.特别是,豫西和豫北地区的洛阳、鹤壁、安阳和焦作均在 80 d 以上,其中安阳高达 88 d,占 O₃ MDA8 总超标天数的 7.8%.因此,2017 年河南省各市 O₃ 超标现象普遍存在,污染状况不容乐观,值得进一步关注.

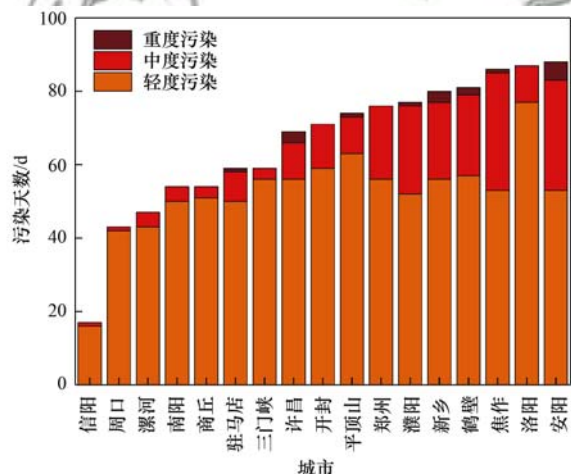


图3 河南省 2017 年各地市 O₃ MDA8 超标天数及污染等级分布
Fig. 3 O₃ MDA8 over-standard days and pollution levels of each city in Henan Province, 2017

2.1.2 时间变化特征

图 4 可以看出,河南省 O₃ MDA8 月均浓度有显著的月变化特征,呈现倒“V”型^[19].春(126 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)、夏(153 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)两季 O₃ 污染明显高于秋(90 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)、冬(63 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)季. 1~6 月 O₃ MDA8 月均浓度逐渐升高至最高值 177 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 7

~12 月则逐渐下降,12 月降至与 1 月份相当的浓度水平,约为 50 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,是一年中浓度最低的阶段,冬季(12 月、1 月和 2 月)未出现 O₃ 超标天数.

此外, O₃ MDA8 月均超标天数也呈现相似的变化特征, 5~6 月 O₃ MDA8 月均超标天数最多,均在 15 d 以上, 6 月达到最高值 20 d. 但 7 月份出现了不同的变化情况,超标天数低于 8 月甚至 9 月. 结合气象数据分析,河南属于北亚热带向暖温带过渡的大陆性季风气候,降水集中在 6~9 月份,占全年降水量的 60%~68%. 其中, 7 月总降水量达 17 819 mm, 占全年总降水量的 39.1%. 因此, 7 月的连续降雨,使得 O₃ MDA8 月均浓度降低,超标天数也有所减少.

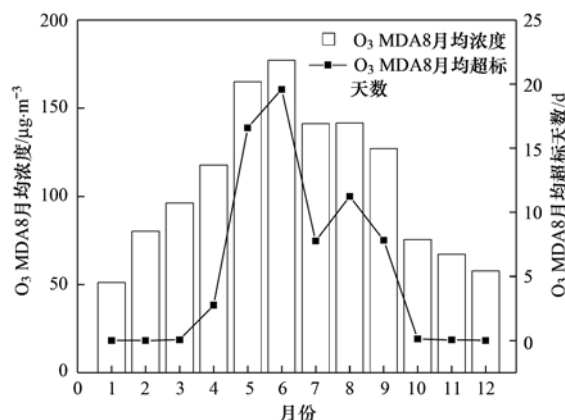


图4 河南省 2017 年 O₃ MDA8 浓度与超标天数月变化
Fig. 4 Monthly average distribution of O₃ MDA8 and above-standard days in Henan Province, 2017

2.1.3 空间分布特征

从四季 O₃ MDA8 浓度空间分布可以看出(图 5),河南省 O₃ 污染北部较南部严重. 高值区集中在洛阳与焦作相接处以及新乡,夏季 O₃ MDA8 浓度分别为 182、172 和 167 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. 最南端的信阳市夏季 O₃ MDA8 浓度仅为 108 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,春夏两季均呈现由西到东 O₃ 污染逐渐加重趋势,两季 O₃ MDA8 浓度均值自西向东分别为 94、110、120 和 121 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. 河南省北部(新乡、焦作和安阳等)人口居住相对集中,工业多以化学原料制造业、黑色金属冶炼和压延加工业为主导行业, O₃ 前体物排放量较大. 豫南城市多发展农业, O₃ 前体物排放量较小,其中信阳多山地,居民生产活动集中在城市东北部,区域 O₃ 污染空间差异明显. 此外,河南省北部处于温带季风气候,南部则处于亚热带季风气候,夏季降雨丰沛,相对湿度较高,不利于 O₃ 的生成和积累.

进一步利用空间差异率 COD 值分析不同城市间 O₃ 污染程度差异,如图 6 所示. 可以看出,与全省相比,位于河南省西南部城市(南阳、三门峡、驻马店和信阳)与全省平均 COD 值差异相对较大,东北

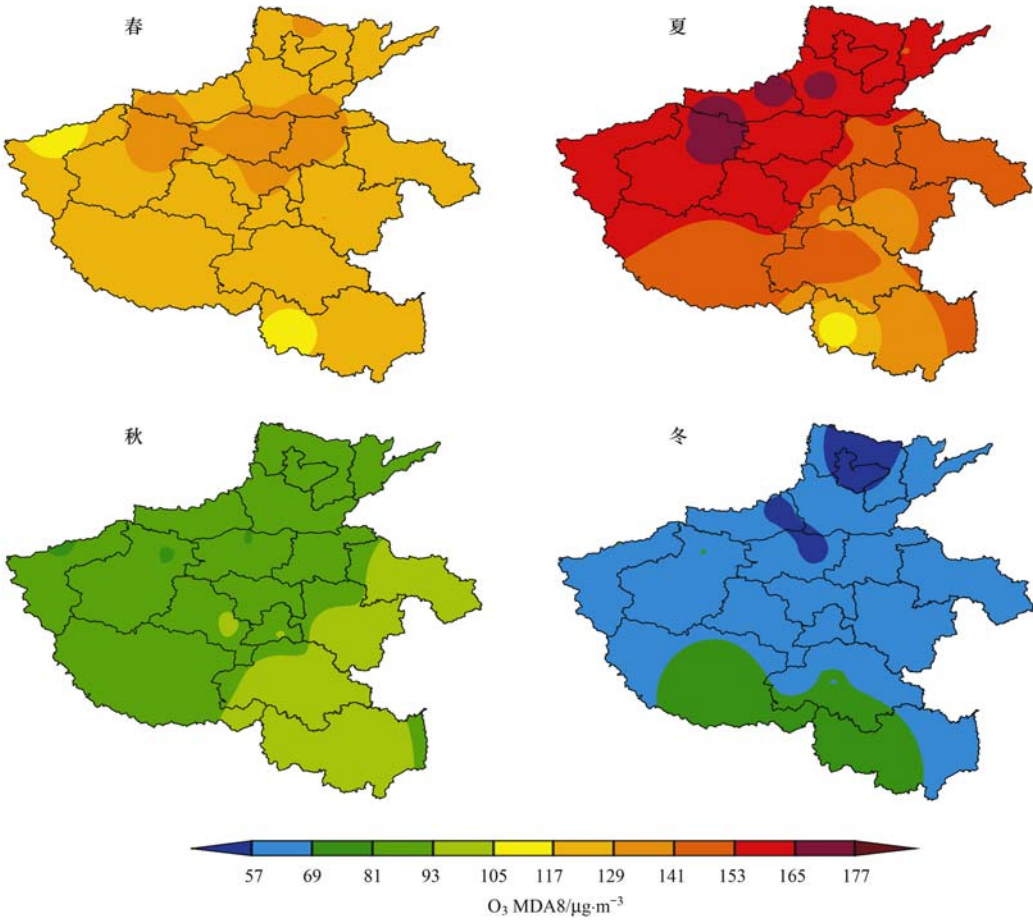


图 5 河南省 2017 年四季 O₃ MDA8 空间分布

Fig. 5 Spatial distribution of O₃ MDA8 during four seasons in Henan Province, 2017

及中部城市 COD 值相近且相对较小。两两城市相比,信阳、鹤壁、安阳和焦作的 COD 值与其他城市差异相对较大。其中,信阳位于河南省最南部,属于亚热带季风气候向暖温带过渡气候,又位于淮河上游,丰富的降水对 O₃ 污染起到很好缓解作用,使得信阳 O₃ 污染程度较轻。而鹤壁、安阳和焦作位于河

南省北部,属于典型重工业城市,前体物 NO_x 和 VOCs 排放量高,加之特殊地理位置,易受京津冀城市群和山东半岛城市群等周边地区 O₃ 及其前体物近距离输送影响,且不临海不受海陆风影响,污染物易累积^[20],使得 O₃ 污染相比于其他城市较重且有较大差异。

