

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

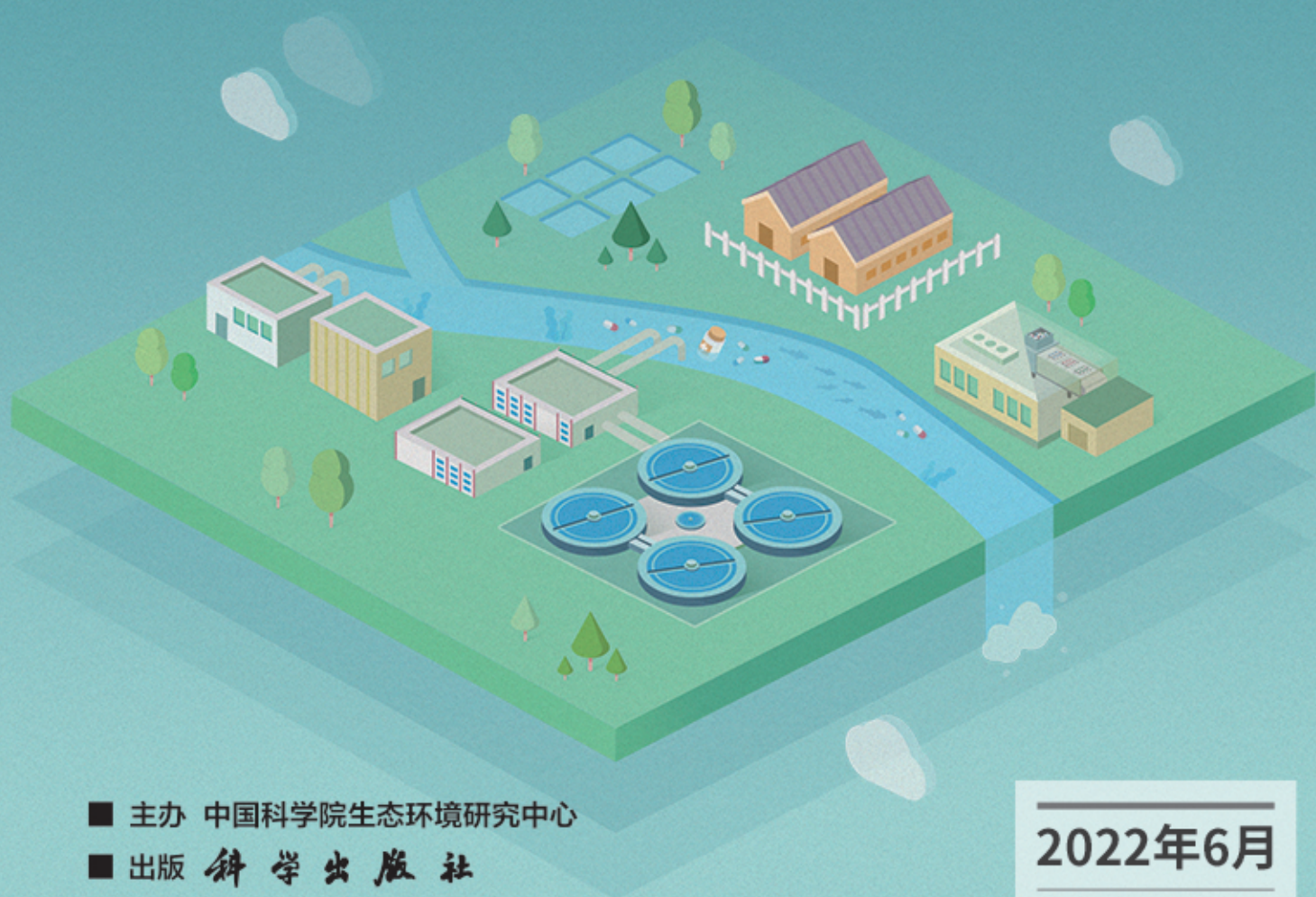
环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV
HUANJING KEXUE

长江中游典型饮用水水源中药物的时空分布及风险评价

武俊梅, 魏琳, 彭晶倩, 何鹏, 施鸿媛, 汤冬梅, 吴振斌



■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2022年6月

第43卷 第6期
Vol.43 No.6

目次

COVID-19 管控期间气象条件变化对京津冀 PM _{2.5} 浓度影响	邱雨露, 陈磊, 朱佳, 马志强, 李梓铭, 郭恒, 唐颖潇 (2831)
新冠疫情管控措施对郑州市 PM _{2.5} 浓度、粒径分布、组分和来源的影响	黄兵役, 王申博, 和兵, 薛若雨, 高更宇, 张瑞芹 (2840)
COVID-19 管控期间苏州市 PM _{2.5} 中金属元素浓度变化及来源解析	缪青, 杨倩, 吴也正, 魏恒, 周民锋, 张晓华, 邹强 (2851)
2015 ~ 2019 年南京北郊碳质气溶胶组成变化	谢添, 曹芳, 章炎麟, 林煜棋, 范美益, 宋文怀, 鲍孟盈, 项妍琨, 赵祝钰, 杨笑影, 谢锋, 张煜炯, 俞浩然, 张子金, 邢佳莉 (2858)
基于受体和化学传输的综合模型解析重庆 PM _{2.5} 来源	彭超, 李振亮, 曹云攀, 蒲茜, 方维凯, 王晓宸, 汪凌韬 (2867)
保定市冬季 PM _{2.5} 的氧化潜势特征及其影响来源分析	吴继炎, 杨池, 张春燕, 范美益, 吴爱坪, 章炎麟 (2878)
南京江北新区 PM _{2.5} 中水溶性有机氮的污染特征及其来源	关璐, 丁铖, 张毓秀, 胡建林, 于兴娜 (2888)
广西十万大山背景点 PM _{2.5} 中非极性有机气溶胶组成及来源解析	邢佳莉, 曹芳, 王谦, 张煜炯, 章炎麟 (2895)
大气多环芳烃区域迁移转化模型比较与关键影响因素: 以京津冀地区为例	张馨露, 刘世杰, 韩美丽, 苏超, 张志鹏, 马琳琳, 李洋, 程苗苗 (2906)
基于过程分析的京津冀区域典型城市臭氧成因	唐颖潇, 姚青, 蔡子颖, 丁净, 樊文雁, 杨旭, 韩素芹 (2917)
天津市 PM _{2.5} -O ₃ 复合污染特征及气象影响分析	肖致美, 李源, 孔君, 李鹏, 蔡子颖, 高璟, 徐虹, 戴运峰, 邓小文 (2928)
2016 ~ 2020 年山东省空气质量时空分布特征及影响因素分析	周梦鸽, 杨依, 孙媛, 张凤英, 李永华 (2937)
河南省臭氧污染趋势特征及敏感性变化	晏洋洋, 尹沙沙, 何秦, 秦凯, 张瑞芹 (2947)
热带气旋对珠三角秋季臭氧污染的影响	赵伟, 吕梦瑶, 卢清, 高博, 梁小明, 刘明, 孙家仁, 陈来国, 范绍佳 (2957)
武汉市夏季大气挥发性有机物实时组成及来源	苏维峰, 孔少飞, 郑煌, 陈楠, 祝波, 全继宏, 祁士华 (2966)
运城市夏季大气挥发性有机物污染特征及来源解析	温肖宇, 赵文婷, 罗淑贞, 张强, 王姝涛, 马俊杰, 刘新罡 (2979)
我国地表水新烟碱类杀虫剂对水生生物安全的威胁	范丹丹, 刘红玲, 杨柳燕 (2987)
长江中游典型饮用水水源中药物的时空分布及风险评价	武俊梅, 魏琳, 彭晶倩, 何鹏, 施鸿媛, 汤冬梅, 吴振斌 (2996)
内蒙古东北部地区地下-地表饮用水源多环芳烃污染特征与风险	张坤峰, 昌盛, 付青, 樊月婷, 王思瑞, 孙兴滨, 王山军 (3005)
不同尺度土地利用方式对地表水环境质量的影响及驱动机制	宋静雯, 张学霞, 姜东旸, 赵丞豪, 李鹏飞 (3016)
高原湖泊周边浅层地下水: 氮素时空分布及驱动因素	李桂芳, 杨恒, 叶远行, 陈清飞, 崔荣阳, 陈安强, 张丹 (3027)
青海湖沉积物重金属分布及其潜在生态风险分析	张雅然, 车霏霏, 付正辉, 许野, 李薇 (3037)
东江湖表层沉积物重金属污染特征与潜在生态风险评价	赵晓亮, 李响, 卢洪斌, 卢少勇, 王涛, 张森霖, 国晓春, 张静, 弥启欣, 刘晓贺, 宋书峰 (3048)
湖泊沉积物有机磷释放动力学特征及水质风险	刘哲哲, 倪兆奎, 刘思儒, 李晓秀, 王圣瑞 (3058)
长三角一体化示范区青浦区水体表层沉积物有机质分布特征、来源解析及污染评价	张智博, 段艳平, 涂耀仁, 罗鹏程, 高峻 (3066)
香溪河流域微塑料的分布特征及其迁移规律分析	陈圣盛, 李卫明, 张坤, 熊伟唯, 张续同, 刘子健 (3077)
城市水体微塑料垂向分布下附着细菌群落结构和功能响应	陈玉芳, 闫振华, 张燕, 赵海洲 (3088)
2015 ~ 2020 年洪泽湖浮游植物群落结构及其环境影响因子	屈宁, 邓建明, 张祯, 蔡永久, 龚志军, 李明 (3097)
嘉兴南湖不同湖区浮游植物群落结构特征与环境因子关系	王雅雯, 李迎鹤, 张博, 郭云艳, 陈俊伊, 韩松 (3106)
近 20 年来广东省农业面源污染负荷时空变化与来源分析	葛小君, 黄斌, 袁再健, 王栋栋, 王泉泉, 陈佳村, 谢真越 (3118)
长江上游平原丘陵区农业非点源污染输出特征和驱动机制	谭少军, 刘洋, 朱小婕, 刘荷, 邵景安, 邓华 (3128)
高分辨率数据驱动的流域非点源污染输出风险评估方法	顾晶晶, 冶涛涛, 董甲平, 蒋云钟, 曹引, 赵红莉 (3140)
不同面源强度影响下城市河流溶解性有机质光谱特征变化	陈旭东, 高良敏 (3149)
生态沟渠-生物滞留池组合控制农村径流污染	石雷, 杨小丽, 吴青宇, 王亦铭, 徐佳莹 (3160)
不同水力扰动强度对老化 PSMPs 在泥水两相间迁移的影响	吴香香, 艾萍, 李大鹏 (3168)
北京市中心城区屋面径流污染特征及来源分析	席玥, 郭婧, 陶蕾, 田颖, 陈吉吉, 吴悦, 徐蘇士, 荆红卫, 刘保献 (3177)
不同植被绿色屋顶径流水质年际变化特征	章孙逊, 张守红, 葛德, 闫婧, 杨航, 王任重远, 魏良怡, 张成玉 (3187)
可见光促有机物诱导铁还原的多相类芬顿体系强化效能与机制	曹丝雨, 许路, 付权超, 金鑫, 石炬, 金鹏康 (3195)
4 种典型抗生素在反硝化体系中的去除特性	唐佳, 陈茜, 覃牧川, 唐溪, 唐崇俭 (3204)
农业废弃物基生物炭对水溶液中镉的吸附效果与机制	龚沛云, 孙丽娟, 宋科, 孙雅菲, 秦秦, 周斌, 薛永 (3211)
腐殖酸-重金属对 ANAMMOX 菌脱氮性能的影响及其动力学分析	李芸, 崔楠, 熊星星, 黄志远, 李泽兵, 王东亮, 李朝明, 许丹, 李军 (3221)
2000 ~ 2020 年西南地区植被 NDVI 对气候变化和人类活动响应特征	徐勇, 黄雯婷, 窦世卿, 郭振东, 李欣怡, 郑志威, 靖娟利 (3230)
黄河三角洲湿地不同植被类型下土壤营养元素空间分布及其生态化学计量学特征	孙德斌, 栗云召, 于君宝, 杨继松, 杜朝红, 孙丹丹, 凌越, 马元庆, 周迪, 王雪宏, 赵佳怡 (3241)
青藏高原东北部地区表层土壤中全氟化合物的分布特征及来源解析	温祥洁, 陈朝辉, 徐维新, 吴小娟, 郝云庆, 刘伟, 印红玲, 方淑红 (3253)
西南典型“退耕还林”区土地利用/覆被变化对土壤中硒及重金属含量的影响	刘永林, 刘属灵, 吴梅, 田兴磊, 刘双燕 (3262)
贵州普定喀斯特关键带土壤重金属形态特征及风险评价	张倩, 韩贵琳 (3269)
南丹盆地东部山区土壤锆分布特征及其影响因素分析	董秋瑶, 赖书雅, 宋超, 温皓天, 严明疆, 杨振京 (3278)
神农架川金丝猴栖息地重金属污染特征及风险评价	严佳莉, 于紫玲, 余辉亮, 向明灯, 王传华 (3288)
石灰泡石钝化后两种轮作模式对重度镉污染农田土壤的利用及修复	许璐, 周春海, 刘梅, 孔辉, 李元, 黄志红 (3299)
水稻磷盈亏对镉吸收转运的影响	谭文韬, 霍洋, 周航, 仇银燕, 曾鹏, 辜娇峰, 廖柏寒 (3308)
改良剂调控下水稻镉累积和土壤溶解性有机质光谱特征的响应	罗会龙, 陈娟, 张云慧, 袁贝, 杨宾, 张昊, 杜平 (3315)
土壤真菌群落对五台山亚高山草甸退化的响应	罗正明, 赫磊, 刘晋仙, 胡砚秋, 周妍英, 郑庆荣, 柴宝峰 (3328)
小麦与不同作物多样化轮作对土壤真菌群落的影响	靳海洋, 岳俊芹, 闫雅倩, 张德奇, 杨程, 张素瑜, 李向东, 邵运辉, 方保停, 王汉芳, 秦峰 (3338)
重庆农田土壤有机碳稳定性同位素空间分布特征	廖宇琴, 龙娟, 木志坚, 文首鑫, 李翠莲, 杨志敏, 赵秀兰 (3348)
长江三角洲 2018 年土壤 NO 排放特征	廖加强, 薛金, 王文锦, 朱永慧, 朱安生, 黄凌, 王杨君, 李莉 (3357)
基于多源数据的城市扩张中热环境演变及响应	梁建设, 白永平, 杨雪蕊, 高祖桥, 李玲蔚, 张春悦, 王倩 (3365)
《环境科学》征订启事 (3004) 《环境科学》征稿简则 (3047) 信息 (3252, 3298, 3327)	

