

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

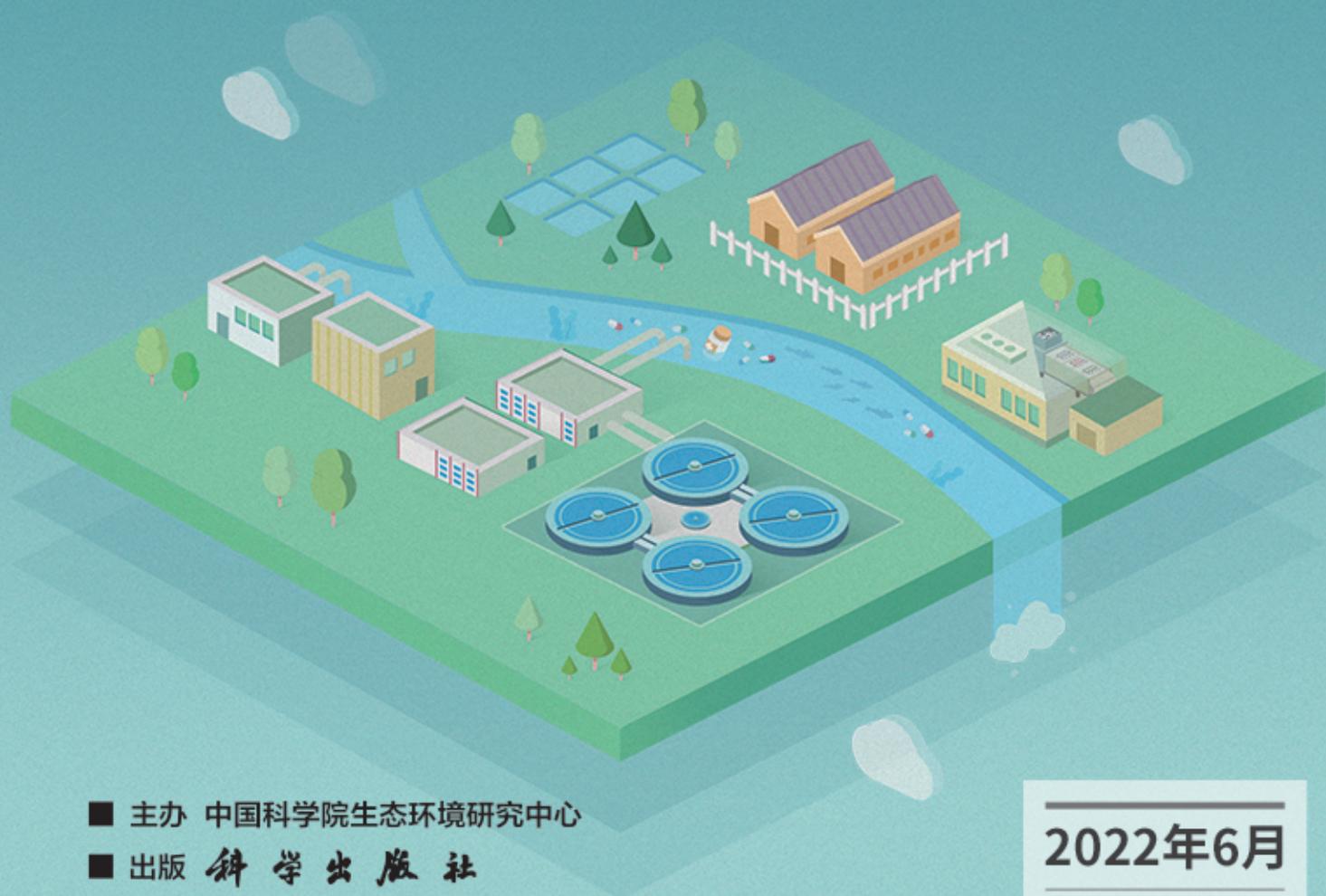
ENVIRONMENTAL SCIENCE

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, 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, 林煜祺, 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}-O₃ 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)

运城市区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水-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, 王思璐, 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, 崔景阳, 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, 蒋钟钟, 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, 徐苏士, 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, 田兴鑫, 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)

石灰海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, 杨雪菡, 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)

河南省臭氧污染趋势特征及敏感性变化

晏洋洋¹, 尹沙沙^{2*}, 何秦³, 秦凯³, 张瑞芹²

(1. 郑州大学化学学院, 郑州 450001; 2. 郑州大学生态与环境学院, 郑州 450001; 3. 中国矿业大学环境与测绘学院, 徐州 221008)

摘要: 基于环境空气质量站点数据及卫星遥感数据, 研究了河南省近地面臭氧(O₃) 2015~2020年变化特征、趋势和生成敏感性。结果表明, 2015~2020年, 河南省近地面O₃浓度先上升后下降, 2018年浓度最高, O₃日最大8h滑动平均值(MDA8)年均值为110.70 μg·m⁻³, 各站点间的MDA8值差异逐渐缩小; 河南省月均MDA8时间序列表现为上升趋势, 增长速率为2.46 μg·(m³·a)⁻¹, 经Mann-Kendall趋势检验, 除漯河、南阳和平顶山市外其它地市上升趋势均具有显著性意义(P<0.05); 6年间四季MDA8浓度也呈增长趋势, 增长大小为: 秋季(19.31%)>冬季(17.09%)>春季(16.82%)>夏季(7.24%); 2015~2019年河南省对流层NO₂高值集中在西北部, 浓度呈下降趋势, 下降速率为0.34×10¹⁵ molecules·(cm²·a)⁻¹, 对流层HCHO呈缓慢上升趋势, 年增速为0.19×10¹⁵ molecules·(cm²·a)⁻¹, 空间上北部城市城区浓度较高; O₃生成敏感性控制区表明, 河南省东部大部分城市属于VOCs控制区。