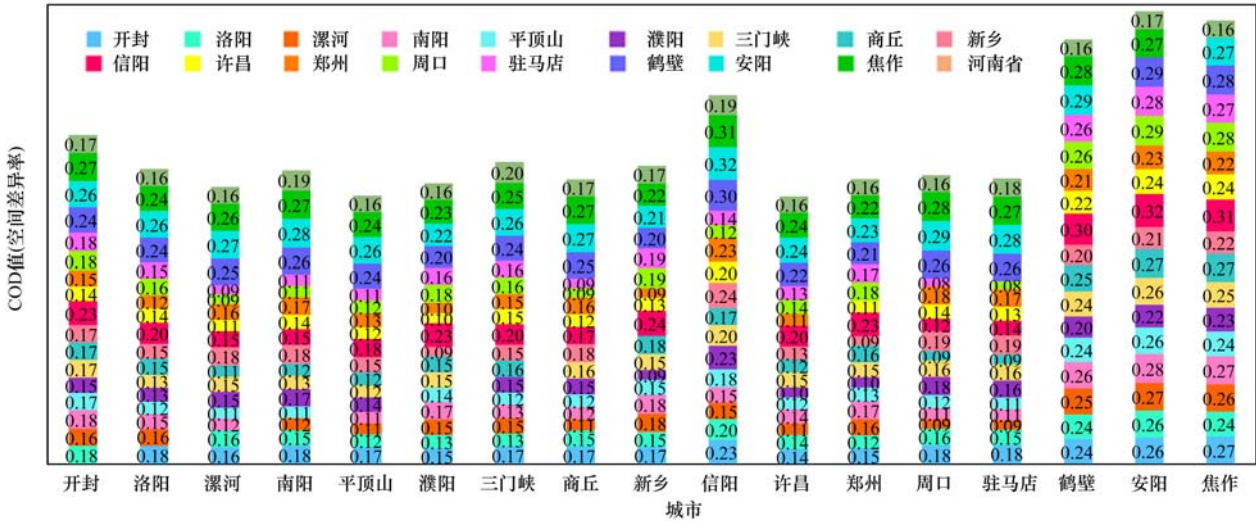


图 6 2017 年河南省各市间臭氧 COD 值

Fig. 6 O₃ COD values among cities in Henan Province, 2017

2.2 O₃ 与其他污染物的关系

2.2.1 O₃ 与颗粒物

图 7 表明,颗粒物与 O₃ MDA8 超标天数呈显著负相关关系,1、2、3、11 和 12 月颗粒物超标天数较多,同期 O₃ MDA8 未出现超标情况,6~9 月颗粒物超标天数较少,而 O₃ MDA8 达到峰值,这与大气污染的季节特征相关联.在一定条件下,大气颗粒物浓度的增加使得气溶胶光学厚度增加,进而导致 O₃ 的光化学生成率被削弱,出现浓度下降的现象^[6].其次,大气颗粒物浓度增加,发生在其表面的非均相化学过程也会对 O₃ 浓度产生影响^[5].

2.2.2 O₃ 与其前体物 CO、NO₂

图 8 可以看出,O₃ 与 CO、NO₂ 小时浓度呈显著负相关关系.四季 O₃ 小时浓度最高值呈现出与 O₃ MDA8 月均浓度相同的季节变化规律,CO 和 NO₂ 则完全相反,这与 Meng 等^[21] 研究结果有相同的季节变化规律.随着夜晚到来光照减弱,O₃ 小时浓度逐渐降低,早晨 08:00 降至最低,同期 CO 和 NO₂ 小时浓度达到第一个峰值;随着日出后太阳辐射增强,光化学反应速率增加,O₃ 小时浓度逐渐升高,午后 15:00 达到峰值,由于光化学反应的消耗,CO 和 NO₂ 小时浓度降至最低;随后光照减弱,O₃ 小时浓度降低,CO 和 NO₂ 小时浓度回升,晚 21:00 达到第二个峰值,这与闫雨龙^[22] 等对太原市城区 O₃ 日变化特征研究结果相似.一般情况下,近地面 O₃ 没有

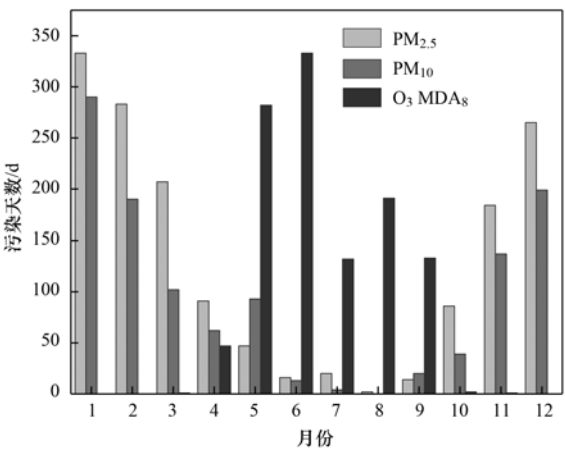


图 7 河南省 2017 年 PM_{2.5}、PM₁₀ 和 O₃ MDA8 超标天数月变化

Fig. 7 Monthly distribution of above-standard days of PM_{2.5}, PM₁₀, and O₃ MDA8 in Henan Province, 2017

直接排放源,属于二次大气污染物^[23],主要来源于光化学反应的生成与平流层 O₃ 向对流层的输送,后者相对于前者贡献较少^[24].因此,O₃ 与前体物的昼间光化学反应是其浓度变化的基础.

2.3 气象因子和 O₃ 污染分析

2.3.1 日照时长

整体来看(图 9),河南省日照时长呈现南高北低、东高西低的空间分布特点,春夏较长,秋冬较短.洛阳与焦作两市相邻处以及新乡日照时间较长,信阳日照时长则呈现出东高西低的空间分布特

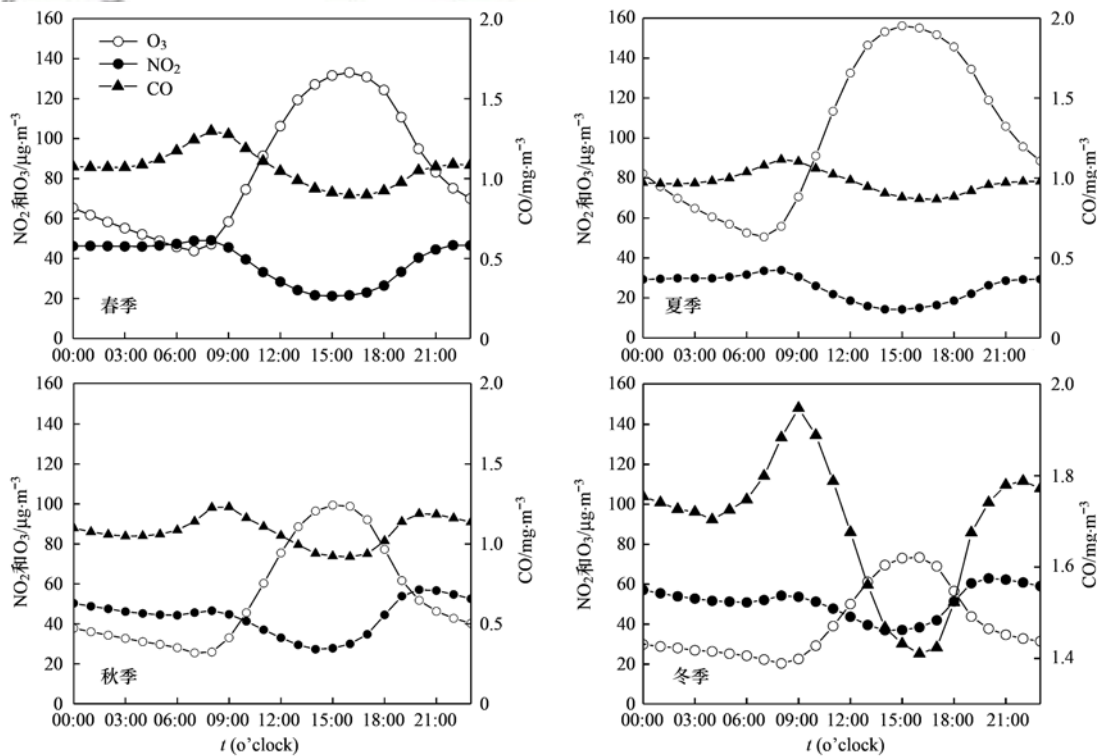


图 8 河南省 2017 年四季 O₃ 与 NO₂、CO 小时浓度日变化曲线

Fig. 8 Diurnal variation of O₃ and NO₂, CO hourly concentrations during four seasons during Henan Province, 2017