基于过程分析的京津冀区域典型城市臭氧成因

唐颖潇, 姚青*, 蔡子颖, 丁净, 樊文雁, 杨旭, 韩素芹

(天津市环境气象中心, 中国气象局-南开大学大气环境与健康研究联合实验室, 天津 300074)

摘要: 随着京津冀区域臭氧(O_3)污染问题日渐突出, 探究和分析京津冀区域 O_3 变化特征和污染过程形成原因对区域大气污染防治工作具有重要意义. 观测结果显示, 春夏季京津冀区域较高的 O_3 浓度呈现南高北低的分布, 北京、天津和石家庄这3座城市 O_3 高浓度往往伴随着偏南风的影响. 基于 WRF-Chem 模式模拟和过程分析技术对 2019 年京津冀区域 O_3 变化特征和成因进行了深入分析, 典型城市化学过程、垂直混合和输送的日变化有着鲜明的季节变化差异. 其中在夏季午后化学过程是各城市 O_3 浓度增加的主要来源; 垂直混合导致天津和石家庄 O_3 浓度增加, 但使得北京 O_3 浓度减少; 天津和石家庄存在净输出, 而北京则为净流入. 通过对比分析 O_3 污染和清洁过程结果表明, 化学过程主导北京和石家庄污染过程午后 O_3 浓度增加, 天津则为垂直混合, 此外, 北京和石家庄存在 O_3 净输入, 天津则为净输出; 而清洁过程中, 垂直混合主导北京和石家庄午后 O_3 浓度增加, 天津则为化学过程, 同时, 3 座城市均存在 O_3 净输出.

关键词: 臭氧(O_3); WRF-Chem 模式; 过程分析; 污染特征; 京津冀

中图分类号: X515 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2022)06-2917-11 DOI: 10.13227/j.hjxx.202109146

Exploring Formation of Ozone in Typical Cities in Beijing-Tianjin-Hebei Region Using Process Analysis

TANG Ying-xiao, YAO Qing*, CAI Zi-ying, DING Jing, FAN Wen-yan, YANG Xu, HAN Su-qin

(CMA-NKU Cooperative Laboratory for Atmospheric Environment-Health Research, Tianjin Environmental Meteorology Center, Tianjin 300074, China)

Abstract: As the problem of O_3 pollution in the Beijing-Tianjin-Hebei region becomes increasingly prominent, it is of great significance to explore and analyze the ozone variation characteristics and causes of the pollution process in the Beijing-Tianjin-Hebei region for regional air pollution prevention and control. The observations in this study showed that high O_3 concentration in spring and summer of the Beijing-Tianjin-Hebei region was higher in the south and lower in the north. The high O_3 concentration in Beijing, Tianjin, and Shijiazhuang was often accompanied by the influence of southern wind. Based on WRF-Chem model simulation and process analysis technology, the variation characteristics and causes of O_3 in The Beijing-Tianjin-Hebei region in 2019 were deeply analyzed. The diurnal variations in chemical processes, vertical mixing, and transportation in typical cities showed distinct seasonal variations. In summer afternoons, chemical processes were the main source of O_3 concentration increase in each city. Vertical mixing resulted in an increase in O_3 concentration in Tianjin and Shijiazhuang but a decrease in Beijing. Tianjin and Shijiazhuang had a net output, whereas Beijing had a net inflow. In the polluted O_3 process, the chemical process dominated the afternoon O_3 concentration increasing in Beijing and Shijiazhuang, whereas vertical mixing dominated in Tianjin. In addition, there was a net input of O_3 in Beijing and Shijiazhuang and a net output of O_3 in Tianjin. In the clean O_3 process, vertical mixing dominated the increase in O_3 concentration in Beijing and Shijiazhuang in the afternoon, whereas in Tianjin it was chemical processes. At the same time, the net output of O_3 existed in all three cities.

Key words: ozone(O_3); WRF-Chem model; processes analysis; pollution characteristics; Beijing-Tianjin-Hebei

近年来京津冀区域(Beijing-Tianjin-Hebei region, BTH)臭氧(O_3)浓度呈逐年增高趋势^[1, 2], 2019 年京津冀及周边地区(“2+26”城市)和长三角地区以 O_3 为首要污染物的天数占比分别为 48.2% 和 49.5%, 均超过以 $PM_{2.5}$ 为首要污染物的天数占比; 2020 年京津冀及周边地区以 O_3 为首要污染物的天数占比略有下降, 为 46.6%, 低于 $PM_{2.5}$ 为首要污染物的天数占比(50.7%)^[3, 4]. 气象因素是其时空分布的重要影响因素^[5~8], O_3 作为对流层光化学产物, 晴空、高温和低湿有利于 O_3 污染的形成^[9, 10]. 姚青等^[11]的研究发现 2017 年夏季天津 O_3 浓度在偏南风时最高, 在偏东风时最低. 2017 年夏季北京 O_3 污染日的研究发现, 来自河北、内蒙古自治区中部和蒙古国东部的气流对 O_3 污染的平均贡献量可达 16%~37%, 最大贡献量为

53%^[12]. 2006~2015 年北京市不同地区的 O_3 浓度分析结果显示^[13], 近地面 O_3 浓度与温度的相关性较高, 呈显著正相关关系, 与相对湿度和气压呈负相关关系.

除了观测实验研究外, 不少学者亦利用数值模式模拟的方法开展 O_3 浓度变化特征成因的研究^[14, 15]. Gu 等^[16]的研究利用 WRF-Chem 模式分析了向岸气流中的 O_3 对上海地表 O_3 浓度的影响, 结果表明, 海洋大气中的 O_3 会导致城市地区 O_3 浓度升高 20%~30%. 在模式模拟中, 通过将连续方

收稿日期: 2021-09-16; 修订日期: 2021-10-22

基金项目: 中国气象局创新发展专项(CXFZ2021Z087); 天津市自然科学基金项目(19JCQNJC08000); 上海市国家大气基底站开放研究课题项目(SDZ2020612); 天津市气象局基金项目(202102yjxywx01)

作者简介: 唐颖潇(1990~), 男, 博士, 工程师, 主要研究方向为大气污染物的数值模拟, E-mail: tangyingxiao@163.com

* 通信作者, E-mail: yao.qing@163.com

程分解为仅包含一个或者两个过程影响的简单的微分或者偏微分方程形式,进而构建了过程分析技术^[17].基于过程分析的手段,可以得到不同物理化学过程对 O_3 浓度的影响,进而解释 O_3 浓度变化的成因.垂直混合是 2011 年夏季黄山白天 O_3 浓度减少的主要因素,水平平流是夜间 O_3 浓度增加的主要因素^[18].珠三角背景地区 O_3 浓度的过程分析表明,夏季化学过程对 O_3 的影响较为明显,而其他季节背景地区 O_3 浓度主要受物理过程影响^[19].长三角地区 O_3 污染的过程分析显示, O_3 浓度最高值时段,输送过程的贡献较大,而化学过程主要发生在高空,通过向地面传输进而导致近地面 O_3 浓度升高^[20].对乌海市夏季 O_3 污染特征的过程分析显示,6 月和 7 月化学过程和输送共同导致了 O_3 浓度升高,且化学过程的贡献是输送的两倍,而 8 月 O_3 浓度的升高则主要为输送作用的影响^[21].

本研究通过数值模式模拟,结合污染物和气象条件观测数据,运用过程分析技术量化各物理化学过程对 O_3 浓度生成的贡献,进而对 2019 年京津冀区域 O_3 浓度变化成因进行分析和探究,以期提高对 O_3 浓度变化规律的认识,并对京津冀区域 O_3 污染防治工作提供科学支撑.

1 材料与方法

1.1 研究区域和资料来源

京津冀区域包括北京市、天津市和河北省 11 个地级市以及 2 个省直管市.基于数据的连续性和完整性考虑,本研究选取了该区域内的 68 个国控站,站点分布和信息与姚青等^[22]的研究结果相一致.本研究以北京、天津和石家庄作为京津冀区域典型城市进行深入分析,各城市 O_3 浓度为该城市内各站点 O_3 浓度的算术平均值.文章所用气象数据,皆取自环境观测站附近气象站观测数据.近地面 O_3 浓度资料来源于中国环境监测总站(<http://www.cnemc.cn/>),近地面气象数据来自中国气象数据服务系统(<http://data.cma.cn/>).