关键词: 臭氧(O₃); 变化趋势; 趋势检验; 臭氧监测仪(OMI); 敏感性

中图分类号: X515 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2022)06-2947-10 DOI: 10.13227/j.hjcx.202108287

Trend Changes in Ozone Pollution and Sensitivity Analysis of Ozone in Henan Province

YAN Yang-yang¹, YIN Sha-sha^{2*}, HE Qin³, QIN Kai³, ZHANG Rui-qin²

(1. College of Chemistry, Zhengzhou University, Zhengzhou 450001, China; 2. School of Ecology and Environment, Zhengzhou University, Zhengzhou 450001, China; 3. School of Environment and Spatial Informatics, China University of Mining and Technology, Xuzhou 221008, China)

Abstract: Based on air quality station data and satellite remote sensing data, the interannual variation characteristics and seasonal variation trends of near-surface ozone (O₃) in Henan province were studied, and the variation in O₃ sensitivity was analyzed. The results showed that the O₃ concentration near the surface of Henan province increased first and then decreased from 2015 to 2020. The highest O₃ concentration was found in 2018, and the annual mean of the maximum daily 8 h moving mean (MDA8) of O₃ was 110.70 μg·m⁻³. The difference in MDA8 values among different stations gradually decreased. From 2015 to 2020, the average monthly MDA8 in Henan province showed an upward trend, with a growth rate of 2.46 μg·(m³·a)⁻¹. According to the MK trend test, except for in Luohe, Nanyang, and Pingdingshan, the rising trend in other cities was significant (P<0.05). The concentration of MDA8 in the four seasons also showed an increasing trend during the 6 years as follows: autumn (19.31%)>winter (17.09%)>spring (16.82%)>summer (7.24%). From 2015 to 2019, the high value of tropospheric NO₂ was concentrated in the northwest of Henan province, and the concentration showed a decreasing trend with a decreasing rate of 0.34×10¹⁵ molecules·(cm²·a)⁻¹, whereas the tropospheric HCHO showed a slow rising trend with an annual growth rate of 0.19×10¹⁵ molecules·(cm²·a)⁻¹, with a higher concentration in the northern urban area. The O₃ sensitivity control area from 2015 to 2019 showed that most of the eastern part of Henan province belonged to the VOCs limited category.

Key words: ozone (O₃); variation trend; trend test; ozone monitoring instrument (OMI); sensitivity

近地面O₃是由挥发性有机化合物(VOCs)和氮氧化物(NO_x)经过光化学反应产生的^[1],是大气中主要的污染物之一,暴露于高浓度的O₃环境中可使人类呼吸系统造成损害、作物减产和生态系统遭到破坏^[2~4].自2013年,我国启动大气污染防治行动计划以来,颗粒物污染问题开始得到逐渐缓解,然而O₃浓度不降反升^[5],O₃污染问题愈发突出.因此,近地面O₃污染成因已经成为目前的研究热点.

研究O₃污染特征是控制O₃污染的基础,短期内O₃的日变化、周末效应和季节性变化在全世界范围内大同小异,因此,有研究利用长期观测数据对不同区域的长期趋势进行分析^[6].如,余益军等^[7]的研究发现2013~2018年京津冀地区O₃普遍低于长三角城市,但各城市O₃污染迅速加剧;张小娟等^[8]的研究发现2011~2016年上海市O₃_8h年

均增速为3.8 μg·m⁻³,O₃_8h第99%和95%百分位数增速较快;也有研究表明2014~2018年广州市O₃以(0.51±0.08)×10⁻⁹ a的速度增长^[9].O₃污染控制策略制定的有效性需考虑其生成是受VOCs控制还是NO_x控制^[10],HCHO/NO₂的值可作为识别O₃控制区的指标^[11],OMI卫星产品中HCHO和NO₂应用广泛,与地面测量值相比,OMI卫星产品可提供大范围且长时期数据.武卫玲等^[12]的研究运用对流层OMI反演产品,对多年6~9月京津冀O₃高发时段O₃敏感性进行分析,发现中心城市及工业较发达地区为VOCs控制区;赵伟等^[13]的研究发现随

收稿日期: 2021-08-26; 修订日期: 2021-11-05

基金项目: 国家重点研发计划项目(2017YFC0212403); 国家自然科学基金青年科学基金项目(41907187)

作者简介: 晏洋洋(1996~),男,硕士研究生,主要研究方向为大气污染防治, E-mail: 2831295845@qq.com

* 通信作者, E-mail: shashayin@zzu.edu.cn

着前体物浓度的变化,珠三角 VOCs 控制区面积不断减少,协同控制区和 NO_x 控制区面积逐渐增加;其他研究也表明,VOCs 控制区主要集中在较为发达的城市地区, NO_x 控制区主要集中在城市的郊区和农村地区^[14,15].

目前,河南省关于 O_3 污染的研究主要集中在短时间尺度,Yu 等^[16]和齐艳杰等^[17]分别以 2015 ~ 2016 年和 2017 年为研究时段,对河南省 O_3 污染特征进行分析,或重点研究郑州^[18]和安阳^[19]等典型城市,对河南省及各城市多年 O_3 污染长期趋势变化的研究涉及较少,利用卫星观测进行 O_3 敏感性分析还较为缺乏,全面和准确评价近几年河南省 O_3 时空变化趋势显得十分迫切.本文基于 2015 ~ 2020 年河南省 52 个空气质量国家控制站点 O_3 监测数据,利用多种统计学方法,分析河南省及各城市 O_3 污染趋势及时空变化,并基于 OMI 遥感数据分析对流层 NO_2 和甲醛(HCHO)垂直柱浓度,分析 O_3 - NO_2 -VOC 敏感性,以期为河南省 O_3 污染防治提供科学支撑.