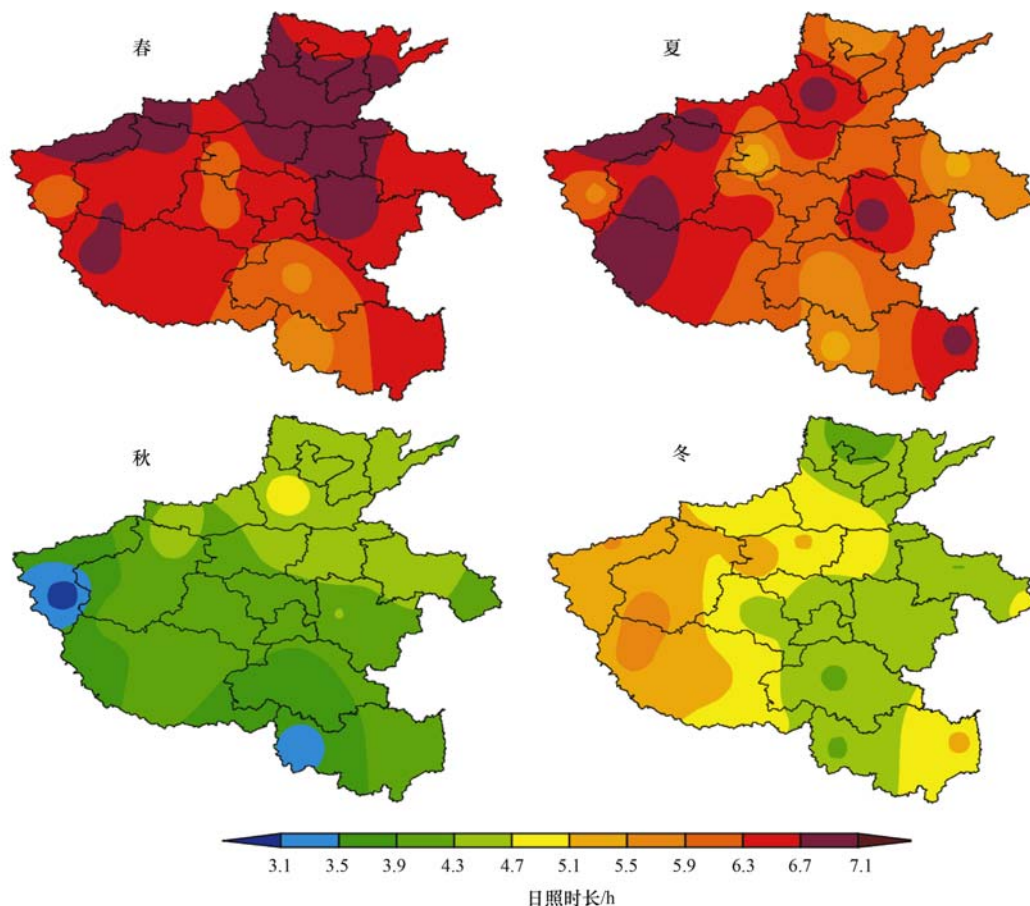


图9 河南省2017年四季日照时长空间分布

Fig. 9 Seasonal spatial distribution of sunshine in Henan Province, 2017

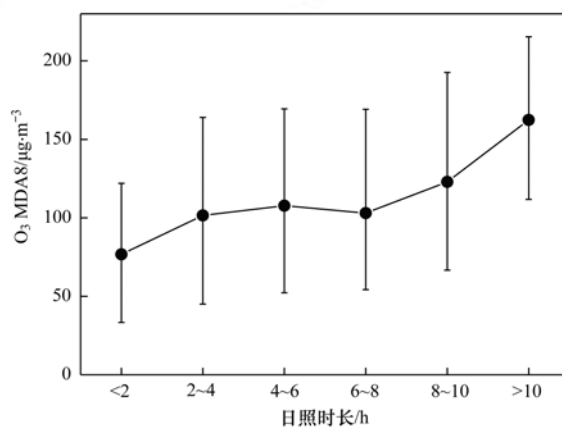
点,这与前述的区域 O_3 污染空间分布特征相一致.

进一步统计分析 12 个地市日照时长与 O_3 MDA8 浓度的 Pearson 相关系数(表 1)以及河南省不同日照时长下 O_3 MDA8 浓度分布(图 10),可以看出: O_3 MDA8 浓度与日照时长呈显著正相关关系.西北部(安阳、新乡、洛阳和三门峡)夏季 O_3 MDA8 浓度与日照时长相关性最高,相关系数 R 为 0.65~0.72;南部(信阳和驻马店)则相反,相关系数 R 分别为 0.26 和 0.33.当日照时长小于 2 h 时, O_3 MDA8 浓度最低,为 $77 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,当日照时长大于 10 h 时, O_3 MDA8 浓度最高,为 $162 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$.日照时间增长为光化学反应提供了良好的反应条件,光化学反应速率大大提高,进而为 O_3 的生成提供了条件.

2.3.2 气温

图 11 可以看出,河南省冬夏温差较大,春秋气温相当.夏季气温较高在 20°C 以上,冬季气温则普遍较低,在 10°C 以下.就秋冬季而言,河南省气温呈东高西低,南高北低的空间分布特征.

气温是影响 O_3 MDA8 浓度的重要因素.从表 2 和图 12 可以看出,气温与 O_3 MDA8 浓度正相关性

图10 河南省2017年不同日均日照时长下 O_3 MDA8 浓度分布Fig. 10 Concentration of O_3 MDA8 in average daily sunshine hours in Henan Province, 2017

显著.各市 O_3 MDA8 浓度与气温相关性春秋季高于夏冬季,西北及中部城市高于南部城市.当气温大于 10°C 时, O_3 MDA8 浓度呈显著上升趋势, $25^\circ\text{C} \sim 30^\circ\text{C}$ 时达到最高值 $168 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,但在 $30^\circ\text{C} \sim 35^\circ\text{C}$ 时, O_3 MDA8 浓度稍有降低,最高为 $166 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,此时正值夏季,二者相关性较低,同时也说明高温是影响 O_3 MDA8 浓度重要但并不是唯一的气象因子,这

表 1 不同季节、不同城市 O₃ MDA8 和日照时长的 Pearson 相关系数 ($P < 0.05$)

Table 1 Pearson's correlation coefficients between O ₃ MDA8 and sunshine hours during different seasons and in various cities ($P < 0.05$)									
城市	春季	夏季	秋季	冬季	城市	春季	夏季	秋季	冬季
开封	0.62	0.52	0.23	0.51	信阳	0.73	0.26	0.69	0.65
洛阳	0.53	0.65	0.59	0.50	许昌	0.58	0.52	0.46	0.60
南阳	0.59	0.53	0.50	0.54	周口	0.71	0.61	0.52	0.66
平顶山	0.59	0.55	0.55	0.59	驻马店	0.62	0.33	0.60	0.66
三门峡	0.57	0.65	0.40	0.34	安阳	0.55	0.71	0.43	0.45
商丘	0.62	0.48	0.46	0.60	河南	0.63	0.65	0.55	0.65
新乡	0.58	0.72	0.58	0.55					

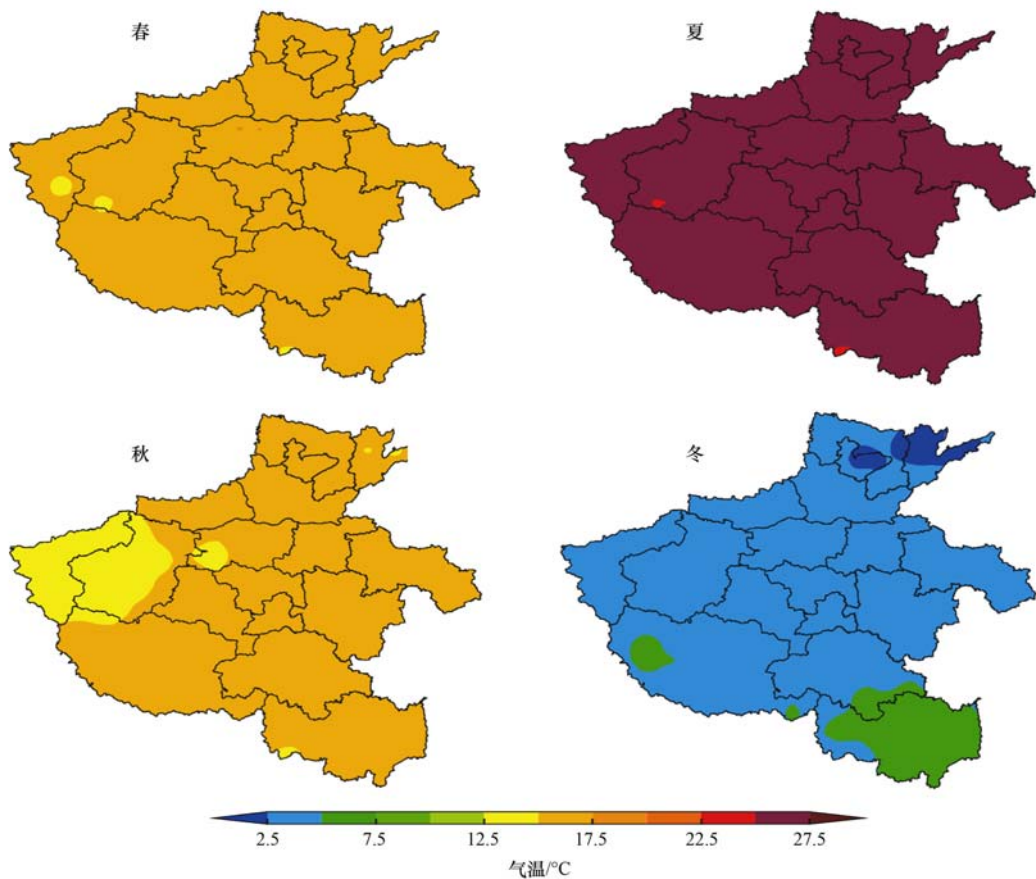


图 11 河南省 2017 年四季气温空间分布

Fig. 11 Seasonal spatial distribution of temperature in Henan Province, 2017

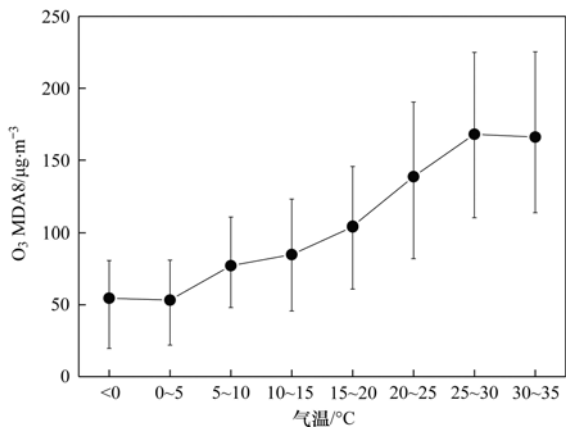


图 12 河南省 2017 年日均气温下 O₃ MDA8 浓度分布

Fig. 12 Concentration of O₃ MDA8 at average daily temperatures in Henan Province, 2017

可能是北方夏季高温天气时,常伴随强降水、高湿度等天气^[12],对 O₃ 的浓度水平产生影响.

2.3.3 降雨

图 13 可以看出,河南省降雨集中在夏秋两季,夏季最大.河南省东南地区较西北地区降雨量大,尤其集中豫南信阳.降雨时易出现云量增多,风速增强等天气现象,不利于臭氧生成和积累,同时,污染物易发生湿沉降从大气中清除,这也解释了信阳市 O₃ 污染程度较轻的现象^[25].