1.2 大气化学模式

WRF-Chem 模式是 NCAR 和 NOAA 联合其他大学和研发机构共同开发的中尺度在线大气化学模式,在全球空气质量和大气化学模拟中得到广泛应用^[23,24].本研究采用 WRF-Chem V3.4 版本,化学过程采用 MOZART-4,长波辐射方案和短波辐射方案均采用 RRTMG,积云对流方案采用 GRELL-3D,微物理过程采用 Lin 方案,边界层方案使用 YSU 方案.模式天津地区以外地区的人为排放源清单使用清华大学 MEIC2016,分辨率 $0.25^\circ \times 0.25^\circ$,天津

地区使用源谱调查排放源清单数据,其分辨率为 1 km,模式采用两层嵌套(如图 1),水平分辨率分别为 27 km 和 9 km,水平网格 91×91 和 109×109 ,中心经纬度为 $38.6^\circ N$, $116.2^\circ E$,垂直分辨率为 27 层,气象场使用 NECP 全球 $1^\circ \times 1^\circ$ 的 FNL 数据.

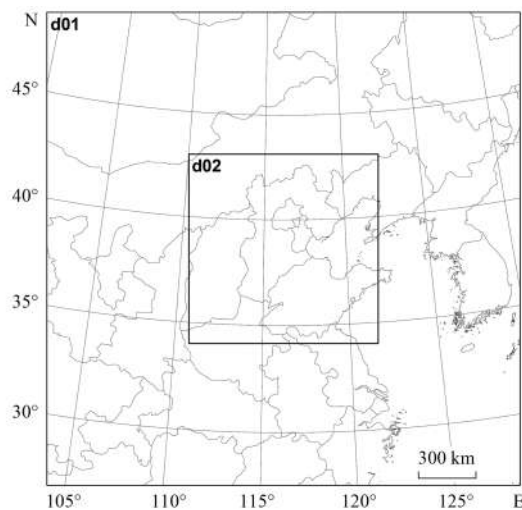


图 1 模式模拟区域和范围示意

Fig. 1 Model simulation area and range

模式模拟时间为 2019 年 1 月 1 日 ~ 12 月 31 日,模拟采用 24 h 滚动计算,每 24 h 重新使用一次 NECP 的 FNL 气象初始场,而污染初始场则为上一次的模拟值.表 1 给出了北京、天津和石家庄气象要素、 NO_2 和 O_3 浓度模式模拟和观测值的对比情况.总体而言,模式模拟与观测气象要素的相关性较好,其中气温的模拟效果最好,风速较差,这一结果与华北地区其他基于 WRF-Chem 模式的研究结果接近^[25,26].此外,模式模拟与观测和 O_3 浓度相关性较高,和 NO_2 浓度相关系数则较低,其模拟结果与其他同类研究相近^[27,28],这为基于模式过程分析技术分析 O_3 浓度变化特征提供了有利条件.

1.3 过程分析技术

过程分析技术系根据数值模式的计算过程,将影响 O_3 的物理化学过程单独输出,通过对单独变量的分析,分析 O_3 浓度变化的成因.对于模式中污染物浓度的变化,可以用下列等式计算:

$$\Delta C = \Delta C_{\text{chemi}} + \Delta C_{\text{physi}} + \Delta C_{\text{emisi}} \quad (1)$$

影响 O_3 浓度变化(ΔC)因素包括:化学过程影响的浓度变化(ΔC_{chemi})、物理过程影响的浓度变化(ΔC_{physi})和一次排放的 O_3 浓度(ΔC_{emisi}).由于模式假定 O_3 均为二次生成,因此, ΔC_{emisi} 为 0.而本研究中物理过程包括平流、垂直混合、干湿沉降和对流,化学过程主要为气相化学.通过将物理和化学过程影响的 O_3 浓度单独输出,并分析这些物理化学过程诊断量的变化,便形成了过程分析技术.本

表 1 模拟值与观测值统计量

Table 1 Statistical comparison between the observed and simulated variables							
项目	位置	样本数	模拟均值	观测均值	偏差 ¹⁾	均方根误差	相关系数
气温/℃	北京	8 571	13. 5	14. 0	-0. 5	2. 3	0. 98
	天津	8 664	13. 7	15. 5	-1. 7	2. 7	0. 98
	石家庄	8 557	15. 0	15. 1	-0. 2	2. 3	0. 98
相对湿度/%	北京	8 571	43	47	-4	14	0. 83
	天津	8 664	46	48	-2	13	0. 85
	石家庄	8 557	42	54	-12	18	0. 82
风速/m·s ⁻¹	北京	8 571	3. 35	2. 10	1. 24	1. 90	0. 62
	天津	8 664	3. 51	1. 57	1. 94	2. 41	0. 64
	石家庄	8 557	3. 10	2. 17	0. 93	1. 84	0. 47
$\rho(\text{NO}_2)/\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	北京	8 482	31	37	-6	19	0. 62
	天津	8 481	38	42	-4	18	0. 70
	石家庄	8 481	42	46	-4	23	0. 59
$\rho(\text{O}_3)/\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	北京	8 340	65	63	2	29	0. 83
	天津	8 333	59	68	-10	30	0. 87
	石家庄	8 251	53	66	-13	34	0. 84

1) 偏差为模式模拟值与观测值的差值

研究中物理过程诊断量包括：垂直平流(Advz)、水平平流(Advh)和垂直混合(垂直分层中最下底层包含干沉降的贡献,Vmix)^[29],化学过程则以Chem表示;Advz和Advh作为输送的影响,将之合并为Tran表示输送.此外,由于使用24 h滚动模拟,每24 h重新气象初始场,这就使得在调用气象场时,过程分析技术中各物理化学过程诊断量的输出结果为零,即在每天20:00(北京时)没有对应的诊断结果输出.基于过程分析中各物理化学过程诊断量的变化,能够进一步定量分析O₃浓度变化中各物理化学过程的相对贡献,从而理清O₃浓度变化特征的成因.

2 结果与讨论

2.1 京津冀区域O₃浓度时空分布特征

图2给出了2019年京津冀区域主要城市观测的日最大8h O₃均值(daily maximum 8-h average O₃,DMA8-O₃)在不同季节的空间分布.除冬季外,DMA8-O₃呈现南高北低形势,高值中心位于河北省

南部,低值中心位于承德、秦皇岛等地,这与之前基于站点观测的研究相一致^[22].京津冀区域DMA8-O₃存在明显的季节变化特征,区域平均最大值出现在夏季,约为163 μg·m⁻³,区域平均最小值出现在冬季,约为50 μg·m⁻³.不同季节京津冀区域DMA8-O₃的分布存在一定差异.冬季,DMA8-O₃的高值中心位于西北部的张家口,低值中心位于石家庄和邢台一带,唐山的浓度也相对较低;春季和夏季,DMA8-O₃均呈现南高北低的形势,春季高值中心位于邯郸一带,但夏季的高值中心偏西,位于保定一带;秋季DMA8-O₃的高值中心位于沧州一带,低值中心位于京津冀的北部.京津冀区域春、夏、秋季气温是影响O₃浓度变化的主要气象因素,夏季强烈太阳辐射和高温天气有利于O₃生成,尤其在前体物强度排放较高的河北南部地区,这就造成了京津冀地区O₃浓度分布出现南高北低的形势^[22].冬季影响O₃浓度变化的主要气象因素为相对湿度和风速,且与相对湿度呈负相关,风速呈正相关^[1],而东亚季风

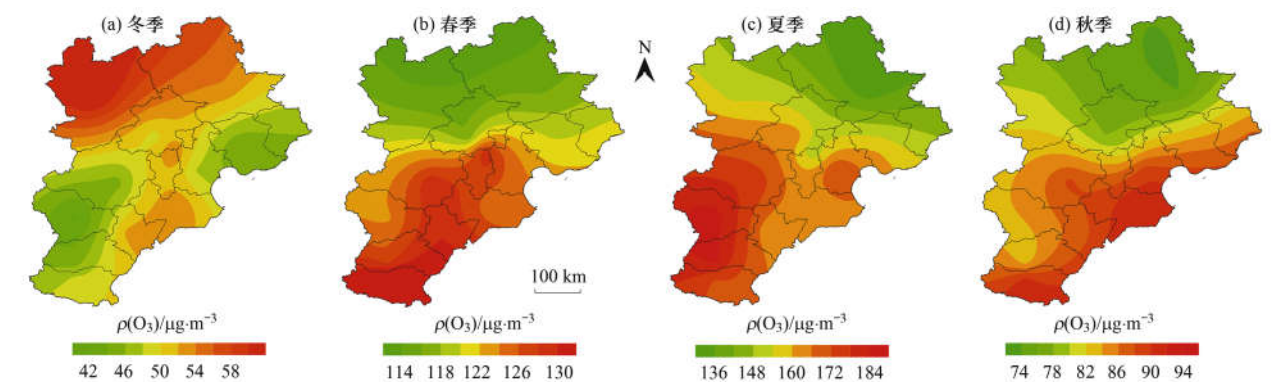


图 2 各季节京津冀区域 O₃ 观测浓度空间分布

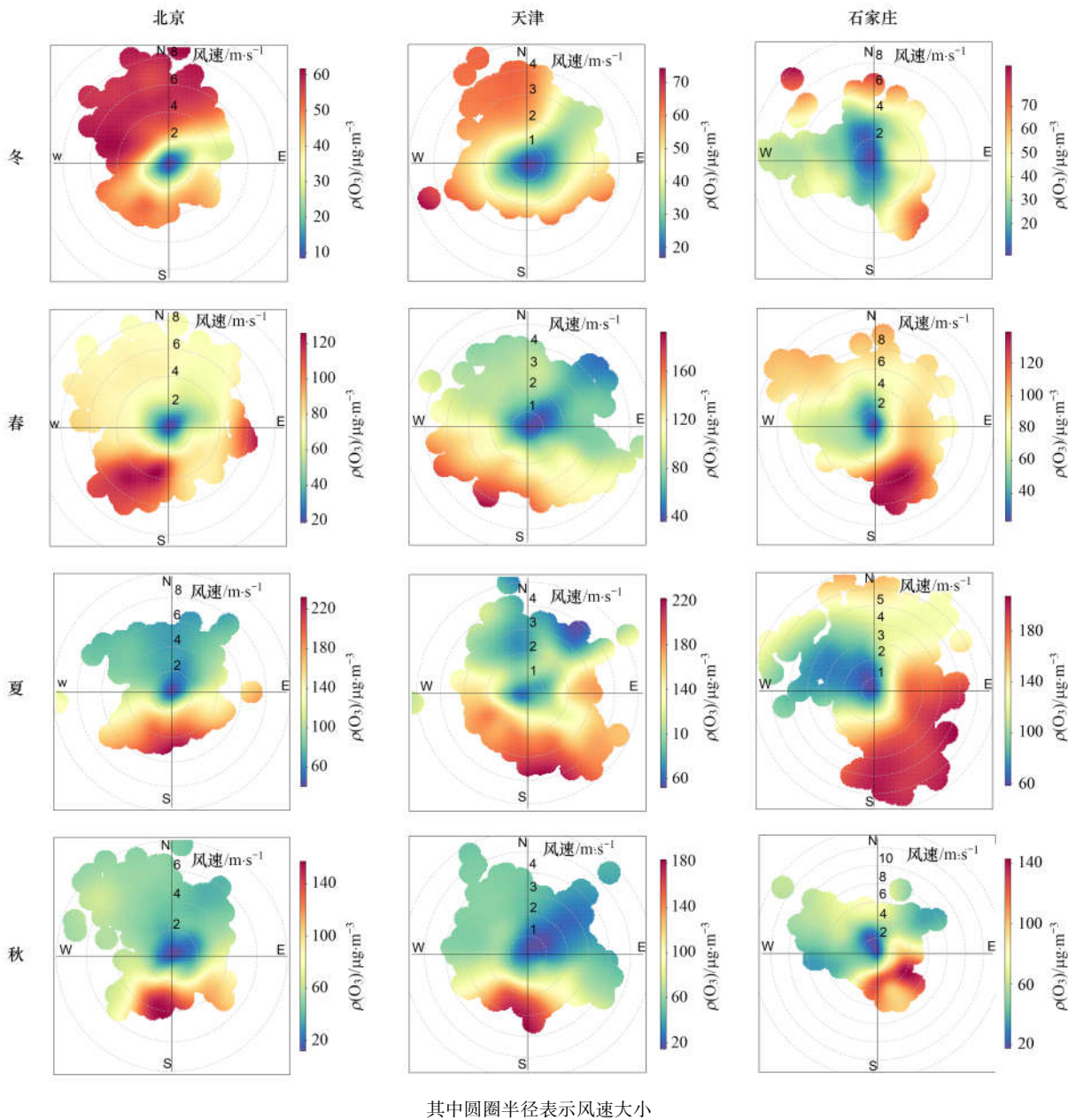
Fig. 2 Spatial distribution of observed O₃ concentration during different seasons over BTH