1 材料与方法

1.1 数据来源

2015 ~ 2020 年 O_3 小时数据从相关网站获取(<https://quotsoft.net/air/>),2017 ~ 2020 年部分站点进行调整.为保证数据的连续性,仅使用 2015 ~ 2020 年有连续数据的站点,共 52 个,站点分布如图 1 所示.气象数据来自欧洲中期数值预报中心,选取 10 m 高横向风(u_{10}) (正值表示风向由西向东,负值反之)、纵向风(v_{10}) (正值表示风向由南向北,负值反之)、近地面压强、温度和降水量这 5 个气象因子的逐小时数据,并求日均值.

2015 ~ 2019 年对流层 NO_2 和 HCHO 垂直柱浓度数据源于 OMI 卫星反演的 3 级产品,数据产品来

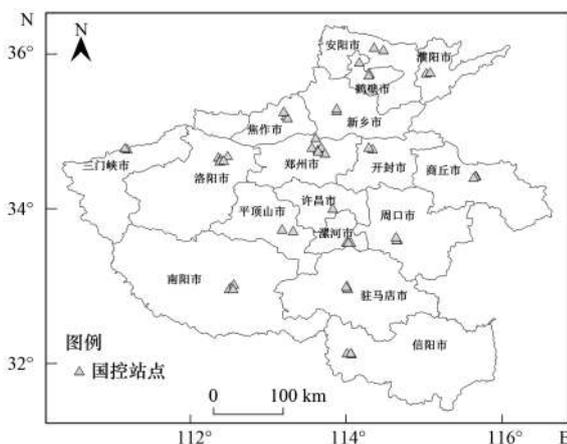


图 1 河南省 52 个空气质量站点示意

Fig. 1 Distribution of 52 air quality monitoring stations in Henan province

自 QA4ECV 项目,可从相关网站进行下载(<http://www.qa4ecv.eu>). NO_2 和 HCHO 的空间分辨率分别为 $0.125^\circ \times 0.125^\circ$ 和 $0.05^\circ \times 0.05^\circ$. 本文使用 ArcGIS 软件先将月均 HCHO 数据重新网格化为 $0.125^\circ \times 0.125^\circ$ 与 NO_2 分辨率保持一致^[11],后对栅格数据进行反距离加权插值.

1.2 分析方法

1.2.1 de-seasonalized 和 de-cyclical 统计方法

长期范围内的时间序列由多个周期长短不同的时间序列组成,会导致一些周期较长的时间序列变化规律被较短周期剧烈的波动变化所掩盖,因此需要对不同的时间序列进行剥离^[5]. 时间序列通常由 4 种成分组成:长期趋势分量(T)、季节分量(S)、循环分量(C)和不规则分量(I),本文中 O_3 最大 8h (MDA8)月均值时间序列 Y_t 可设为^[20]:

$$Y_t = (S_t + C_t) \times (T_t + I_t) \quad (1)$$

式中, t 为时间(月), S_t 、 C_t 、 T_t 和 I_t 分别为 MDA8 月均值的季节、循环、长期趋势和不规则时间序列.

基本上,季节变化可以通过正弦或余弦序列来模拟,然而处于简单化考虑可以将季节变化和循环变化作为一个含月缩放因子的部分组合在一起,记为 MI_t ,可通过滑动平均计算得到,时间序列变为:

$$Y_t = \text{MI}_t \times (T_t + I_t) \quad (2)$$

Y'_t 被定义为 de-seasonalized 和 de-cyclical 序列,计算公式为:

$$Y'_t = C_t / \text{MI}_t = T_t + I_t \quad (3)$$

长期趋势(T_t) 假定为线性, O_3 趋势线计算公式为:

$$T'_t = T_1 \times t + T_0 \quad (4)$$

式中, T_1 和 T_0 为常数.

1.2.2 Mann-Kendall 趋势检验法

为探究 de-seasonalized 和 de-cyclical 时间序列是否具有显著性意义,运用 Mann-Kendall 非参数统计方法来进行检验,该方法能有效区分某一自然过程是处于自然波动还是存在确定的变化趋势以及趋势的统计学显著性意义^[13,20]. 本文分别对 2015 ~ 2020 年 de-seasonalized 和 de-cyclical 时间序列及 MDA8 原始月均值时间序列进行对比检验^[21],Mann-Kendall 趋势检验具体算法如下:

$$S = \sum_{i=1}^{n-1} \sum_{j=i+1}^n \text{sgn}(x_j - x_i) \quad (5)$$

式中, n 为数据序列长度, $\text{sgn}(x_j - x_i)$ 为符号函数,其计算公式如下:

$$\text{sgn}(x_j - x_i) = \begin{cases} +1, & (\text{if } x_j - x_i > 0) \\ 0, & (\text{if } x_j - x_i = 0) \\ -1, & (\text{if } x_j - x_i < 0) \end{cases} \quad (6)$$

根据样本数量的不同,显著性检验有所不同,当 $n > 10$ 时,计算标准正态分布统计量 Z_s ,其计算公式如下:

$$Z_s = \begin{cases} \frac{s-1}{\sqrt{\text{Var}(s)}}, & (s > 0) \\ 0, & (s = 0) \\ \frac{s+1}{\sqrt{\text{Var}(s)}}. & (s < 0) \end{cases} \quad (7)$$

其中 $\text{Var}(s)$ 计算公式如下:

$$\text{Var}(s) = \left[n(n-1)(2n+5) - \sum_{i=1}^m t_i(t_i-1)(2t_i+5) \right] / 18 \quad (8)$$

式中, n 为序列中数据个数, m 为序列中结(重复出现的数据组)的个数, t 为结的宽度(即第 i 组重复数组中的重复个数). 采用双侧检验,在 $P = 0.05$ 显著水平下, Z 的临界值为 1.96 或 -1.96,如果 Z 为负且绝对值大于显著性水平 ($|Z| > 1.96$),则认为趋势是递减的;如果 Z 为正且大于显著性水平,则认为趋势是递增的. 如果 Z 的绝对值小于显著性水平,则不存在趋势^[22].