表 3 可以看出,春秋季河南省多数城市 O₃ MDA8 浓度与降雨量无显著相关性,夏季相关性较高,相关系数 R 为 -0.49 . 结合图 14,就夏季(6、7 和 8 月)而言,随着降雨量的增加,O₃ MDA8 浓度整

表 2 不同季节、不同城市 O₃ MDA8 和气温的 Pearson 相关系数 ($P < 0.05$)

Table 2 Pearson's correlation coefficients between O₃ MDA8 and temperatures during different seasons and in various cities ($P < 0.05$)

城市	春季	夏季	秋季	冬季	城市	春季	夏季	秋季	冬季
开封	0.84	0.24	0.69	0.51	信阳	0.69	0.31	0.55	0.60
洛阳	0.84	0.69	0.74	0.65	许昌	0.76	—	0.68	0.51
漯河	0.79	0.21	0.65	0.51	郑州	0.84	0.50	0.75	0.56
南阳	0.77	0.38	0.70	0.37	周口	0.80	0.32	0.65	0.67
平顶山	0.80	0.44	0.74	0.62	驻马店	0.78	—	0.65	0.53
濮阳	0.85	0.46	0.73	0.53	鹤壁	0.78	0.47	0.74	—
三门峡	0.84	0.60	0.76	0.50	安阳	0.84	0.46	0.77	0.28
商丘	0.74	0.22	0.69	0.45	焦作	0.69	0.57	0.74	0.33
新乡	0.81	0.47	0.75	0.56	河南省	0.84	0.39	0.76	0.55

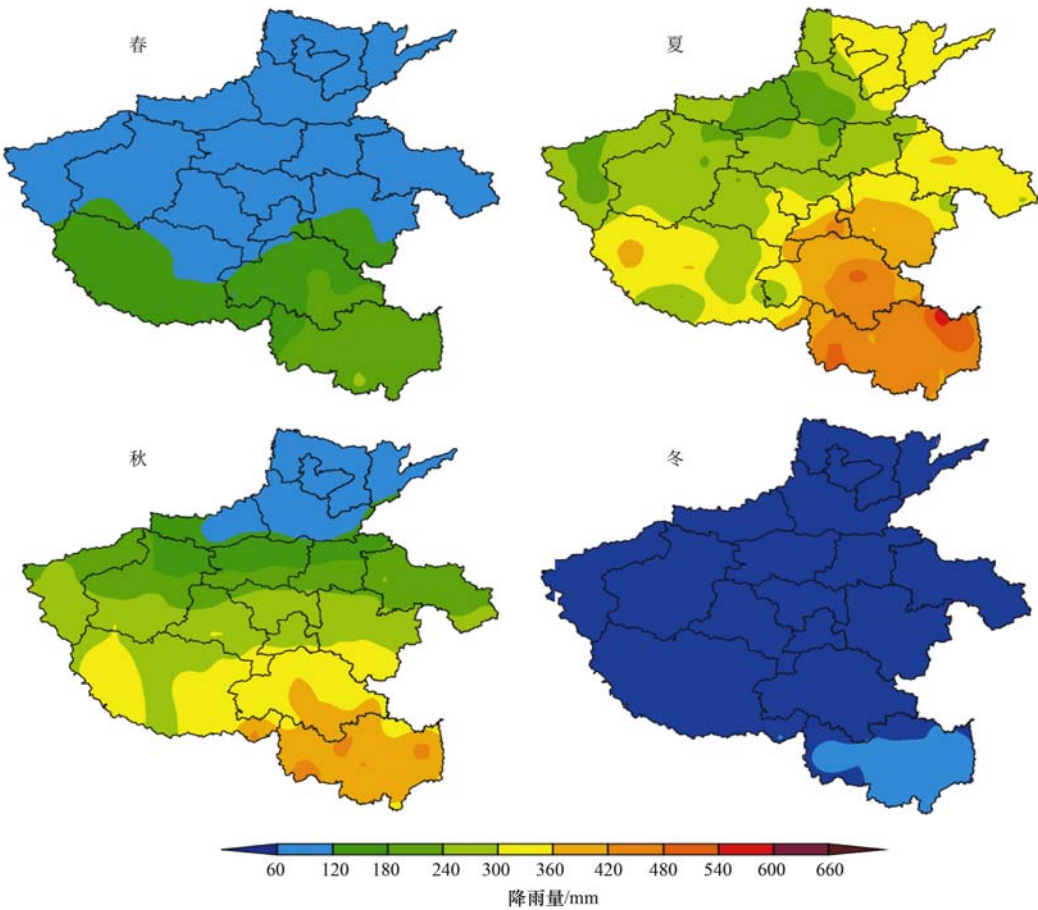


图 13 河南省 2017 年四季降雨量空间分布

Fig. 13 Seasonal spatial distribution of rainfall in Henan Province, 2017

体呈下降趋势. 17 个城市监测总天数中,非降雨天气为 992 d,占比 70.3%,此时 O₃ MDA8 浓度最高,为 168 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$.大暴雨(日降雨 $> 100\text{ mm}$)天气仅占 0.7%,此时 O₃ 污染最轻,为 94 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$.这是由于河南省地处黄淮流域,夏季降雨丰沛,有利于大气污染物的去除.但当出现暴雨(日降雨 50 ~ 100 mm)天气时,O₃ MDA8 浓度略有升高,这可能是由于在强对流天气下,近地面的 O₃ 来自于平流层中 O₃ 向下传输,导致地面监测到的 O₃ 小时浓度升高^[26].

2.3.4 能见度

图 15 可以看出,河南省秋冬能见度较低,春夏则较高.整体来看西北部高于东南部,高值区出现在鹤壁和安阳交界处.能见度与 O₃ MDA8 浓度表现出良好的正相关性,能见度高时,往往是天气晴朗,太阳辐射较强,高温低湿的气象条件,有利于大气光化学反应,使得 O₃ 小时浓度增加^[27].

表 4 可看出,春冬季河南省多数城市的 O₃ MDA8 浓度与能见度呈正相关性,表现为春季南部城市(南阳、信阳和驻马店)相关性最高,相关系数

表 3 不同季节、不同城市 O₃ MDA8 和降雨量的 Pearson 相关系数 ($P < 0.05$)

Table 3 Pearson's correlation coefficients between O ₃ MDA8 and rainfall during different seasons and in various cities ($P < 0.05$)									
城市	春季	夏季	秋季	冬季	城市	春季	夏季	秋季	冬季
开封	-0.26	—	—	-0.24	信阳	—	-0.38	-0.26	-0.36
洛阳	—	-0.36	—	-0.29	许昌	-0.27	-0.34	—	—
漯河	—	-0.23	—	-0.35	郑州	-0.09	-0.47	—	-0.28
南阳	-0.29	-0.27	—	—	周口	—	-0.33	-0.24	-0.32
平顶山	—	-0.40	—	-0.31	驻马店	-0.21	-0.35	-0.26	-0.30
濮阳	-0.11	—	—	-0.25	鹤壁	—	-0.28	—	—
三门峡	-0.30	-0.76	—	—	安阳	—	-0.35	—	-0.23
商丘	—	-0.39	—	-0.25	焦作	—	-0.32	—	-0.21
新乡	—	-0.23	—	-0.25	河南省	—	-0.49	—	-0.33

表 4 不同季节、不同城市 O₃ MDA8 和能见度的 Pearson 相关系数 ($P < 0.05$)

Table 4 Pearson's correlation coefficients between O ₃ MDA8 and visibility during different seasons and in various cities ($P < 0.05$)									
城市	春季	夏季	秋季	冬季	城市	春季	夏季	秋季	冬季
开封	—	—	—	—	信阳	0.70	—	0.32	0.50
洛阳	0.27	0.22	—	0.25	许昌	0.38	—	—	0.25
漯河	0.45	—	—	0.30	郑州	—	—	—	0.28
南阳	0.49	—	—	—	周口	0.55	—	—	0.28
平顶山	0.48	—	0.23	0.36	驻马店	0.45	—	—	0.32
濮阳	—	—	—	0.30	鹤壁	—	0.33	—	0.41
三门峡	0.30	—	—	—	安阳	0.58	0.58	0.45	0.50
商丘	0.31	—	—	0.21	焦作	—	0.34	—	0.42
新乡	—	—	—	0.32	河南省	0.36	—	—	0.3

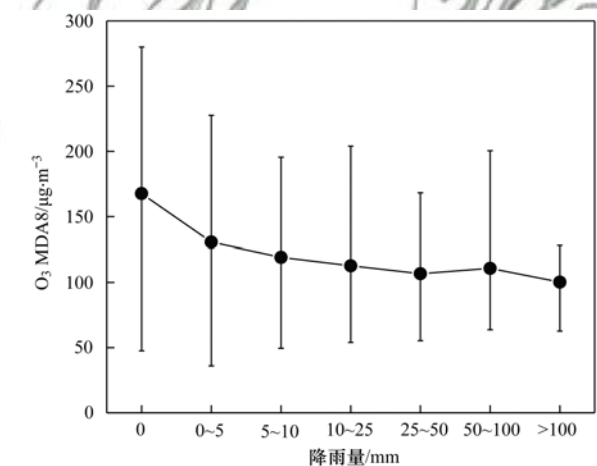


图 14 河南省 2017 年夏季日降雨量下 O₃ MDA8 浓度分布
Fig. 14 Concentration of O₃ MDA8 at average daily rainfall during summer in Henan Province, 2017

R 为 0.49 ~ 0.70; 冬季北部城市(安阳、鹤壁、濮阳、新乡和焦作)相关性最高, 相关系数 R 为 0.30 ~ 0.50. 结合图 16, 在 0 ~ 10 km 范围内, O₃ MDA8 浓度受能见度影响显著, 随能见度的增加而明显增加.

大于 10 km 时, 随能见度的增加, O₃ MDA8 浓度增加趋势变缓. 0 ~ 2 km 时, O₃ MDA8 浓度最低, 为 $38 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 在 18 km 达到最大, 之后随着能见度增加, O₃ MDA8 浓度有微小的回落. 高浓度颗粒物是造成低能见度的主要原因^[28], 能见度较低(0 ~ 10 km)时, O₃ 污染随能见度的增加而加重. 高能见度的情况下颗粒物浓度较低, O₃ MDA8 浓度的变化受其它气象条件影响较大, 与能见度相关性较低.