输送而来的 O_3 在冬季最高^[30], 东亚季风带来的 O_3 自北向南影响京津冀区域, 这就使得冬季 O_3 浓度呈现北高南低的形势。

京津冀区域气候背景大体一致, 受地形, 污染排放差异等影响, 不同城市 O_3 污染存在较大差异, 考虑到所选国控站点绝大多数都处于城市中心, 实际反映的是中心城市大气环境, 因此选取北京、天津和石家庄这 3 个京津冀区域中心城市作为京津冀区域的典型城市进行分析。DMA8- O_3 污染日 ($> 160 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) 主要集中在 5~9 月, 其中 6 月 DMA8- O_3 日值浓度最高, 在天津和石家庄均出现了重度污染 ($\text{DMA8-}\text{O}_3 > 265 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$); 3 座城市, 石家庄 5~9 月 DMA8- O_3 平均值最高, 为 $171 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 北京

最低, 为 $158 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 北京、天津和石家庄 5~9 月有效观测日中 DMA8- O_3 超标日分别为 73、76 和 86 d, 占比为 50%、52% 和 59%。

近地面 O_3 主要来源于本地生成和区域输送, 以夹卷等形式表现的垂直输送也是特定 O_3 污染的重要来源^[31~33]。不同季节主导风向和风速的差异影响 O_3 的区域输送。图 3 给出了不同季节北京、天津和石家庄风向风速与 O_3 观测浓度分布, 可见除冬季外, 其它季节偏南风影响下 3 座城市 O_3 浓度相对较高; 冬季西北风控制下, 北京和天津的 O_3 浓度较高, 与图 2 中冬季张家口一带的高值中心相对应。石家庄 O_3 高浓度常发生在偏东风时, 对应于廊坊和沧州的高值中心。春秋季节, 北京和天津的 O_3



其中圆圈半径表示风速大小

图 3 2019 年各季节北京、天津和石家庄 O_3 观测浓度和风向风速

Fig. 3 Observed ozone concentration, wind direction, and wind speed in Beijing, Tianjin, and Shijiazhuang in different seasons in 2019

高浓度主要发生在西南风时,而石家庄则出现在东南风时.在夏季,天津和石家庄 O_3 高浓度主要发生在东南风时,而北京则出现在偏南风时,这与其他研究的结果相一致^[11,34].

2.2 典型城市 O_3 浓度季节差异的过程分析

基于模式过程分析技术,定量分析京津冀典型城市不同物理化学过程对 O_3 浓度分布的影响.图4给出了不同季节北京、天津和石家庄模式输出的

O_3 物理化学过程的诊断量.北京各物理化学过程有着相似季节变化,最大值均出现在冬季,化学过程和垂直混合的最小值出现在夏季,而输送的最小值出现在春季.天津化学过程贡献值在夏季最小,春季最大;垂直混合贡献值在冬季最小,春季最大;输送贡献值在夏季最小,冬季最大.石家庄化学过程和垂直混合贡献值冬季最小,春季最大;输送贡献值夏季最小,春季最大.

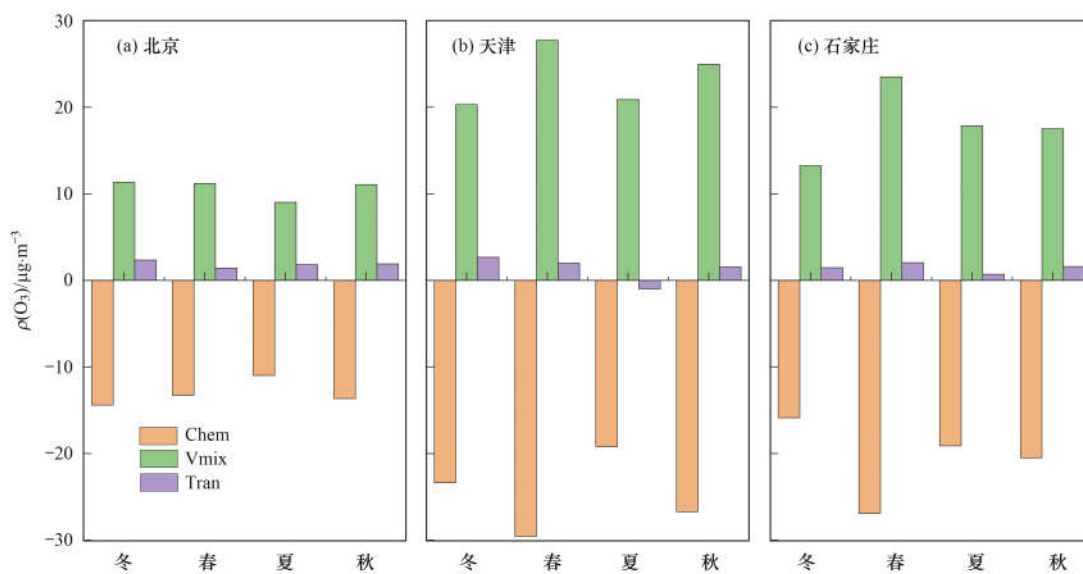


图4 北京、天津和石家庄 O_3 各物理化学过程季节平均值

Fig. 4 Seasonal averaged O_3 concentration of different physical and chemical processes in Beijing, Tianjin, and Shijiazhuang

3座城市中,各个季节化学过程和垂直混合对 O_3 的贡献一致,前者表现为负贡献,后者为正贡献;且从贡献大小上看,天津最大,北京最小.垂直混合过程贡献在各季节为正值,表明其为 O_3 生成的源,即上层大气经湍流向下输送而来的 O_3 大于 O_3 沉降,这与中国南部的研究一致,垂直混合是 O_3 的主要来源^[19,34].化学过程包含光化学反应导致的 O_3 生成(源)以及 NO_x 滴定导致的大气消耗(汇),各季节为负值,表明相对于白天的光化学生成,以夜间 NO_x 滴定为主的 O_3 消耗更大,一些针对个例的研究也可以看到夜间化学过程对 O_3 的去除要明显大于白天 O_3 的生成^[35~37].输送存在流入和流出两种影响,这两种影响同时存在,输送项为正则本地存在净流入,为负则为净流出.夏季天津输送表现为净流出,其他城市和季节均呈现为净流入.3座城市输送贡献大小有着明显季节差异:冬春季天津最大,夏秋季北京最大.由于垂直混合在北京的贡献最小,这就使得输送对北京 O_3 浓度增加的相对贡献在3座城市中是最大的.

不同物理化学过程贡献值的差异还表现在日变

化上,图5给出了3座城市各个季节 O_3 物理化学过程的日变化分布.对于3座城市的日变化而言,各物理化学过程日变化存在明显的季节变化.北京地区化学过程在春夏季午后转为正贡献,其他时间均为负贡献.尽管化学过程在秋冬季白天仍旧为负贡献,但是从图5中可以看到,其大小明显要小于夜间.北京地区垂直混合除在夏季午后转为负贡献外,其他时间均为正贡献.垂直混合贡献值日变化表明春夏季白天较小,夜间较大;秋冬季则相反.输送过程在春秋季节午后和夏季傍晚(18:00~19:00)转为负贡献,其他时间均为正贡献,其各季节日变化均为午后较小,夜间较大.天津地区化学过程在夏季午后转为正贡献,其他时间均为负贡献.化学过程贡献大小除冬季外,其他季节均在午后最小,在夜间最大;冬季在凌晨和午后均相对较小.垂直混合在各季节均为正贡献,其贡献值日变化中,除冬季外,各季节最小值均出现在午后,最大值出现在傍晚;冬季最小值出现在凌晨.输送过程除在冬季外,在各季节午后均转为负贡献,其他时间均为正贡献.其贡献值日变化在各季节差异较大,冬季日变化较小,春秋季节夜间大于白天,夏季午后最大,日出前后最小.石家庄化学过程贡献的

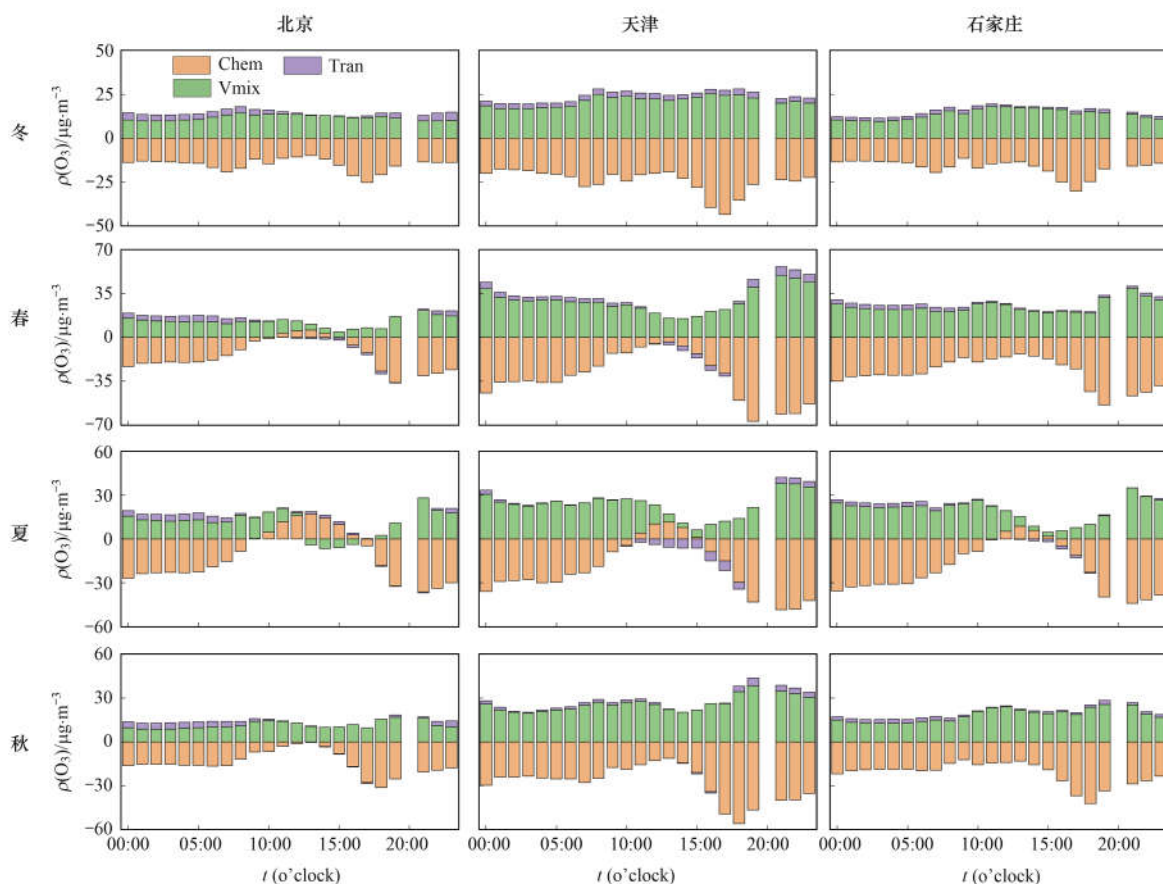


图5 北京、天津和石家庄各季节物理化学过程平均值日变化

Fig. 5 Average diurnal variation in physical and chemical processes in Beijing, Tianjin, and Shijiazhuang in different seasons