1.2.3 O_3 生成敏感性指示剂

基于卫星数据产品得到的 O_3 生成敏感性(FNR)计算公式如下:

$$\text{FNR} = c(\text{HCHO})/c(\text{NO}_2) \quad (9)$$

式中, $c(\text{HCHO})$ 为该网格内的 HCHO 柱浓度; $c(\text{NO}_2)$ 为该网格内的 NO_2 柱浓度. 最早 FNR 阈值是在美国由 Duncan 等^[24] 结合模型和 OMI 卫星反演数据测量得到, FNR 小于 1 表示 O_3 受 VOCs 控制, FNR 大于 2 表示 O_3 受 NO_x 控制, 介于 1 和 2 之间时, O_3 受 VOCs- NO_x 协同控制. 然而,这种阈值划

分并不一定适用于我国,我国大气中气溶胶显著高于美国^[24],气溶胶可成为自由基的汇,从而使 O_3 生成偏向 VOCs 控制区^[9]. 有研究结果表明,中国地区 O_3 生成敏感性协同控制区 FNR 阈值在 2.3~4.2 之间,小于 2.3 代表 VOCs 控制区,大于 4.2 表示 O_3 受 NO_x 控制^[10]. 本文将 FNR 值划分为 4 个等级分别为: 0~1、1~2、2~3 和 3~4, FNR 值小于 2 的区域为 VOCs 控制区.

2 结果与讨论

2.1 年际臭氧变化特征

图 2 展示了 2015~2020 年河南省 52 个站点 MDA8 年均值的空间分布. 2015 年 O_3 浓度高值点出现在河南省中部,分别为漯河市和平顶山市(LP),两地 MDA8 均值为 $111.33 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,其余城市(RC)均值为 $90.66 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$; 2018 年 MDA8 浓度全面上升,全省 MDA8 浓度介于 $97.56 \sim 119.53 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 之间,原本 O_3 浓度较低的北部和东南区域转变为高浓度地区, 2019 年和 2020 年各站点 O_3 浓度均小幅下降. 整体而言, O_3 浓度高值分布区域逐渐扩大,各站点之间的 MDA8 浓度差异逐渐缩小, 2015、2018 和 2020 年所有站点之间浓度标准偏差分别为 13.02 、 4.53 和 $4.64 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, O_3 浓度高值分布区域逐渐扩大.

此外,各站点年均 MDA8 超标 ($\text{MDA8} > 160 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) 天数占比分布如图 3 所示. 可以看出, MDA8 高浓度站点超标率同样较高,并且随着时间的推移 MDA8 超标率由北向南降低的趋势越来越明显.