2.3.5 相对湿度

图 17 可以看出, 受降雨的影响, 河南省相对湿

表 5 不同季节、不同城市 O₃ MDA8 和相对湿度的 Pearson 相关系数 ($P < 0.05$)

Table 5 Pearson's correlation coefficients between O ₃ MDA8 and relative humidity during different seasons and in various cities ($P < 0.05$)									
城市	春季	夏季	秋季	冬季	城市	春季	夏季	秋季	冬季
开封	—	-0.52	—	-0.41	信阳	-0.64	-0.50	-0.30	-0.66
洛阳	-0.34	-0.72	—	-0.51	许昌	-0.26	-0.79	—	-0.32
漯河	-0.39	-0.73	—	-0.44	郑州	-0.29	-0.74	—	-0.50
南阳	-0.49	-0.77	—	—	周口	-0.30	-0.84	—	-0.52
平顶山	-0.32	-0.75	—	-0.48	驻马店	-0.48	-0.60	—	-0.40
濮阳	—	-0.62	—	-0.49	鹤壁	—	-0.63	—	-0.49
三门峡	-0.30	-0.76	—	-0.25	安阳	—	-0.72	—	-0.56
商丘	-0.21	-0.82	—	-0.44	焦作	-0.21	-0.70	—	-0.53
新乡	-0.24	-0.69	—	-0.56	河南省	-0.32	-0.84	—	-0.53

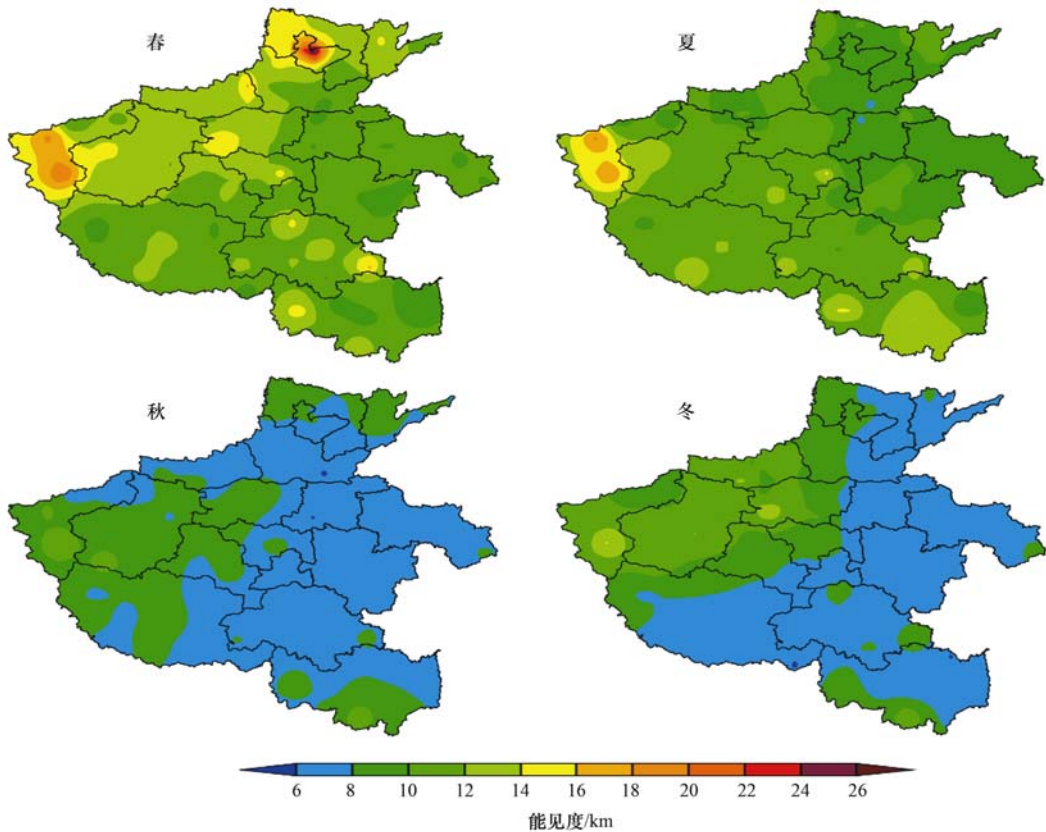


图 15 河南省 2017 年四季能见度空间分布
Fig. 15 Seasonal spatial distribution of visibility in Henan Province, 2017

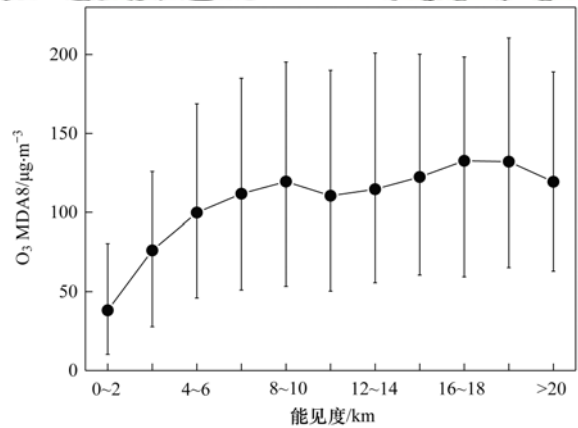


图 16 河南省 2017 年日均能见度下 O₃ MDA8 浓度分布
Fig. 16 Concentration of O₃ MDA8 in average daily visibility in Henan Province, 2017

度呈现由西北向东南逐渐升高的空间分布特征,高值区出现在南阳、信阳等豫南地区,与河南省 O₃ 污染空间分布特征呈相反的趋势。

表 5 可以看出,河南省春、夏和冬季 O₃ MDA8 浓度与相对湿度均呈显著性负相关,夏季相关系数 R 最高,为 -0.84 。结合图 18,在 $60\% \sim 70\%$ 区间 O₃ MDA8 浓度最高,为 $127 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,这与曹庭伟等^[4]对成渝城市群 O₃ MDA8 浓度和 O₃ 超标率受相对湿度影响的规律相符。最低值出现在 $\text{RH} > 90\%$ 时,占 7.4% ,此时 O₃ MDA8 浓度为 $62 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 。高相对湿度使大气中水汽增加,有利于湿清除的形成,从而使 O₃ 污染降低^[28]。

2.3.6 风速和风向

图19可以看出,河南省春冬风速较大,夏秋

表 6 不同季节、不同城市 O₃ MDA8 和风速的 Pearson 相关系数 ($P < 0.05$)

Table 6 Pearson's correlation coefficients between O ₃ MDA8 and wind speeds during different seasons and in various cities ($P < 0.05$)									
城市	春季	夏季	秋季	冬季	城市	春季	夏季	秋季	冬季
开封	—	-0.28	-0.24	—	信阳	—	-0.48	-0.31	—
洛阳	—	—	—	—	许昌	—	-0.39	-0.48	—
漯河	—	-0.38	-0.36	—	郑州	—	—	—	0.34
南阳	—	-0.31	—	—	周口	—	—	—	—
平顶山	—	-0.33	-0.27	—	驻马店	—	-0.47	-0.38	—
濮阳	—	—	-0.33	0.32	鹤壁	—	—	-0.43	—
三门峡	—	—	—	—	安阳	0.25	—	—	0.41
商丘	—	-0.22	-0.35	—	焦作	—	—	—	—
新乡	—	-0.29	-0.21	—	河南省	—	-0.35	-0.35	—

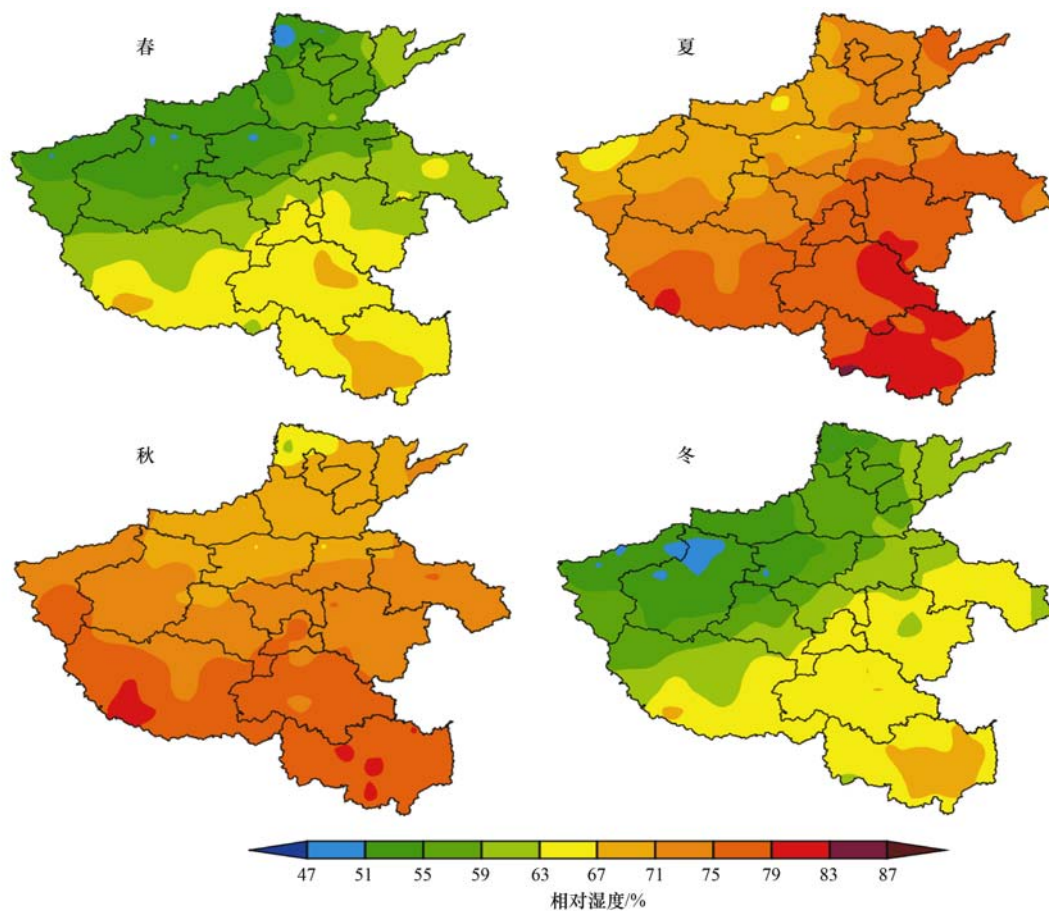


图 17 河南省 2017 年四季相对湿度空间分布
Fig. 17 Seasonal spatial distribution of relative humidity in Henan Province, 2017