变化与天津相似。尽管石家庄垂直混合在各季节均为正贡献,但是其贡献值日变化存在季节差异,在秋冬季,最小值出现在凌晨,午后和傍晚贡献相对较大;在春夏季,最小值出现在午后,最大值出现在傍晚前后。输送在夏季午后转为负贡献,其他时间均为正贡献,其贡献值除在夏季外,最小值均出现在中午至午后,夏季最小值出现在傍晚前后;最大值则均出现在凌晨。

在 O_3 浓度最高的春夏季,3座城市各物理化学过程日变化存在较大差异。春季午后,北京化学过程转为正贡献,天津和石家庄均为负贡献;北京和天津输送均为负贡献,表明中心城市存在 O_3 的净输出,石家庄则为较小的正贡献。夏季午后,各城市化学过程均是主要的 O_3 浓度增加来源,其中北京化学过程最大可占其浓度增加的92%,明显高于天津(67%)和石家庄(69%)。垂直混合是3座城市 O_3 浓度增加的主要来源,但是在夏季午后,北京地区垂直混合的贡献表明其沉降作用较大,进而表现为负贡献,使得 O_3 浓度减少。夏季午后,输送贡献值变化表明,天津和石家庄存在 O_3 净输出,且天津的输出要远大于石家庄地区;而北京则为 O_3 净流入。不同物理和化学过程对北京、天津和石

家庄这3座城市 O_3 浓度变化的影响并不同步,表明区域内存在较为复杂的城市间相互传输,包含水平方向的传输和垂直方向的向下交换,叠合本地光化学生成等因素,造成各城市 O_3 峰值浓度发生时间呈现1~2 h的滞后。这种传输大多在边界层内进行,受盛行风向、局地环流和大气边界层结构的共同影响^[38]。在一定的气象条件下,白天边界层中形成和积累的 O_3 ,夜间在辐射冷却形成的稳定边界层以上和高层逆温层下形成夜间残余层,由于缺乏相应的 NO_x 滴定作用,其浓度仍然维持较高水平,并随盛行风远距离输送,经早晨混合层生长,残余层中的 O_3 可被带入混合层中,导致下风向地区地面 O_3 浓度迅速增加,使得垂直混合 Vmix 对所在城市 O_3 的高贡献^[39]。

2.3 典型城市污染日和清洁日 O_3 浓度变化过程分析

2019年6月,华北气温较常年同期偏高1~2℃,部分地区偏高2~4℃,且东部和南部等地降水偏少20%~80%^[40]。这种少雨高温的气候背景,为2019年6月 O_3 浓度处于高值的发生提供了有利条件^[41]。为了更好地了解3座城市不同物理化学过程对 O_3 污染的影响,选取6月24~27日进行分析。图6(a)给出了2019年6月24~27日,北京、

天津和石家庄 O_3 浓度变化情况. 可以看到, 6 月 24 ~ 27 日, 3 座城市 DMA8- O_3 均出现不同程度污染. 在北京, DMA8- O_3 日值浓度连续 4 d 达到中度污染水平; 在天津, 6 月 25 ~ 26 日 DMA8- O_3 日值浓度达到中度污染水平, 6 月的 24 日和 27 日则达到重度污染水平; 在石家庄, DMA8- O_3 日值浓度在 6 月 24 日为轻度污染水平, 6 月 25 ~ 27 日则达到了中度污染水平. O_3 浓度呈现单峰分布, 高峰处于 13:00 ~ 18:00 左右, 4 d 中北京、天津和石家庄这 3 座城市 O_3 最大峰值浓度分别为 276、282 和 263 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 随后 O_3 浓度出现下降趋势, 至次日 05:00 ~ 07:00 左右, 达到最小值, 6 月 24 ~ 27 日中 3 座城市 O_3 最小值浓度分别出现在 6 月 24 日 06:00、6 月 27 日 07:00 和 6 月 24 日 06:00. 这一日变化趋势与国内大多数研究结果相一致^[42~44]. 同时, 在图 6(b) 中选取了 2019 年 5 月 18 ~ 21 日作为 O_3 清洁日进行对比. 从中可以看到, 除了石家庄在 5 月 21 日个别时段 O_3 浓度较高, 3 座城市在 5 月 18 ~ 21 日期间, O_3 浓度均维持在优良 ($< 160 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) 水平. 除了在 5 月 20 ~ 21 日, 3 座城市 O_3 浓度变化呈现单峰分布且峰值浓度出现在 13:00 ~ 18:00 外, 5 月 18 ~ 19 日, 3 座城市 O_3 浓度变化差异较

大. 在 5 月 18 日, O_3 峰值浓度在天津出现于 13:00, 在北京和石家庄则分别出现在 21:00 和 18:00; 而在 5 月 19 日, 北京和石家庄峰值浓度均出现在 12:00, 天津则出现在 15:00. 对比 O_3 污染日与清洁日, 3 座城市 O_3 浓度的谷值接近, 污染程度主要与峰值有关.

O_3 污染日下, 北京、天津和石家庄平均气温分别为 28.1、29.0 和 30.5 $^{\circ}\text{C}$, 平均相对湿度则为 49%、50% 和 38%. 3 座城市清洁日的平均气温分别为 18.9、21.0 和 22.6 $^{\circ}\text{C}$, 平均相对湿度则为 48%、43% 和 39%. 这表明较高的气温更有利于 O_3 的生成. 此外, O_3 清洁日和污染日也存在着明显的风向差异. 污染日 3 座城市主要风向为偏南风, 而清洁日中 5 月 18 日主要风向为东南风, 5 月 19 ~ 21 日为偏西风. 从图 2 可知, 春夏季京津冀区域 O_3 浓度呈现南高北低的分布, 在偏南风的输送下, 将导致 O_3 浓度的升高, 其他风向则可能导致 O_3 浓度的降低. 6 月 25 ~ 27 日石家庄 O_3 峰值浓度出现时刻均早于北京和天津, 与偏南风下 O_3 及其前体物向北输送有关. 京津冀区域各城市 O_3 相互输送, 受地理位置、排放特征和气象等因素影响, O_3 输送路径、输送强度不尽相同^[45], 加强区域联防联控是有效控制 O_3 污染的重要途径^[8].

3 座城市在各季节物理化学过程的差异, 表明不同城市主导 O_3 浓度变化的因子存在较大差异, 这种差异突出反映在 O_3 污染事件的演变过程中. 图 7 和图 8 分别给出了污染日和清洁日下北京、天津和石家庄这 3 座城市逐小时过程分析的输出结果. 通过不同物理化学过程的变化, 可以计算得到这些过程对 O_3 浓度的影响, 其总的影响, 就是对 O_3 浓度的净贡献 (Net). 从图 7 可以看出, 3 座城市 Net 有着相似的日变化特征. Net 在 06:00 ~ 08:00 左右转为正值, 表明 O_3 浓度在上一个时刻达到最小值, 浓度随后开始增加; 随后, Net 值不断增加, 在 10:00 左右达到最大值; 此后开始减少, 并在 15:00 ~ 17:00 左右转为负值, Net 为 0 时对应 O_3 浓度最高, 浓度随后开始减少; 此后, Net 值不断减少, 在 19:00 左右达到最小值. 而在图 8 中, 相比于污染日, 清洁日 Net 值相对较小, 这导致清洁日 O_3 浓度变化较为平稳, 其浓度也相应低于污染日. 除了 Net 值存在差异外, 污染日与清洁日的物理化学过程也存在较大差异.

仅考虑白天特别是午后 O_3 浓度较高的时段, 探讨不同物理化学过程对 O_3 浓度变化的贡献. 6 月 24 ~ 27 日, 在偏南风团输送和携带 O_3 及其前体物影响下, 北京地区影响 O_3 浓度增加的主要过程

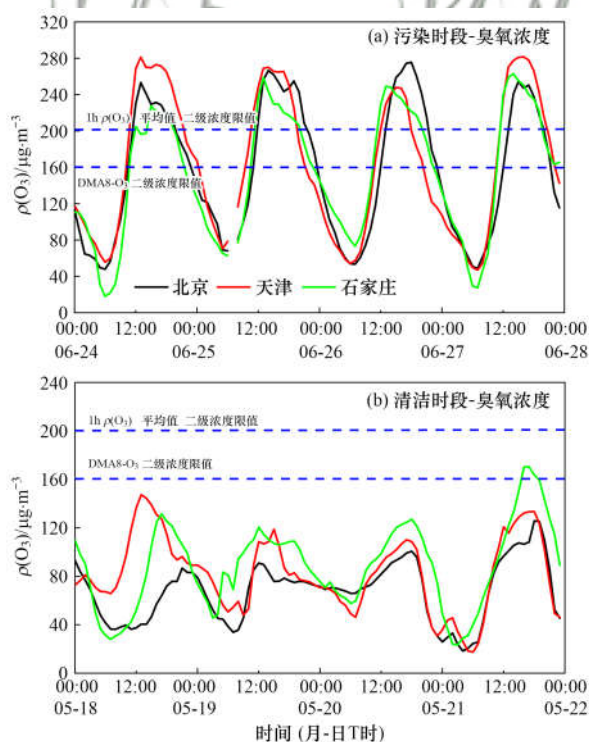


图 6 污染时段(6 月 24 ~ 27 日)和清洁时段(5 月 18 ~ 21 日)北京、天津和石家庄 O_3 观测浓度小时值变化

Fig. 6 Hourly variation in observed ozone concentration in Beijing, Tianjin, and Shijiazhuang during polluted period (June 24-27) and clean period (May 18-21)

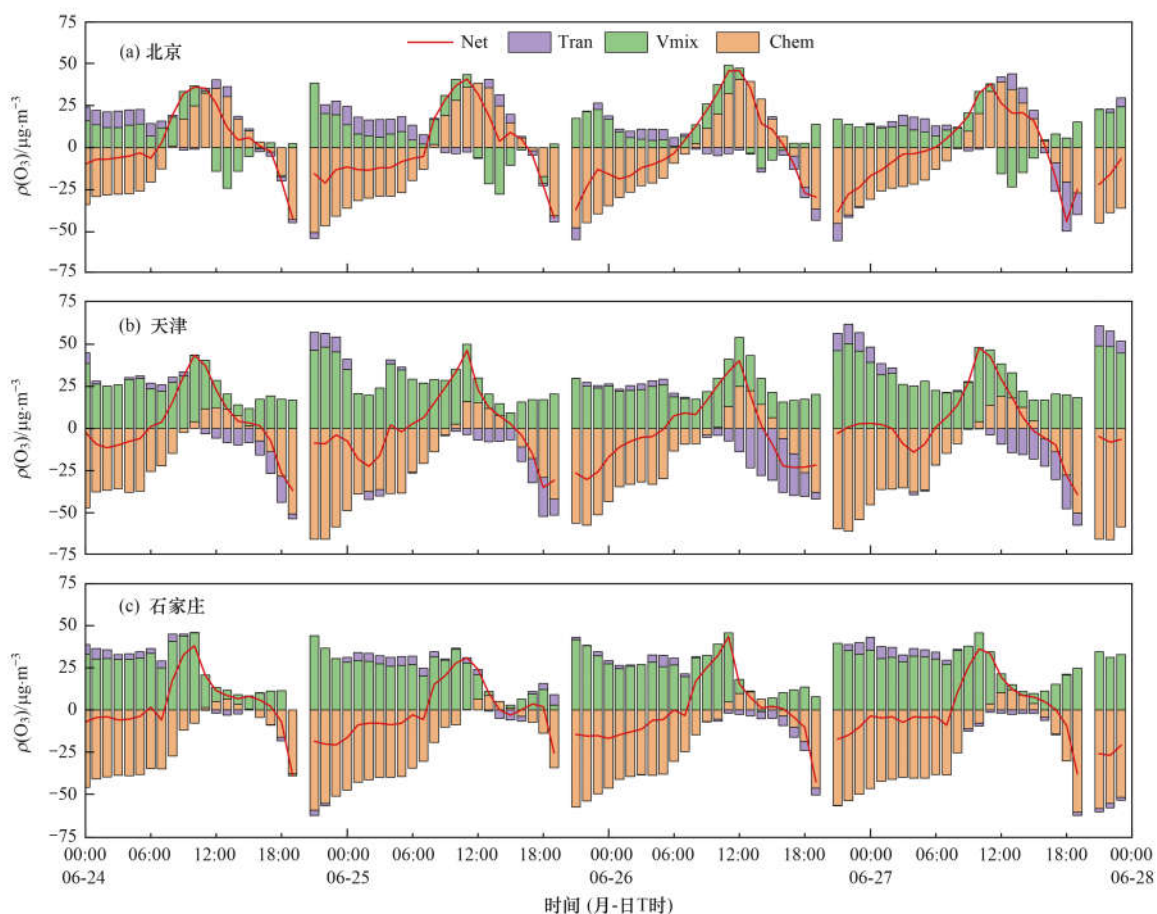


图7 6月24~27日年北京、天津和石家庄O₃浓度模拟净浓度和各物理化学过程小时值变化
Fig. 7 Hourly contribution of net ozone concentration and various physical and chemical processes to O₃ in Beijing, Tianjin, and Shijiazhuang during June 24-27