河南省地势西高东低,北、西、南三面由太行山、伏牛山、桐柏山和大别山沿省界呈半环形分

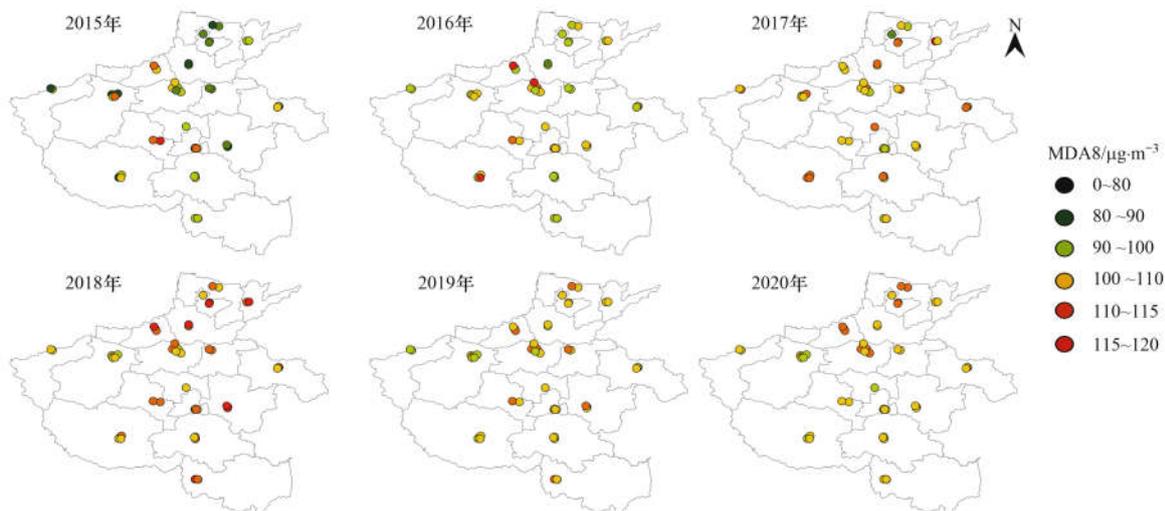


图 2 2015~2020 年 MDA8 空间分布

Fig. 2 Spatial distribution of MDA8 from 2015 to 2020

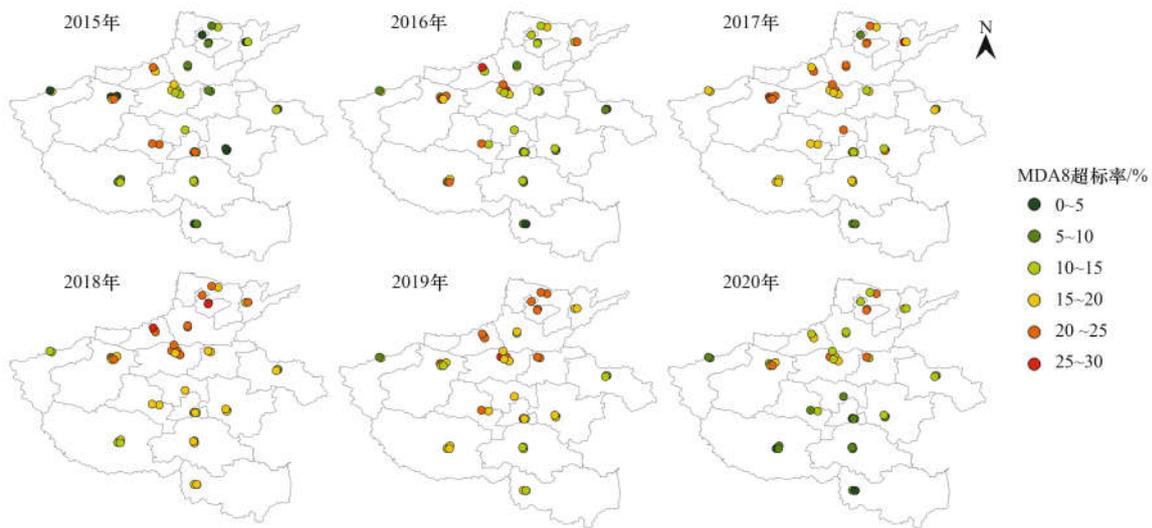


图 3 2015 ~ 2020 年 MDA8 超标率空间分布

Fig. 3 Spatiotemporal distributions of exceedance ratio of MDA8 from 2015 to 2020

布,LP 位于河南省中部,其中平顶山市位于伏牛山脉末端,三面环山,东部为平原,漯河位于其东部与其相邻.图 4(a)为 2015 年 LP 与 RC 的 MDA8 月均值差值,可以看出在夏季和秋季 LP 的 MDA8 浓度显著高于 RC,表 1 为 2015 年 5 ~ 10 月 LP 与 RC 气象因素的对比.可以发现,5 ~ 8 月河南省受东南方向季风影响,9 ~ 10 月受东北方向季风影响, u_{10} 风速显著高于 v_{10} ,与其余地市相比,LP 的 v_{10} 风速更低压强更高,较强的东风和较弱的 v_{10} 加之特殊的地形导致 2015 年两地 MDA8 浓度较高.此外,图 4(a)为 6 年间气象因素变化.可以看出,2018 年降水量低于 2019 年,其它气象因子年际变化较小,2018 年 O_3 浓度最高可能与当年前体物的排放有关.

2019 和 2020 年处于“十三五”末期,为“打赢蓝天保卫战”,河南省加强了对于污染物排放的管控.2019 年郑州市举办少数民族运动会,期间颁布了《臭氧污染天气强化管控实施方案》,对郑州及其周

边城市进行了强力管控,期间 PAMS、 NO_2 和 O_3 浓度较 2018 年同期分别下降 18.7%、32.1% 和 3.7%^[25];此外,据 2016 ~ 2019 年河南省机动车排放清单显示,4 年间 NO_x 逐年降低,VOCs 排放量在 2018 年达到峰值,2019 年有所下降^[26].2020 年受新冠疫情影响,污染物排放量大幅度降低^[27,28],虽然疫情期间温度上升、 $PM_{2.5}$ 浓度下降和光强增大导致河南省 O_3 浓度有所上升^[29],但长时间尺度上,前体物排放量的降低必然导致 O_3 浓度下降^[30].此外,2020 年河南省国民经济和社会发展统计公报显示,全年第二产业较于 2019 年增长 0.7%,第一和第三产业增长分别为 1.3% 和 1.6%,而 2015 ~ 2019 年第二产业增长均大于 7.0%.2019 和 2020 年 O_3 浓度的下降可能是由于前体物排放量降低的结果.

2.2 年际变化趋势分析

由图 5(a)可以看出,河南省 MDA8 月平均浓度

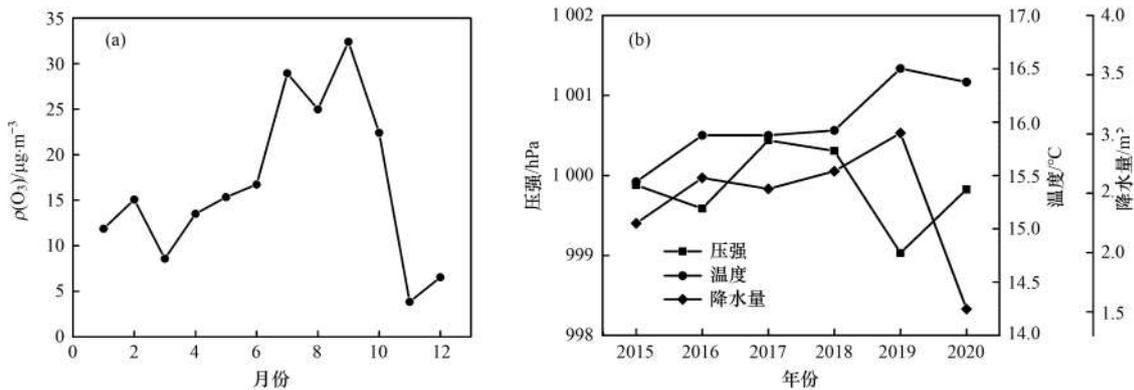


图 4 2015 年漯河和平顶山与其它城市 MDA8 月均浓度差值及 2015 ~ 2020 年各气象因子变化

Fig. 4 Average concentration differences between Luohe and Pingdingshan and other cities in August 2015 and the changes in meteorological factors from 2015 to 2020