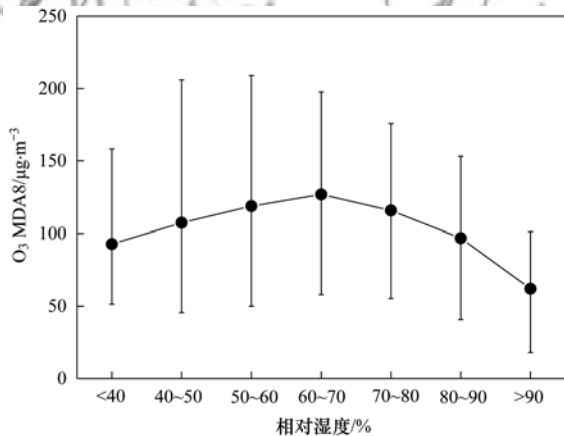


图 18 河南省 2017 年日均相对湿度下 O₃ MDA8 浓度分布
Fig. 18 Concentration of O₃ MDA8 at average daily relative humidity in Henan Province, 2017

较小,全年风速主要范围为 $1.4\sim2.3\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$.春冬风速较大地区为豫北安阳和豫西洛阳等,主要范围为 $2.3\sim2.9\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$.风速对 O_3 污染的影响主要是迁移扩散作用,可将 O_3 从污染严重的地区向下风向输送.当风速显著增强时,水平方向上的传输作用会对臭氧及其前体物的浓度进行稀释^[29].同时风向对 O_3 及其前体物浓度也有重要影响,分析气象资料发现,2017年河南省夏季盛行偏南风(40.5%),其次

为偏东风(33.7%).从空间分布上看,与夏季河南省西北部较东南部 O_3 污染严重较一致.

表6可以看出,河南省夏秋季 O_3 MDA8浓度与风速为负相关,其中豫南信阳和驻马店相关性较高,相关系数 R 分别为 -0.48 、 -0.31 和 -0.47 、 -0.38 .结合图20,当风速小于 $2\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ 时, O_3 MDA8浓度无明显变化,在 $2\sim2.5\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ 范围内, O_3 MDA8浓度最高,为 $110\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$.当风速大于 $3\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ 时, O_3 MDA8浓度开始显著下降.在一定范围内,风速对 O_3 MDA8浓度的影响主要是水平扩散和上下湍流作用,随着风速增大,水平方向在增强对污染物的稀释作用的同时会引起上层臭氧向下传输^[30].当风速显著增强时($4\sim4.5\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$), O_3 MDA8浓度最低,为 $75\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$.

3 结论

(1) 河南省 O_3 污染开始凸显,2017年 O_3 MDA8年均值为 $108\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,呈现出夏季($152\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)>春季($126\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)>秋季($89\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)>冬季($64\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)的季节变化特征.北部 O_3 污染较南部严重,信阳、鹤壁、安阳和焦作与其它地市

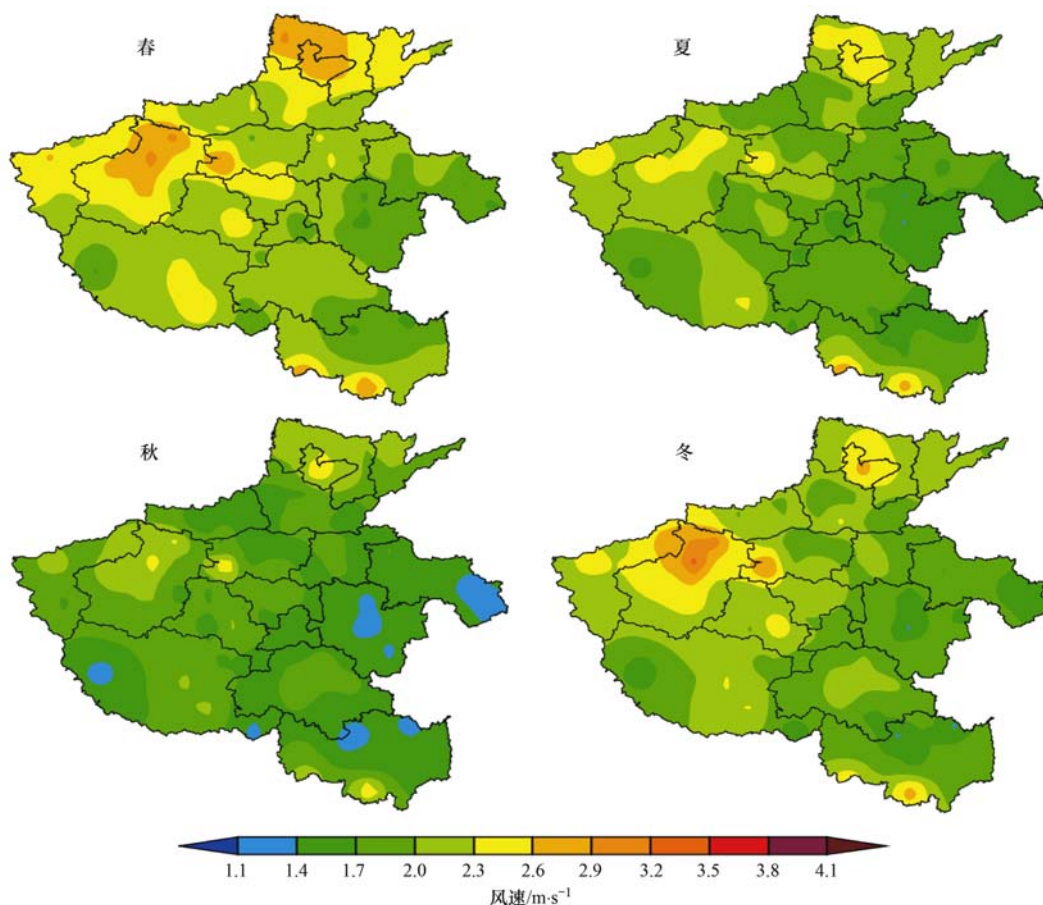
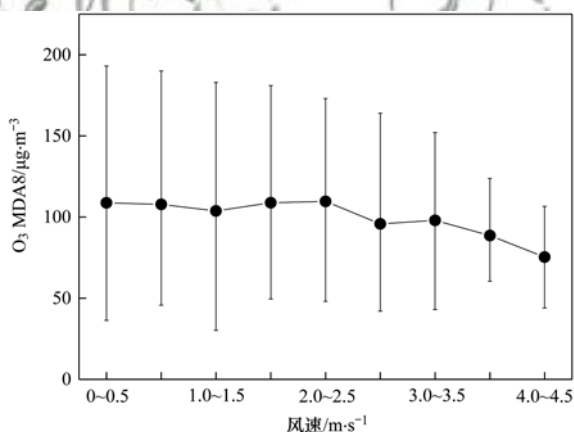


图 19 河南省 2017 年四季风速空间分布

Fig. 19 Seasonal spatial distribution of wind speed in Henan Province, 2017

图 20 2017 年河南省日均风速下 O₃ MDA8 浓度Fig. 20 Concentration of O₃ MDA8 at average daily wind speeds in Henan Province, 2017

污染程度差别较大. 17 个城市 O₃ MDA8 超标总天数为 1 122 d, 占环境空气质量超标总天数的 27.8%, O₃ MDA8 浓度和超标天数均在 6 月最高.

(2) O₃ MDA8 与 PM_{2.5} 和 PM₁₀ 的月均浓度呈显著负相关, 四季 O₃ 小时浓度峰值出现在午后 15:00, 谷值在早晨 08:00.

(3) 不同季节、不同城市 O₃ MDA8 与气象因子相关性不同. 特别是, 西北部城市夏季 O₃

MDA8 浓度与日照时长相关性最高, 南部则相反; O₃ MDA8 浓度与气温相关性春秋季大于夏冬季, 西北及中部城市高于南部; 春季南部城市 O₃ MDA8 浓度与能见度相关性最高, 冬季北部城市相关性最高.