是化学过程(71.98%),其占比要高于其他城市.6月26日北京O₃峰值浓度为276 μg·m⁻³,明显高于天津(248 μg·m⁻³)和石家庄(249 μg·m⁻³),当日午后化学过程的贡献值达到最大(90.55%),同时垂直混合对北京O₃浓度的贡献相对较小,且基本表现为负贡献,输送对北京O₃浓度的贡献为负,这表明这一污染过程期间北京O₃主要来自于化学生成,且高浓度O₃向外传输.同期天津O₃主要来源于垂直混合(66.18%~75.3%),化学过程对天津的贡献先增后减,但是占比(43.59%~48.79%)低于北京.相比于北京和天津,垂直混合是夜间和上午石家庄O₃浓度增加的主要原因,午后其占比较低,特别是在13:00~15:00,化学过程成为O₃浓度增加的主要因子,其贡献占比为34.37%~79.45%.尽管如此化学过程对O₃浓度贡献的最大值仅为12 μg·m⁻³,远小于北京(35 μg·m⁻³)和天津(18 μg·m⁻³)同期,这可能与石家庄地区NO₂浓度较高,白天可能存在大量的NO_x滴定有关^[46].

有别于污染日京津冀主要处于偏南气团控制的

情况,清洁日下京津冀主要受到东南风或偏西风的影响,不同气团下臭氧及其前体物浓度差异较大,由此造成各城市化学过程贡献也不尽相同.除5月18日午后外,化学过程是北京地区O₃浓度增加的主要来源(61.6%)外,其他时间垂直混合都是造成北京O₃浓度增加的主要原因.与北京不同,大部分时间化学过程都是天津O₃浓度增加的主要原因(48.53%~57.85%),而垂直混合的贡献则相对较小.清洁日下化学过程对石家庄O₃浓度的贡献为负值,O₃浓度增加主要来自于垂直混合.清洁日与污染日下O₃浓度在很大程度上与化学过程的贡献值有关,高强度的化学生成量往往是推高午后O₃浓度的主要因素,在夜间或低辐射状态下,垂直混合的贡献直接影响O₃浓度.除个别时段外,输送对3个城市O₃浓度的影响较小,这可能与京津冀区域O₃污染具有区域性特征有关,各大城市在将高浓度O₃输送到下游地区的同时,也接受上游地区的输入,因此在表观上输送过程的净值一般较小,对O₃浓度的贡献占比也相应较低.

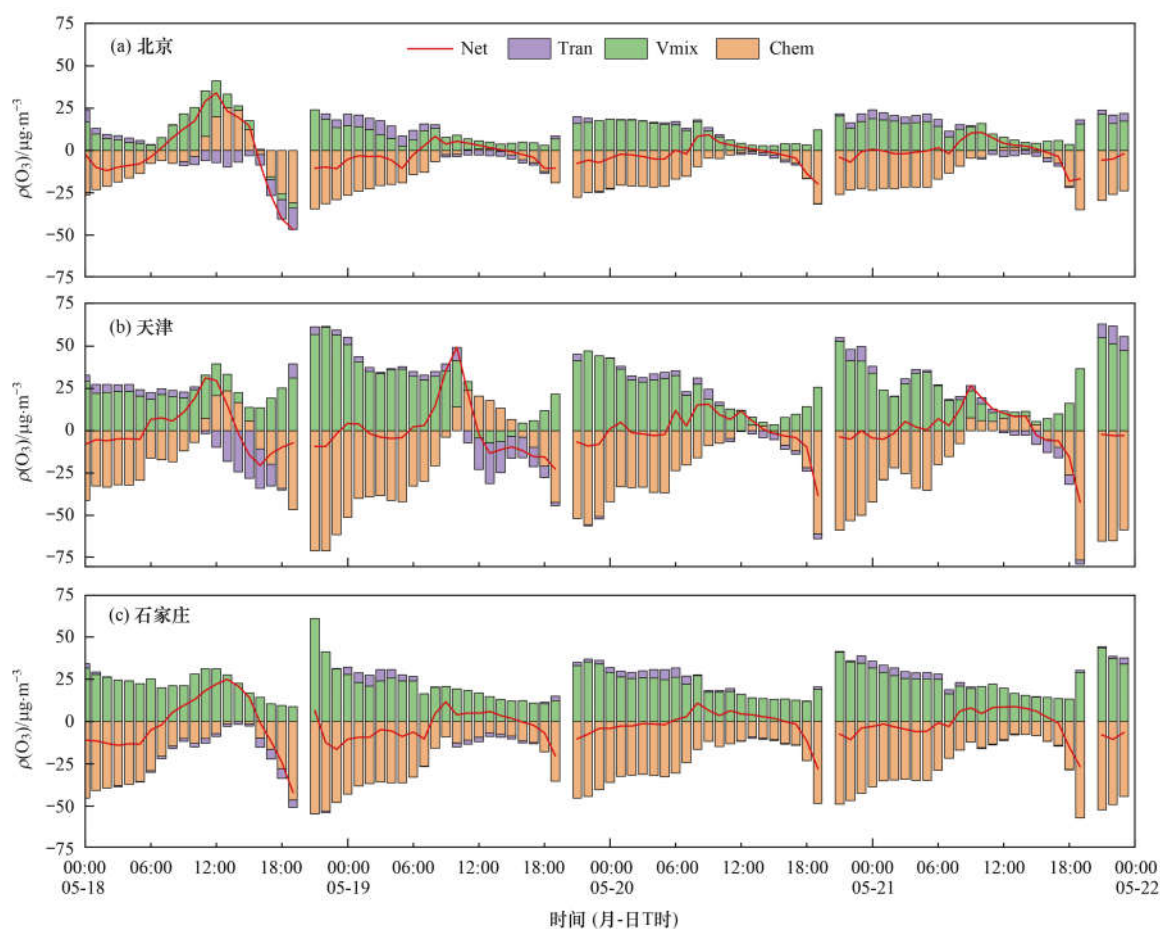


图8 5月18~21日年北京、天津和石家庄O₃浓度模拟净浓度和各物理化学过程小时值变化

Fig. 8 Hourly contribution of net ozone concentration and various physical and chemical processes to O₃ in Beijing, Tianjin, and Shijiazhuang during May 18-21

3 结论

(1) 2019年京津冀区域DMA8-O₃呈现南高北低和夏高冬低的形势. DMA8-O₃污染日主要集中在5~9月,北京、天津和石家庄5~9月有效观测日中DMA8-O₃超标日分别为73、76和86 d,占比为50%, 52%和59%.除冬季外,其它季节偏南风影响下3座城市O₃浓度相对较高;冬季西北风控制下,北京和天津的O₃浓度较高,石家庄O₃高浓度常发生在偏东风时.

(2) 基于模式模拟和过程分析表明,3座城市中,各个季节化学过程和垂直混合对O₃的贡献一致,前者表现为负贡献,后者为正贡献.夏季天津输送表现为负贡献,其他城市和季节均呈现为正贡献.在春夏午后O₃浓度的主要来源有所差别,北京为化学过程,天津和石家庄为垂直混合;输送项表明,天津和石家庄存在O₃净输出,北京为O₃净流入.5~9月,随着O₃污染等级升高,化学过程和垂直混合量减小而输送量增加.

(3) 通过对比O₃污染和清洁过程分析结果表

明,2019年6月24~27日污染过程中,化学过程主导北京和石家庄午后O₃浓度增加,天津则为垂直混合,此外,北京和石家庄存在O₃净输入,天津则为净输出;而2019年5月18~21日清洁过程中,垂直混合主导北京和石家庄午后O₃浓度增加,天津则为化学过程,同时,3座城市均存在O₃净输出.

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] 余益军,孟晓艳,王振,等.京津冀地区城市臭氧污染趋势及原因探讨[J].环境科学,2020,41(1):106-114.
Yu Y J, Meng X Y, Wang Z, et al. Driving factors of the significant increase in surface ozone in the Beijing-Tianjin-Hebei region, China, during 2013-2018[J]. Environmental Science, 2020, 41(1): 106-114.
- [3] 中华人民共和国生态环境部.2019中国生态环境状况公报[EB/OL].
<http://www.cnemc.cn/jcbg/zghjzkgb/202007/P020200716568022848361.pdf>, 2020-06-08.
- [4] 中华人民共和国生态环境部.2020中国生态环境状况公报