表 1 2015 年 5 ~ 10 月 LP 与 RC 的气象因素变化

Table 1 Comparison of meteorological factors between LP and RC from May to October 2015

月份	RC					LP				
	MDA8 / $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	温度 / $^{\circ}\text{C}$	u_{10} / $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$	v_{10} / $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$	压强 /hPa	MDA8 / $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	温度 / $^{\circ}\text{C}$	u_{10} / $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$	v_{10} / $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$	压强 /hPa
5	127.58	27.15	-0.39	0.47	990.27	144.97	27.88	-0.50	0.15	997.23
6	128.87	29.35	-0.49	0.29	987.09	147.83	28.99	-0.65	0.01	994.14
7	116.92	30.89	-0.82	0.78	987.07	149.73	30.75	-0.80	0.64	993.99
8	118.07	29.99	-0.78	0.22	989.73	146.37	30.74	-0.87	-0.08	996.51
9	103.09	25.91	-1.14	-0.15	996.64	139.85	26.58	-1.33	-0.29	1 003.33
10	83.45	22.28	-0.17	-0.03	1002.10	108.84	23.28	-0.18	-0.16	1 009.01

呈现明显的季节性和周期性变化特征. MDA8 最大值出现在每年的 6 月, 最小值出现在 12 月, 2016 和 2020 年 MDA8 月变化呈现明显的双峰结构, 即在 9 月 MDA8 浓度会有所上升, 2018 年 MDA8 达到峰值. 图 5 (b) 为 2015 ~ 2020 年 Y'_t 时间序列以及 MDA8 趋势线, 趋势线斜率为 0.36, 表明 2015 ~ 2020 年河南省 MDA8 呈上升趋势, 平均增速为 $2.46 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{a})^{-1}$. 有研究表明 2013 ~ 2019 年我国 O_3 浓度增速为 $2 \sim 4 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{a})^{-1}$ [31], 本结果与其较

为一致.

将 MDA8 浓度达到峰值的 2018 年作为中间点, 把时间序列分为 2015 ~ 2018 年及 2018 ~ 2020 年两段, Y'_t 时间序列及趋势线分别如图 5 (c) 和图 5 (d) 所示. 图 5 (c) 中, 2015 ~ 2018 年之前 MDA8 增长趋势较 2015 ~ 2020 年更为显著, 趋势线斜率为 0.61, 增速为 $6.75 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{a})^{-1}$; 图 5 (d) 中 MDA8 趋势线斜率为 -0.23 , 表明 2018 ~ 2020 年 MDA8 呈下降趋势, 下降速率为 $4.39 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{a})^{-1}$.

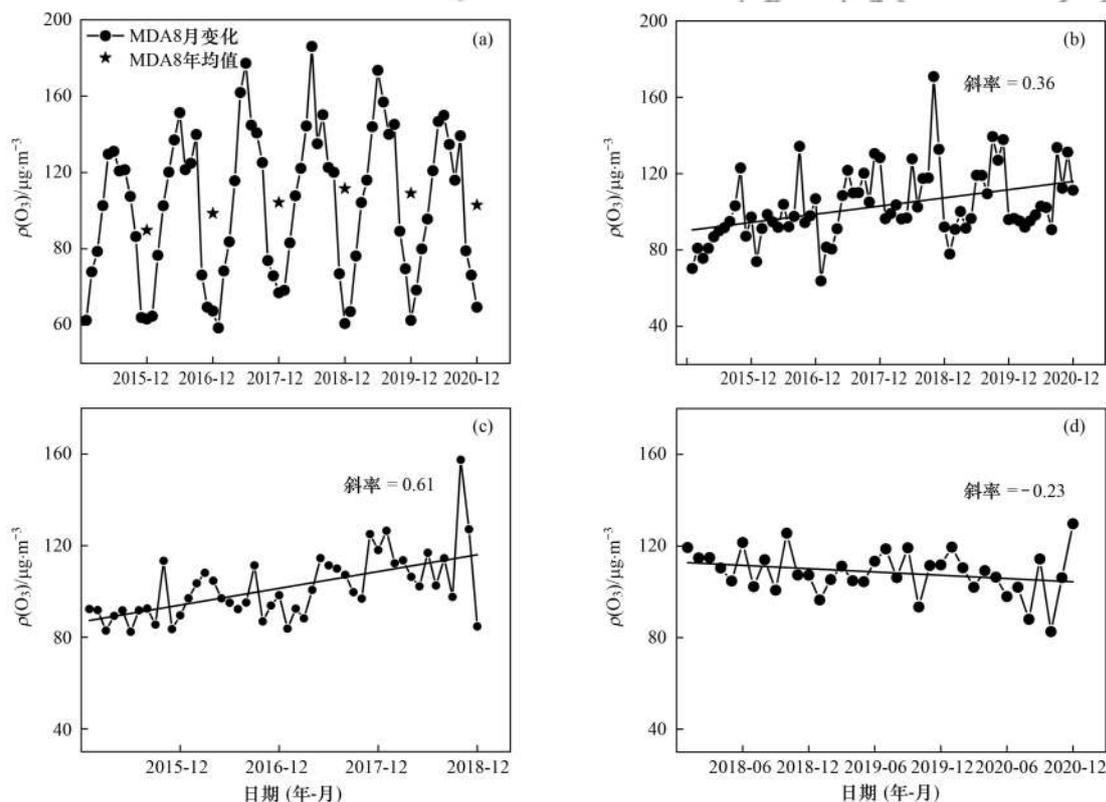


图 5 河南省 MDA8 浓度原始及 de-seasonalized 和 de-cyclical 时间序列

Fig. 5 Original and de-seasonalized and de-cyclical time series of MDA8 concentration in Henan province