参考文献:

- [1] Li X B, Wang D S, Lu Q C, *et al.* Three-dimensional investigation of ozone pollution in the lower troposphere using an unmanned aerial vehicle platform[J]. *Environmental Pollution*, 2017, **224**: 107-116.
- [2] Pochanart P, Akimoto H, Kinjo Y, *et al.* Surface ozone at four remote island sites and the preliminary assessment of the exceedances of its critical level in Japan[J]. *Atmospheric Environment*, 2002, **36**(26): 4235-4250.
- [3] 韩梦鑫, 帕丽达·牙合甫, 王镜然. 乌鲁木齐市近地面 O₃ 与前体物及颗粒物相关性分析[J]. *环境保护科学*, 2018, **44**(4): 21-26.
- [4] Han M X, Pa L D, Wang J R. Correlation analysis of surface ozone with precursors and particles in Urumqi[J]. *Environmental Protection Science*, 2018, **44**(4): 21-26.
- [5] 曹庭伟, 吴锴, 康平, 等. 成渝城市群臭氧污染特征及影响因素分析[J]. *环境科学学报*, 2018, **38**(4): 1275-1284.
- [6] Cao T W, Wu K, Kang P, *et al.* Study on ozone pollution characteristics and meteorological cause of Chengdu-Chongqing urban agglomeration[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2018, **38**(4): 1275-1284.
- [7] 易睿, 王亚林, 张殷俊, 等. 长江三角洲地区城市臭氧污染

- 特征与影响因素分析[J]. 环境科学学报, 2015, **35**(8): 2370-2377.
- Yi R, Wang Y L, Zhang Y J, *et al.* Pollution characteristics and influence factors of ozone in Yangtze River delta [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2015, **35**(8): 2370-2377.
- [6] Zheng J Y, Zhong L J, Wang T, *et al.* Ground-level ozone in the Pearl River Delta region: analysis of data from a recently established regional air quality monitoring network [J]. *Atmospheric Environment*, 2010, **44**(6): 814-823.
- [7] 程麟钧, 王帅, 宫正宇, 等. 京津冀区域臭氧污染趋势及时空分布特征[J]. 中国环境监测, 2017, **33**(1): 14-21.
- Cheng L J, Wang S, Gong Z Y, *et al.* Pollution trends of ozone and its characteristics of temporal and spatial distribution in Beijing-Tianjin-Hebei region [J]. *Environmental Monitoring in China*, 2017, **33**(1): 14-21.
- [8] 李昌龙, 尚静, 王静怡, 等. 徐州市区 O₃ 浓度与前体物的变化特征分析[J]. 环境科技, 2017, **30**(2): 31-35.
- Li C L, Shang J, Wang J Y, *et al.* Analysis on variation characteristics of ozone concentration and its precursors in urban atmosphere of Xuzhou [J]. *Environmental Science and Technology*, 2017, **30**(2): 31-35.
- [9] 叶芳. 北京市地面臭氧和前体物浓度变化规律及气象因子影响机制分析[D]. 南京: 南京信息工程大学, 2008.
- Ye F. Variation of surface ozone and its precursors in Beijing and the effect of meteorological parameters [D]. Nanjing: Nanjing University of Information Science and Technology, 2008.
- [10] Xu J, Ma J Z, Zhang X L, *et al.* Measurements of ozone and its precursors in Beijing during summertime: impact of urban plumes on ozone pollution in downwind rural areas [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2011, **11**(23): 12241-12252.
- [11] 王占山, 李云婷, 陈添, 等. 北京城区臭氧日变化特征及与前体物的相关性分析[J]. 中国环境科学, 2014, **34**(12): 3001-3008.
- Wang Z S, Li Y T, Chen T, *et al.* Analysis on diurnal variation characteristics of ozone and correlations with its precursors in urban atmosphere of Beijing [J]. *China Environmental Science*, 2014, **34**(12): 3001-3008.
- [12] 赵伟, 高博, 刘明, 等. 气象因素对香港地区臭氧污染的影响[J]. 环境科学, 2019, **40**(1): 55-66.
- Zhao W, Gao B, Liu M, *et al.* Impact of meteorological factors on the ozone pollution in Hong Kong [J]. *Environmental Science*, 2019, **40**(1): 55-66.
- [13] 严茹莎, 陈敏东, 高庆先, 等. 北京夏季典型臭氧污染分布特征及影响因子[J]. 环境科学研究, 2013, **26**(1): 43-49.
- Yan R S, Chen M D, Gao Q X, *et al.* Characteristics of typical ozone pollution distribution and impact factors in Beijing in summer [J]. *Research of Environmental Science*, 2013, **26**(1): 43-49.
- [14] 姚青, 孙玫玲, 刘爱霞. 天津臭氧浓度与气象因素的相关性及其预测方法[J]. 生态环境学报, 2009, **18**(6): 2206-2210.
- Yao Q, Sun M L, Liu A X, *et al.* Analysis and prediction of surface ozone concentration and related meteorological factors in summer in Tianjin [J]. *Ecology and Environmental Sciences*, 2009, **18**(6): 2206-2210.
- [15] HJ 633-2013, 环境空气质量评价技术规范(试行)[S].
- [16] GB 3095-2012, 环境空气质量标准[S].
- [17] HJ 633-2012, 环境空气质量指数(AQI)技术规定(试行)[S].
- [18] Jiang N, Dong Z, Xu Y Q, *et al.* Characterization of PM₁₀ and PM_{2.5} source profiles of fugitive dust in Zhengzhou, China [J]. *Aerosol and Air Quality Research*, 2018, **18**(4): 314-329.
- [19] 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.
- [20] 吴锴, 康平, 于雷, 等. 2015—2016 年中国城市臭氧浓度时空变化规律研究[J]. 环境科学学报, 2018, **38**(6): 2179-2190.
- Wu K, Kang P, Yu L, *et al.* Pollution status and spatio-temporal variations of ozone in China during 2015—2016 [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2018, **38**(6): 2179-2190.
- [21] Meng Z Y, Xu X B, Wang T, *et al.* Ambient sulfur dioxide, nitrogen dioxide, and ammonia at ten background and rural sites in China during 2007-2008 [J]. *Atmospheric Environment*, 2010, **44**(21-22): 2625-2631.
- [22] 闫雨龙, 温彦平, 冯新宇, 等. 太原市城区臭氧变化特征及影响因素[J]. 环境化学, 2016, **35**(11): 2261-2268.
- Yan Y L, Wen Y P, Feng X Y, *et al.* Variation and the influence factors of ozone in urban area in Taiyuan [J]. *Environmental Chemistry*, 2016, **35**(11): 2261-2268.
- [23] Lin C Y, Wang Z F, Chou C C K, *et al.* A numerical study of an autumn high ozone episode over southwestern Taiwan [J]. *Atmospheric Environment*, 2007, **41**(17): 3684-3701.
- [24] Monks P S. A review of the observations and origins of the spring ozone maximum [J]. *Atmospheric Environment*, 2000, **34**(21): 3545-3561.
- [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] 黄俊, 廖碧婷, 吴兑, 等. 广州近地面臭氧浓度特征及气象影响分析[J]. 环境科学学报, 2018, **38**(1): 23-31.
- Huang J, Liao B T, Wu D, *et al.* Guangzhou ground level ozone concentration characteristics and associated meteorological factors [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2018, **38**(1): 23-31.
- [27] 王闯, 王帅, 杨碧波, 等. 气象条件对沈阳市环境空气臭氧浓度影响研究[J]. 中国环境监测, 2015, **31**(3): 32-37.
- Wang C, Wang S, Yang B B, *et al.* Study of the effect of meteorological conditions on the ambient air ozone concentrations in Shenyang [J]. *Environmental Monitoring in China*, 2015, **31**(3): 32-37.
- [28] 陈义珍, 赵丹, 柴发合, 等. 广州市与北京市大气能见度与颗粒物质量浓度的关系[J]. 中国环境科学, 2010, **30**(7): 967-971.
- Chen Y Z, Zhao D, Chai F H, *et al.* Correlation between the atmospheric visibility and aerosol fine particle concentrations in Guangzhou and Beijing [J]. *China Environmental Science*, 2010, **30**(7): 967-971.
- [29] 李顺姬, 李红, 陈妙, 等. 气象因素对西安市西南城区大气中臭氧及其前体物的影响[J]. 气象与环境学报, 2018, **34**(4): 59-67.
- Li S J, Li H, Chen M, *et al.* Effect of meteorological parameters on ozone and its precursors in the southwest urban area of Xi'an [J]. *Journal of Meteorology and Environment*, 2018, **34**(4): 59-67.
- [30] 徐锟, 刘志红, 何沐全, 等. 成都市夏季近地面臭氧污染气象特征[J]. 中国环境监测, 2018, **34**(5): 36-45.
- Xu K, Liu Z H, He M Q, *et al.* Meteorological characteristics of O₃ pollution near the ground in summer of Chengdu [J]. *Environmental Monitoring in China*, 2018, **34**(5): 36-45.