- [EB/OL]. <http://www.cnemc.cn/jcgb/zghjzkgb/202105/W020210527493805924492.pdf>, 2021-05-27.
- [5] Han S Q, Yao Q, Tie X X, *et al.* Analysis of surface and vertical measurements of O₃ and its chemical production in the NCP region, China[J]. *Atmospheric Environment*, 2020, **241**, doi: 10.1016/j.atmosenv.2020.117759.
- [6] 姚青, 韩素芹, 张裕芬, 等. 天津夏季郊区 VOCs 对臭氧生成的影响[J]. *环境科学*, 2020, **41**(4): 1573-1581.
Yao Q, Han S Q, Zhang Y F, *et al.* Effects of VOCs on ozone formation in the Tianjin suburbs in summer[J]. *Environmental Science*, 2020, **41**(4): 1573-1581.
- [7] Yang J B, Liu J L, Han S Q, *et al.* Study of the meteorological influence on ozone in urban areas and their use in assessing ozone trends in all seasons from 2009 to 2015 in Tianjin, China[J]. *Meteorology and Atmospheric Physics*, 2019, **131**(6): 1661-1675.
- [8] 王燕丽, 薛文博, 雷宇, 等. 京津冀地区典型月 O₃ 污染输送特征[J]. *中国环境科学*, 2017, **37**(10): 3684-3691.
Wang Y L, Xue W B, Lei Y, *et al.* Model-derived source apportionment and regional transport matrix study of ozone in Jingjinji[J]. *China Environmental Science*, 2017, **37**(10): 3684-3691.
- [9] Jacob D J, Winner D A. Effect of climate change on air quality[J]. *Atmospheric Environment*, 2009, **43**(1): 51-63.
- [10] He J J, Gong S L, Yu Y, *et al.* Air pollution characteristics and their relation to meteorological conditions during 2014-2015 in major Chinese cities[J]. *Environmental Pollution*, 2017, **223**: 484-496.
- [11] 姚青, 马志强, 林伟立, 等. 天津夏季边界层低层大气中 PAN 和 O₃ 的输送特征分析[J]. *环境科学*, 2019, **40**(1): 67-75.
Yao Q, Ma Z Q, Lin W L, *et al.* Transport characteristics of PAN and O₃ in the lower atmosphere of the boundary layer in Tianjin in summer[J]. *Environmental Science*, 2019, **40**(1): 67-75.
- [12] 王佳颖, 曾乐薇, 张维昊, 等. 北京市夏季臭氧特征及臭氧污染日成因分析[J]. *地球化学*, 2019, **48**(3): 293-302.
Wang J Y, Zeng L W, Zhang W H, *et al.* Characteristics and causes of summer ozone pollution in Beijing city[J]. *Geochimica*, 2019, **48**(3): 293-302.
- [13] 王占山, 李云婷, 安欣欣, 等. 2006~2015 年北京市不同地区 O₃ 浓度变化[J]. *环境科学*, 2018, **39**(1): 1-8.
Wang Z S, Li Y T, An X X, *et al.* Variation of O₃ concentration in different regions of Beijing from 2006-2015[J]. *Environmental Science*, 2018, **39**(1): 1-8.
- [14] 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.
- [15] 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.
- [16] Gu Y X, Yan F X, Xu J M, *et al.* A measurement and model study on ozone characteristics in marine air at a remote island station and its interaction with urban ozone air quality in Shanghai, China[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2020, **20**(22): 14361-14375.
- [17] Byun D W, Ching J K S. Science algorithms of the EPA models-3 community multiscale air quality (CMAQ) modeling system[M]. Washington, D. C.: U. S. Environmental Protection Agency, 1999.
- [18] Gao J, Zhu B, Xiao H, *et al.* Diurnal variations and source apportionment of ozone at the summit of Mount Huang, a rural site in Eastern China[J]. *Environmental Pollution*, 2017, **222**: 513-522.
- [19] 沈劲, 何灵, 程鹏, 等. 珠三角北部背景站臭氧浓度变化特征[J]. *生态环境学报*, 2019, **28**(10): 2006-2011.
Shen J, He L, Cheng P, *et al.* Characteristics of ozone concentration variation in the northern background site of the Pearl River Delta[J]. *Ecology and Environmental Sciences*, 2019, **28**(10): 2006-2011.
- [20] 李莉. 典型城市群大气复合污染特征的数值模拟研究[D]. 上海: 上海大学, 2012.
Li L. The numerical simulation of comprehensive air pollution characteristics in a typical city-cluster[D]. Shanghai: Shanghai University, 2012.
- [21] 张瑞欣, 陈强, 夏佳琦, 等. 乌海市夏季臭氧污染特征及基于过程分析的成因探究[J]. *环境科学*, 2021, **42**(9): 4180-4190.
Zhang R X, Chen Q, Xia J Q, *et al.* Exploring characteristics and causes of summer ozone pollution based on process analysis in Wuhai[J]. *Environmental Science*, 2021, **42**(9): 4180-4190.
- [22] 姚青, 马志强, 郝天依, 等. 京津冀区域臭氧时空分布特征及其背景浓度估算[J]. *中国环境科学*, 2021, **41**(11): 4999-5008.
Yao Q, Ma Z Q, Hao T Y, *et al.* Temporal and spatial distribution characteristics and background concentration estimation of ozone in Beijing-Tianjin-Hebei region[J]. *China Environmental Science*, 2021, **41**(11): 4999-5008.
- [23] Tao W, Su H, Zheng G J, *et al.* Aerosol pH and chemical regimes of sulfate formation in aerosol water during winter haze in the North China Plain[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2020, **20**(20): 11729-11746.
- [24] Su X, Tie X X, Li G H, *et al.* Effect of hydrolysis of N₂O₅ on nitrate and ammonium formation in Beijing China: WRF-Chem model simulation[J]. *Science of the Total Environment*, 2017, **579**: 221-229.
- [25] Chen D, Liu Z Q, Fast J, *et al.* Simulations of sulfate-nitrate-ammonium (SNA) aerosols during the extreme haze events over northern China in October 2014[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2016, **16**(16): 10707-10724.
- [26] Wang L T, Zhang Y, Wang K, *et al.* Application of weather research and forecasting model with chemistry (WRF/Chem) over Northern China: sensitivity study, comparative evaluation, and policy implications[J]. *Atmospheric Environment*, 2016, **124**: 337-350.
- [27] Zhou G Q, Xu J M, Xie Y, *et al.* Numerical air quality forecasting over eastern China: an operational application of WRF-Chem[J]. *Atmospheric Environment*, 2017, **153**: 94-108.
- [28] 周广强, 瞿元昊, 余钟奇. 长江三角洲城市臭氧数值预报与释用[J]. *中国环境科学*, 2021, **41**(1): 28-36.
Zhou G Q, Qu Y H, Yu Z Q. Numerical forecast and improvement of ozone over YRD cities[J]. *China Environmental Science*, 2021, **41**(1): 28-36.
- [29] 张亮, 朱彬, 高晋徽, 等. 长江三角洲夏季一次典型臭氧污染过程的模拟[J]. *环境科学*, 2015, **36**(11): 3981-3988.
Zhang L, Zhu B, Gao J H, *et al.* Modeling study of a typical summer ozone pollution event over Yangtze River Delta[J]. *Environmental Science*, 2015, **36**(11): 3981-3988.
- [30] 韩函. 大气传输与天气气候系统对东亚对流层臭氧的影响[D]. 南京: 南京大学, 2020.

- Han H. Influences of synoptic and climate systems on tropospheric ozone in East Asia through global transport of foreign pollution and meteorological processes [D]. Nanjing: Nanjing University, 2020.
- [31] 戚慧雯, 包云轩, 黄建平, 等. 夹卷对郊外大气边界层内臭氧影响的数值模拟研究[J]. 热带气象学报, 2018, **34**(5): 713-720.
- Qi H W, Bao Y X, Huang J P, *et al.* Numerical simulation of the impact of entrainment on ozone concentration in the rural atmospheric boundary layer[J]. Journal of Tropical Meteorology, 2018, **34**(5): 713-720.
- [32] 林莉文, 卞建春, 李丹, 等. 北京城区大气混合层内臭氧垂直结构特征的初步分析——基于臭氧探空[J]. 地球物理学报, 2018, **61**(7): 2667-2678.
- Lin L W, Bian J C, Li D, *et al.* Preliminary analysis on vertical distribution of ozone in the mixing layer over urban Beijing based on ozonesonde data[J]. Chinese Journal of Geophysics, 2018, **61**(7): 2667-2678.
- [33] 贾诗卉, 徐晓斌, 林伟立, 等. 华北平原夜间对流天气对地面 O₃ 混合比抬升效应[J]. 应用气象学报, 2015, **26**(3): 280-290.
- Jia S H, Xu X B, Lin W L, *et al.* Increased mixing ratio of surface ozone by nighttime convection process over the North China Plain [J]. Journal of Applied Meteorological Science, 2015, **26**(3): 280-290.
- [34] 贾海鹰, 尹婷, 翟霞, 等. 2015 年北京及周边地区臭氧浓度特征及来源模拟[J]. 中国环境科学, 2017, **37**(4): 1231-1238.
- Jia H Y, Yin T, Qu X, *et al.* Characteristics and source simulation of ozone in Beijing and its surrounding areas in 2015 [J]. China Environmental Science, 2017, **37**(4): 1231-1238.
- [35] 赵文龙. 广州地区海陆风条件下臭氧污染的数值模拟研究 [D]. 广州: 暨南大学, 2017.
- Zhao W L. Numerical simulation of ozone pollution in Guangzhou Area under sea-land breeze condition [D]. Guangzhou: Jinan University, 2017.
- [36] 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.
- [37] 杨帆, 王体健, 束蕾, 等. 青岛沿海地区一次臭氧重污染过程的特征及成因分析[J]. 环境科学学报, 2019, **39**(11): 3565-3580.
- Yang F, Wang T J, Shu L, *et al.* Characteristics and mechanisms for a heavy O₃ pollution episode in Qingdao coastal area[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2019, **39**(11): 3565-3580.
- [38] Moghani M, Archer C L, Mirzakhali A. The importance of transport to ozone pollution in the U. S. Mid-Atlantic [J]. Atmospheric Environment, 2018, **191**: 420-431.
- [39] Hu J, Li Y C, Zhao T L, *et al.* An important mechanism of regional O₃ transport for summer smog over the Yangtze River Delta in eastern China[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2018, **18**(22): 16239-16251.
- [40] 刘海知, 何立富. 2019 年 6 月大气环流和天气分析[J]. 气象, 2019, **45**(9): 1335-1340.
- Liu H Z, He L F. Analysis of the June 2019 atmospheric circulation and weather[J]. Meteorological Monthly, 2019, **45**(9): 1335-1340.
- [41] 王帅, 冯亚平, 崔建升, 等. 石家庄市臭氧污染的时空演变格局和潜在源区[J]. 环境科学学报, 2020, **40**(9): 3081-3092.
- Wang S, Feng Y P, Cui J S, *et al.* Spatio-temporal evolution patterns and potential source areas of ozone pollution in Shijiazhuang[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2020, **40**(9): 3081-3092.
- [42] 张利慧, 毋振海, 李斌, 等. 北京市城区春季大气挥发性有机物污染特征[J]. 环境科学研究, 2020, **33**(3): 526-535.
- Zhang L H, Wu Z H, Li B, *et al.* Pollution characterizations of atmospheric volatile organic compounds in spring of Beijing urban area[J]. Research of Environmental Sciences, 2020, **33**(3): 526-535.
- [43] 姜华, 常宏咪. 我国臭氧污染形势分析及成因初探[J]. 环境科学研究, 2021, **34**(7): 1576-1582.
- Jiang H, Chang H M. Analysis of China's ozone pollution situation, preliminary investigation of causes and prevention and control recommendations [J]. Research of Environmental Sciences, 2021, **34**(7): 1576-1582.
- [44] 胡洛铭, 李奕璇, 施念郁, 等. 京津冀地区臭氧浓度时空变化特征[J]. 环境科学与技术, 2019, **42**(11): 1-7, 39.
- Hu L M, Li Y X, Shi N F, *et al.* Spatio-temporal change characteristics of ozone concentration in Beijing-Tianjin-Hebei region[J]. Environmental Science and Technology, 2019, **42**(11): 1-7, 39.
- [45] Wang B, Qiu T, Chen B Z. Photochemical process modeling and analysis of ozone generation[J]. Chinese Journal of Chemical Engineering, 2014, **22**(6): 721-729.
- [46] 李慧, 王淑兰, 张文杰, 等. 京津冀及周边地区“2+26”城市空气质量特征及其影响因素[J]. 环境科学研究, 2021, **34**(1): 172-184.
- Li H, Wang S L, Zhang W J, *et al.* Characteristics and influencing factors of urban air quality in Beijing-Tianjin-Hebei and its surrounding areas (‘2+26’ cities) [J]. Research of Environmental Sciences, 2021, **34**(1): 172-184.