各城市 MDA8 浓度 Y'_t 时间序列趋势线斜率如图 6 所示. 可以看出, 3 个时期各城市变化趋势一致, 2015 ~ 2020 年各城市斜率均为正, 安阳市 MDA8 趋势线斜率最大 (0.68), 漯河市最小 (0.06). 2015 ~ 2018 年各城市趋势线斜率均高于同城市 2015 ~ 2020 年斜率值, 表明 2015 ~ 2018 年各

城市 O_3 增长趋势高于 2015 ~ 2020 年, 2018 ~ 2020 年所有城市趋势线斜率均为负, 斜率值范围为 $-0.56 \sim -0.07$.

2.3 趋势显著性检验

使用 MK 非参数检验对 2015 ~ 2020 年 MDA8 月均值时间序列和 Y'_t 时间序列进行检验, 结果见表

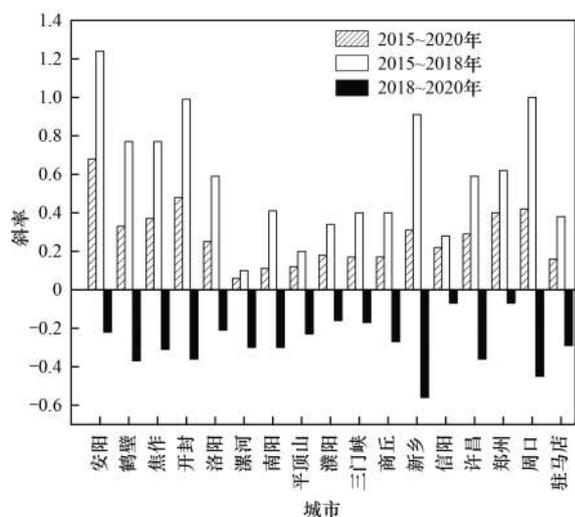


图 6 河南省各地市 de-seasonalized 和 de-cyclical 时间序列趋势线斜率

Fig. 6 Slope of de-seasonalized and de-cyclical time series trend of all the cities in Henan province

表 2 MDA8 原始及 de-seasonalized 和 de-cyclical 时间序列趋势显著性检验¹⁾

Table 2 Test of trend significance of MDA8 original, de-seasonalized, and de-cyclical time series

城市	原始时间序列				de-seasonalized 和 de-cyclical 时间序列			
	Z	P	S	T	Z	P	S	T
河南	1.11	0.27	230.00	0.09	3.70	0.00**	762.00	0.30
安阳	2.19	0.03*	452.00	0.18	5.80	0.00**	1194.00	0.47
鹤壁	1.36	0.18	280.00	0.11	4.14	0.00**	853.00	0.33
焦作	1.29	0.20	266.00	0.10	4.15	0.00**	855.00	0.33
开封	1.87	0.06	386.00	0.15	4.75	0.00**	979.00	0.38
洛阳	0.79	0.43	164.00	0.06	2.74	0.01**	565.00	0.22
漯河	-0.05	0.96	-12.00	0.00	0.38	0.70	79.00	0.03
南阳	0.53	0.60	109.00	0.04	1.29	0.20	266.00	0.10
平顶山	0.14	0.89	30.00	0.01	0.78	0.44	161.00	0.06
濮阳	0.83	0.41	171.00	0.07	2.28	0.02*	469.00	0.18
三门峡	0.44	0.66	91.00	0.04	2.32	0.02*	478.00	0.19
商丘	0.68	0.50	140.00	0.05	2.83	0.00**	583.00	0.23
新乡	0.97	0.33	200.00	0.08	3.35	0.00**	690.00	0.27
信阳	1.21	0.23	250.00	0.10	2.72	0.01**	560.00	0.22
许昌	0.86	0.39	177.00	0.07	3.01	0.00**	620.00	0.24
郑州	1.02	0.31	210.00	0.08	4.43	0.00**	912.00	0.36
周口	2.02	0.04*	417.00	0.16	4.24	0.00**	873.00	0.34
驻马店	0.75	0.75	156.00	0.06	2.03	0.04*	419.00	0.16

1) * 表示 $P < 0.05$, ** 表示 $P < 0.01$.