CONTENTS

Influencing Factors of Long-term Variations on Gridded PM _{2.5} of Typical Regions in China Based on GAM Model	NAN Yang, ZHANG Qian-qian, ZHANG Bi-hui (499)
Gridded Atmospheric Emission Inventory of PCDD/Fs in China	CHEN Lu-lu, HUANG Tao, CHEN Kai-jie, <i>et al.</i> (510)
Spatio-Temporal Variations and Source Apportionment of Carbonaceous Species in PM _{2.5} Across Multiple Sampling Locations in the Chengdu Plain	SHI Fang-tian, LUO Bin, ZHANG Wei, <i>et al.</i> (520)
Diurnal Variations and Source Apportionment of Water-soluble Ions in PM _{2.5} During Winter in Nanjing Jiangbei New Area	QIU Chen-chen, YU Xing-na, DING Cheng, <i>et al.</i> (529)
Characterization, Seasonal Variation, and Source Apportionments of Particulate Amines (PM _{2.5}) in Northern Suburb of Nanjing	LI Xu-jie, SHI Xiao-wen, MA Yan, <i>et al.</i> (537)
Pollution Characteristics and Source Apportionment of <i>n</i> -Alkanes and PAHs in Summertime PM _{2.5} at Background Site of Yangtze River Delta	XUE Guo-yan, WANG Ge-hui, WU Can, <i>et al.</i> (554)
Source Apportionment and Health Risk Assessment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in PM _{2.5} in Changchun City, Autumn of 2017	ZHANG Yi-xuan, CAO Fang, ZHENG Han, <i>et al.</i> (564)
Heavy Pollution Characteristics and Assessment of PM _{2.5} Predicted Model Results in Beijing-Tianjin-Hebei Region and Surrounding Areas During November 23 to December 4, 2018	ZHU Yuan-yuan, GAO Yu-xiao, CHAI Wen-xuan, <i>et al.</i> (574)
Analysis of Characteristics and Meteorological Influence Factors of Ozone Pollution in Henan Province	QI Yan-jie, YU Shi-jie, YANG Jian, <i>et al.</i> (587)
Spatio-Temporal Distribution and Variation Characteristics of Aerosol Optical Properties in Henan Province	ZHANG Rui-fang, YU Xing-na (600)
Analysis of Water Soluble Organic Aerosol in Spring PM _{2.5} with Soot Particle Aerosol Mass Spectrometry (SP-AMS)	HUANG Wen-qian, CHEN Yan-tong, LI Xu-dong, <i>et al.</i> (609)
Temporal Evolution and Main Influencing Factors of Black Carbon Aerosol in Nanjing	YANG Xiao-min, SHI Shuang-shuang, ZHANG Chen, <i>et al.</i> (620)
Pollution Characteristics and Ozone Formation Potential of Ambient Volatile Organic Compounds(VOCs) in Summer and Autumn in Different Functional Zones of Lianyungang, China	QIAO Yue-zhen, CHEN Feng, LI Hui-peng, <i>et al.</i> (630)
Operation and Maintenance of Cost-Effective Volatile Organic Compounds Abatement Alternatives	QIANG Ning, SHI Tian-zhe, MIAO Hai-chao (638)
Pollution and Deposition Characteristics of Precipitation and Its Source Apportionment in Xi'an City	DING Cheng, YU Xing-na, HOU Si-yu (647)
Bacterial Diversity and Community Structure Antibiotic-resistant Bacteria in Bioaerosol of Animal Farms	SHA Yun-fei, SUN Xing-bin, XIN Wen-peng, <i>et al.</i> (656)
Vehicle Emission Inventory and Scenario Analysis in Liaoning from 2000 to 2030	JIN Jia-xin, SUN Shi-da, WANG Peng, <i>et al.</i> (665)
VOCs Emission Characteristics of DPF Regeneration in National VI Diesel Engine	QIAN Feng, XUE Chang-xin, XU Xiao-wei, <i>et al.</i> (674)
Characteristics and Significance of Stable Isotopes and Hydrochemistry in Surface Water and Groundwater in Nanxiaohegou Basin	GUO Ya-wen, TIAN Fu-qiang, HU Hong-chang, <i>et al.</i> (682)
Spatio-Temporal Distribution and Risk Assessment of Heavy Metals in Middle and Lower Reaches of Le'an River	YU Yang, LÜ Ya-ning, WANG Wei-jie, <i>et al.</i> (691)
Spatio-temporal Evolution and Relationship of Water Environment Quality and Phytoplankton Community in Wenyu River	ZHU Li-ying, CHEN Yuan-yuan, LIU Jing, <i>et al.</i> (702)
High-Frequency Dynamics of Water Quality and Phytoplankton Community in Inflowing River Mouth of Xin'anjiang Reservoir, China	DA Wen-yi, ZHU Guang-wei, LI Yun-xiang, <i>et al.</i> (713)
Phosphorus Storage Capacity and Loss Risk in Coastal Reed Wetland Surrounding Bohai Sea	SONG Jia-wei, XU Gang, ZHANG Yang, <i>et al.</i> (728)
Spatio-Temporal Variation of Release Flux of Sediment Nitrogen and Phosphorus in High-Risk Period of Algal Bloom in Lake Erhai	LIU Si-ru, ZHAO Ji-dong, XIAO Shang-bin, <i>et al.</i> (734)
Fluorescence Characteristics and Source Analysis of DOM in Snowfall of Xi'an	YANG Yi, HAN Li-yuan, LIU Huan-wu, <i>et al.</i> (743)
Performance Assessment of Permeable Interlocking Concrete Pavement Facility Structure	ZHANG Jia-wei, LIU Yong, JIN Jian-rong, <i>et al.</i> (750)
Photocatalytic Degradation of Rhodamine B with Micro-SiC/Graphene Composite Under Visible Light Irradiation	ZHU Hong-qing, YANG Bing, WEI Shi-qiang, <i>et al.</i> (756)
Removal of BPA and EE2 from Water by Mn-Fe Embedded in Acicular Mullite	ZHOU Qiu-hong, LONG Tian-yu, HE Jing, <i>et al.</i> (763)
Fabrication of La-MHTC Composites for Phosphate Removal; Adsorption Behavior and Mechanism	SONG Xiao-bao, HE Shi-ying, FENG Yan-fang, <i>et al.</i> (773)
Adsorption of Low-Concentration Phosphorus from Water by Composite Metal Modified Biochar	SUN Ting-ting, GAO Fei, LIN Li, <i>et al.</i> (784)
Phosphate Adsorption from Water on CaO ₂ -loaded Magnetic Diatomite	XU Chu-tian, LI Da-peng, ZHANG Shuai, <i>et al.</i> (792)
Phosphorus Forms and Release Risk of Sediments in Urban Sewage Treatment Plant Effluent and Receiving Stream Reach	TANG Ning, LI Ru-zhong, WANG Yu-qing, <i>et al.</i> (801)
Purification Characteristics of Urban Tail Water from Sewage Treatment Plant by Biofilm Ecological Floating Bed	ZHAO Zhi-rui, ZHANG Jia-yao, LI Duo, <i>et al.</i> (809)
Removal Performance of Antibiotic Resistance Genes and Heavy Metal Resistance Genes in Municipal Wastewater by Magnetic-Coagulation Process	YU Wen-chao, ZHENG Li-bing, WEI Yuan-song, <i>et al.</i> (815)
Effect of Tetracycline Antibiotic on Abundance and Transcriptional Expression Level of Tetracycline Resistance Genes in Activated Sludge	RUAN Xiao-hui, QIAN Ya-jie, XUE Gang, <i>et al.</i> (823)
Denitrification Process and N ₂ O Production Characteristics of Heterotrophic Nitrifying Bacterium <i>Pseudomonas aeruginosa</i> YL	YANG Lei, CUI Shen, REN Yong-xiang, <i>et al.</i> (831)
Environmental Factors Influence and Microbial Community Structure Analysis of Entrapped Anaerobic Ammonium Oxidizing Bacteria	WANG Xiao-tong, YANG Hong, SU Yang, <i>et al.</i> (839)
Research on Denitrification Performance of Enhanced Secondary Effluent by Embedded Denitrification Filler and Pilot Application	ZHOU Ya-kun, YANG Hong, WANG Shao-lun, <i>et al.</i> (849)
Temporal Anaerobic Effect on Aerobic Granular Sludge with Intermittent Influent-Intermittent Aeration	ZHANG Jie, WANG Yu-ying, LI Dong, <i>et al.</i> (856)
Simultaneous Short-Cut Nitrification-Denitrification Phosphorus Removal Granules Induced by Phosphorus Removal Granules	LI Dong, LIU Bo, WANG Wen-qi, <i>et al.</i> (867)
Spatial Distribution Characteristics and Pollution Assessment of Heavy Metals on Farmland of Geochemical Anomaly Area in Southwest Guangxi	WANG Fo-peng, XIAO Nai-chuan, ZHOU Lang, <i>et al.</i> (876)
Evaluation and Source of Heavy Metal Pollution in Surface Soil of Qinghai-Tibet Plateau	YANG An, WANG Yi-han, HU Jian, <i>et al.</i> (886)
Characteristics and Factors of Soil Enzyme Activity for Different Plant Communities in Yellow River Delta	MO Xue, CHEN Fei-jie, YOU Chong, <i>et al.</i> (895)
Effects of Management Measures on Soil Water-soluble Carbon and Nitrogen and Their Three-Dimensional Fluorescence Characteristics of <i>Pinus tabulaeformis</i> Plantations on Loess Plateau	SONG Ya-hui, ZHANG Jiao-yang, LIU Hong-fei, <i>et al.</i> (905)
Effects of Biochar Input on Changes of Available Nutrient Elements in Riparian Soils with Different Landuse Types	ZHOU Hui-hua, YUAN Xu-yin, XIONG Yu-ting, <i>et al.</i> (914)
Effect of Applying Hydrochar for Reduction of Ammonia Volatilization and Mechanisms in Paddy Soil	YU Shan, XUE Li-hong, HUA Yun, <i>et al.</i> (922)
Effects of Mycorrhizal Fungi on Nitrification and Denitrification in the Rhizospheric Soil of Aquatic Plants and Its Microbial Mechanism	LIU Duo, WANG Lei, CAO Zhan-bo, <i>et al.</i> (932)
Comparison of Floating Chamber and Diffusion Model Methods for Measuring Methane Emissions from Inland Fish-Aquaculture Ponds	HU Tao, HUANG Jian, DING Ying, <i>et al.</i> (941)
Simultaneous Quantitative Detection of Thirteen Common Antibiotics in Leafy Vegetables by Ultra-High Performance Liquid Chromatography-Tandem Mass Spectrometry	CHEN Qian, LIU Yang, XIAO Li-jun, <i>et al.</i> (952)
Accumulation and Translocation of Cd in <i>Brassica rapa</i> Under the Influence of Selenium	YU Yao, LUO Li-yun, LIU Zhe, <i>et al.</i> (962)
Tolerance Mechanism and Cadmium Enrichment Abilities in Two <i>Brassica napus</i> L. Cultivars	BIAN Jian-lin, GUO Jun-mei, WANG Xue-dong, <i>et al.</i> (970)
Enhanced Phytoextraction of Cadmium Contaminated Soil by <i>Trifolium Repens</i> with Biodegradable Chelate GLDA	HE Yu-long, YU Jiang, XIE Shi-qian, <i>et al.</i> (979)
Heavy Metal Contents in Animal Manure in China and the Related Soil Accumulation Risks	MU Hong-yu, ZHUANG Zhong, LI Yan-ming, <i>et al.</i> (986)
Microbial Community Succession in Industrial Composting with Livestock Manure and Peach Branches and Relations with Environmental Factors	CAI Han-bing, FENG Wen-wen, DONG Yong-hua, <i>et al.</i> (997)
Degradation Characteristics of Antibiotics During Composting of Four Types of Feces	ZHU Wei-jing, ZHU Feng-xiang, WANG Wei-ping, <i>et al.</i> (1005)