CONTENTS

Impacts of Changes in Meteorological Conditions During COVID-19 Lockdown on PM _{2.5} Concentrations over the Jing-Jin-Ji Region	QIU Yu-lu, CHEN Lei, ZHU Jia, <i>et al.</i> (2831)
Influence of COVID-19 Prevention and Control Measures on PM _{2.5} Concentration, Particle Size Distribution, Chemical Composition, and Source in Zhengzhou, China	 HUANG Bing-yi, WANG Shen-bo, HE Bing, <i>et al.</i> (2840)
Concentration Variation and Source Analysis of Metal Elements in PM _{2.5} During COVID-19 Control in Suzhou	MIAO Qing, YANG Qian, WU Ye-zheng, <i>et al.</i> (2851)
Changes in Carbonaceous Aerosol in the Northern Suburbs of Nanjing from 2015 to 2019	XIE Tian, CAO Fang, ZHANG Yan-lin, <i>et al.</i> (2858)
Source Apportionment of PM _{2.5} Based on Hybrid Chemical Transport and Receptor Model in Chongqing	PENG Chao, LI Zhen-liang, CAO Yun-qing, <i>et al.</i> (2867)
Analysis on the Characteristics of Oxidation Potential and Influence Sources of PM _{2.5} in Baoding City in Winter	WU Ji-yan, YANG Chi, ZAHNG Chun-yan, <i>et al.</i> (2878)
Pollution Characteristics and Sources of Water-soluble Organic Nitrogen in PM _{2.5} in Jiangbei New Area, Nanjing	GUAN Lu, DING Cheng, ZHANG Yu-xiu, <i>et al.</i> (2888)
Organic Aerosols and Source Analysis of Fine Particles in the Background of Shiwanda Mountain, Guangxi	XING Jia-li, CAO Fang, WANG Qian, <i>et al.</i> (2895)
Comparison of Regional Transportation and Transformation Models of Atmospheric Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Research on Key Influencing Factors: Take the Beijing-Tianjin-Hebei Region as Example	ZHANG Xin-lu, LIU Shi-jie, HAN Mei-li, <i>et al.</i> (2906)
Exploring Formation of Ozone in Typical Cities in Beijing-Tianjin-Hebei Region Using Process Analysis	TANG Ying-xiao, YAO Qing, CAI Zi-ying, <i>et al.</i> (2917)
Characteristics and Meteorological Factors of PM _{2.5} -O ₃ Compound Pollution in Tianjin	XIAO Zhi-mei, LI Yuan, KONG Jun, <i>et al.</i> (2928)
Spatio-temporal Characteristics of Air Quality and Influencing Factors in Shandong Province from 2016 to 2020	ZHOU Meng-ge, YANG Yi, SUN Yuan, <i>et al.</i> (2937)
Trend Changes in Ozone Pollution and Sensitivity Analysis of Ozone in Henan Province	YAN Yang-yang, YIN Sha-sha, HE Qin, <i>et al.</i> (2947)
Effects of Tropical Cyclones on Ozone Pollution in the Pearl River Delta in Autumn	ZHAO Wei, LÜ Meng-yao, LU Qing, <i>et al.</i> (2957)
Real-time Composition and Sources of VOCs in Summer in Wuhan	SU Wei-feng, KONG Shao-fei, ZHENG Huang, <i>et al.</i> (2966)
Pollution Characteristics and Source Apportionment of Atmospheric Volatile Organic Compounds in Summer in Yuncheng City	WEN Xiao-yu, ZHAO Wen-ting, LUO Shu-zhen, <i>et al.</i> (2979)
Neonicotinoid Insecticides Threaten Surface Waters at the National Scale in China	FAN Dan-dan, LIU Hong-ling, YANG Liu-yan (2987)
Spatiotemporal Distribution and Risk Assessment of Pharmaceuticals in Typical Drinking Water Sources in the Middle Reaches of the Yangtze River	 WU Jun-mei, WEI Lin, PENG Jing-qian, <i>et al.</i> (2996)
Pollution Characteristics and Risks of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Underground and Surface Drinking Water Sources in Northeast Inner Mongolia	 ZHANG Kun-feng, CHANG Sheng, FU Qing, <i>et al.</i> (3005)
Impact of Land Use Types at Different Scales on Surface Water Environment Quality and Its Driving Mechanism	SONG Jing-wen, ZHANG Xue-xia, JIANG Dong-yang, <i>et al.</i> (3016)
Shallow Groundwater Around Plateau Lakes: Spatiotemporal Distribution of Nitrogen and Its Driving Factors	LI Gui-fang, YANG Heng, YE Yuan-hang, <i>et al.</i> (3027)
Distribution and Potential Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in Sediments of Lake Qinghai	ZHANG Ya-ran, CHE Fei-fei, FU Zheng-hui, <i>et al.</i> (3037)
Analysis of Heavy Metal Pollution Characteristics and Potential Ecological Risks of Surface Sediments in Dongjiang Lake	ZHAO Xiao-liang, LI Xiang, LU Hong-bin, <i>et al.</i> (3048)
Kinetic Release Characteristics of Organic Phosphorus of Sediment-water and Water Quality Risks	LIU Zhe-zhe, NI Zhao-kui, LIU Si-ru, <i>et al.</i> (3058)
Distribution Characteristics, Source Analysis, and Pollution Evaluation of Organic Matter in Surface Sediments of Qingpu District, Yangtze River Delta Integration Demonstration Area	 ZHANG Zhi-bo, DUAN Yan-ping, TU Yao-jen, <i>et al.</i> (3066)
Distribution Characteristics of Microplastics and Their Migration Patterns in Xiangxi River Basin	CHEN Sheng-sheng, LI Wei-ming, ZHANG Kun, <i>et al.</i> (3077)
Community Structure and Microbial Function Responses of Biofilms Colonizing on Microplastics with Vertical Distribution in Urban Water	 CHEN Yu-fang, YAN Zhen-hua, ZHANG Yan, <i>et al.</i> (3088)
Community Structure of Phytoplankton and Environmental Impact Factors in Lake Hongze from 2015 to 2020	QU Ning, DENG Jian-ming, ZHANG Zhen, <i>et al.</i> (3097)
Structural Characteristics of Zooplankton and Phytoplankton Communities and Its Relationship with Environmental Factors in Different Regions of Nanhu Lake in Jiaxing City	 WANG Ya-wen, LI Ying-he, ZHANG Bo, <i>et al.</i> (3106)
Temporal and Spatial Variation Characteristics and Source Analysis of Agricultural Non-point Source Pollution Load in Guangdong During the Past 20 Years	 GE Xiao-jun, HUANG Bin, YUAN Zai-jian, <i>et al.</i> (3118)
Output Characteristics and Driving Mechanism of Agricultural Non-point Source (AGNPS) Pollutant in Plain and Valley Region of Upper Yangtze River, China	 TAN Shao-jun, LIU Yang, ZHU Xiao-jie, <i>et al.</i> (3128)
Risk Assessment Method of Non-point Source Pollution Output for Watershed Using High Resolution Data	GU Jing-jing, YE Yun-tao, DONG Jia-ping, <i>et al.</i> (3140)
Spectral Characteristics Change in Dissolved Organic Matter in Urban River Under the Influences of Different Intensities of Non-point Source Pollution	CHEN Xu-dong, GAO Liang-min (3149)
Combination of Ecological Ditch and Bioretention Pond to Control Rural Runoff Pollution	SHI Lei, YANG Xiao-li, WU Qing-yu, <i>et al.</i> (3160)
Influence of Different Hydraulic Disturbance Intensities on the Migration of Aged PSMPs Between Sediment and Water	WU Xiang-xiang, AI Ping, LI Da-peng (3168)
Analysis of Pollution Characteristics and Sources of Rainfall Runoff from Roofs in the Central District of Beijing	XI Yue, GUO Jing, TAO Lei, TIAN Ying, <i>et al.</i> (3177)
Inter-annual Changes in Runoff Quality from Green Roofs with Different Vegetation	ZHANG Sun-xun, ZHANG Shou-hong, GE De, <i>et al.</i> (3187)
Effectivity of Multiphase Fenton-like System of Iron Reduction Induced by Bisphenol A Authigenic Photoelectron	CAO Si-yu, XU Lu, FU Quan-chao, <i>et al.</i> (3195)
Removal Characteristics of Four Typical Antibiotics in Denitrification System	TANG Jia, CHEN Xi, QIN Mu-chuan, <i>et al.</i> (3204)
Adsorption Capacity and Mechanism of Biochar Derived from Typical Agricultural Wastes for Cadmium in Aqueous Solutions	GONG Pei-yun, SUN Li-juan, SONG Ke, <i>et al.</i> (3211)
Effect of Humic Acid-Heavy Metals on the Nitrogen Removal Performance of ANAMMOX Bacteria and Its Kinetic Analysis	LI Yun, CUI Nan, XIONG Xing-xing, <i>et al.</i> (3221)
Responding Mechanism of Vegetation Cover to Climate Change and Human Activities in Southwest China from 2000 to 2020	XU Yong, HUANG Wen-ting, DOU Shi-qing, <i>et al.</i> (3230)
Spatial Distribution and Eco-stoichiometric Characteristics of Soil Nutrient Elements Under Different Vegetation Types in the Yellow River Delta Wetland	 SUN De-bin, LI Yun-zhao, YU Jun-bao, <i>et al.</i> (3241)
Distribution Characteristics and Source Apportionment of Perfluoroalkyl Substances in Surface Soils of the Northeast Tibetan Plateau	 WEN Xiang-jie, CHEN Zhao-hui, XU Wei-xin, <i>et al.</i> (3253)
Effect of Land Use/Land Cover Change on the Concentration of Se and Heavy Metals in Soils from a "Return Cropland to Forest" Area, Southwest China	 LIU Yong-lin, LIU Shu-ling, WU Mei, <i>et al.</i> (3262)
Speciation Characteristics and Risk Assessment of Soil Heavy Metals from Puding Karst Critical Zone, Guizhou Province	 ZHANG Qian, HAH Gui-lin (3269)
Distribution Characteristics and Influencing Factors of Germanium in Soil in the Eastern Mountainous Area of the Nanyang Basin	DONG Qiu-yao, LAI Shu-ya, SONG Chao, <i>et al.</i> (3278)
Heavy Metal Pollution Characteristics and Risk Assessment of Golden Snub-nosed Monkey (<i>Rhinopithecus roxellana</i>) Habitat in Shennongjia Mountains	 YAN Jia-li, YU Zi-ling, YU Hui-liang, <i>et al.</i> (3288)
Utilization and Remediation of Heavily Cadmium-Contaminated Agricultural Soils by Two Crop Rotation Patterns After Lime and Sepiolite Passivation	 XU Lu, ZHOU Chun-hai, LIU Mei, <i>et al.</i> (3299)
Effects of Phosphorus Sufficiency and Deficiency on Cadmium Uptake and Transportation by Rice	TAN Wen-tao, HUO Yang, ZHOU Hang, <i>et al.</i> (3308)
Responses of Cd Accumulation in Rice and Spectral Characteristics of Soil Dissolved Organic Matter Regulated by Soil Amendments	LUO Hui-long, CHEN Juan, ZHANG Yun-hui, <i>et al.</i> (3315)
Responses of Soil Fungal Communities to Subalpine Meadow Degradation in Mount Wutai	LUO Zheng-ming, HE Lei, LIU Jin-xian, <i>et al.</i> (3328)
Response of Soil Fungal Communities in Diversified Rotations of Wheat and Different Crops	JIN Hai-yang, YUE Jun-qin, YAN Ya-qian, <i>et al.</i> (3338)
Spatial Characterization of Stable Isotope Composition of Organic Carbon from Farmland Soils in Chongqing	LIAO Yu-qin, LONG Juan, MU Zhi-jian, <i>et al.</i> (3348)
Characteristics of Soil NO Emissions in the Yangtze River Delta Region for Year 2018	LIAO Jia-qiang, XUE Jin, WANG Wen-jin, <i>et al.</i> (3357)
Thermal Environment Evolution and Response Mechanism of Urban Sprawl Based on Multi-source Data	LIANG Jian-she, BAI Yong-ping, YANG Xue-di, <i>et al.</i> (3365)