表明运用 de-seasonalized 和 de-cyclical 统计方法处理的时间序列能够很好解释 O_3 的变化趋势。

2.4 季节变化趋势分析

2015~2020 年四季月均值时间序列和 Y'_t 时间序列如图 8(a) 所示, 趋势线斜率表明四季 O_3 浓度均呈上升趋势, 表现出: 秋季 > 夏季 > 春季 > 冬季。图 8(b) 为相较 2015 年四季 O_3 浓度比值时间序列, 可以看出, 6 年间四季 MDA8 浓度增长最大为秋季 (19.31%), 其次为冬季 (17.09%) 和春季 (16.82%), 夏季 (7.24%) 最低。

2. 安阳和周口 P 值分别为 0.03 和 0.04, Z 值为正, 表明两地有显著的增长趋势, 其它城市的 P 值均大于 0.05, 趋势无显著性意义。 Y'_t 时间序列中, 除漯河、南阳和平顶山市三地 $P > 0.05$, 趋势无显著性意义, 其余城市 $P < 0.05$ 均呈显著性增长的趋势。此外, 两种时间序列中安阳、鹤壁、开封和郑州等北部城市的 T 值明显高于中部和西南部城市。在区域范围内, 尤其是我国华北地区, 前体物的排放及传输显著影响 O_3 趋势的统计意义^[21]。以往的研究表明, 秋冬季河南省北部地区主要受西北方向气流影响, 春夏季受东北方向及南方气流影响^[19, 32], 都使北部地区受传输影响较大, 区域传输影响了趋势的显著性。

图 7 为 2015~2020 年河南省和 17 个地市趋势线斜率与对应 MK 非参数检验结果 Z 值的线性关系, 结果显示两者具有很好的相关性 ($R^2 = 0.90$),

2.5 O_3 前体物时空分布

图 9(a) 展示了 2015~2019 年河南省对流层 NO_2 的空间分布。可以看出, 北部郑州、新乡、焦作和安阳 NO_2 浓度较高, 西南部信阳、三门峡、南阳及洛阳等多山地区浓度较低。2015~2019 年对流层 NO_2 呈下降趋势 (图 10), 相较于 2015 年, 2019 年对流层 NO_2 浓度下降 14.49%, 年下降速率为 $0.34 \times 10^{15} \text{ molecules} \cdot (\text{cm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ 。从空间分布看, 区域趋势差异明显, 河南省大部分地区 NO_2 呈下降趋势 [图 9(c)], 降低速率较高地区集中在西北部, 最大

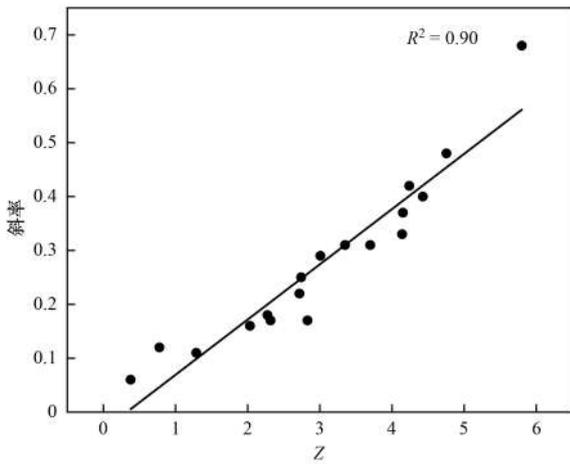


图 7 趋势线斜率与 Z 值的相关性

Fig. 7 Correlation between the slope of the trend and the Z-value

下降速率为 $1.85 \times 10^{15} \text{ molecules} \cdot (\text{cm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$, 东南部农业较发达地区和西部山地下降速率低于 $0.13 \times 10^{15} \text{ molecules} \cdot (\text{cm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$, 西南部南阳和驻马店交界地区出现少量上升现象. 对流层 NO_2 地区差异在逐渐缩小, 标准偏差从 2015 年的 $4.51 \times 10^{15} \text{ molecules} \cdot (\text{cm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ 下降到 2019 年的 $3.25 \times 10^{15} \text{ molecules} \cdot (\text{cm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$.

图 9(b) 展示了 2015 ~ 2019 年对流层 HCHO 的分布, 5a 均值为 $11.75 \times 10^{15} \text{ molecules} \cdot \text{cm}^{-2}$. 西部三门峡、洛阳和南阳交界地区浓度较低, 东部整体浓度较高且分布均匀, 北部的郑州、焦作、新乡、安阳和濮阳局部较高. 结合图 1 站点分布可以判断这些浓度较高地区位于城区, 而东南部农业较发达地区没有这种现象, 可能由于北部城市地区高 AVOC

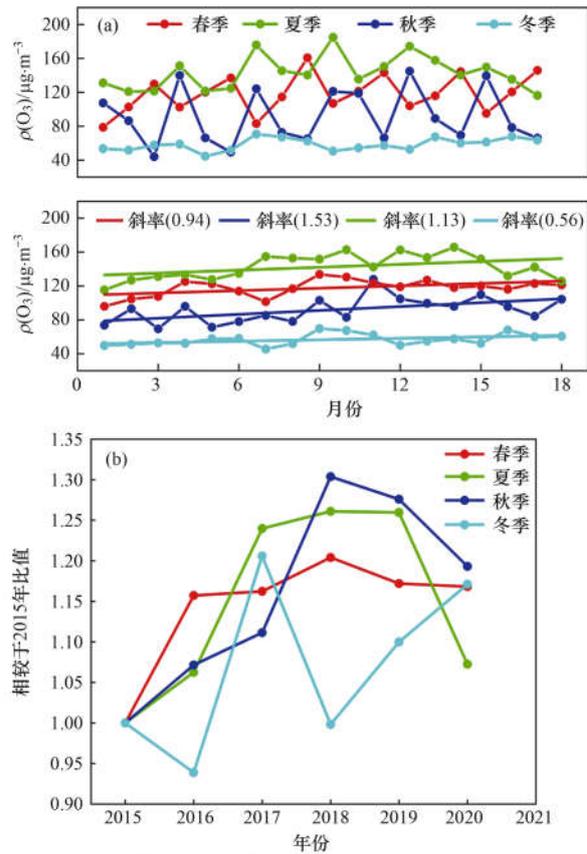


图 8 四季 MDA8 浓度 de-seasonalized 和 de-cyclical 时间序列和相较于 2015 年比值时间序列

Fig. 8 Time series of de-seasonalized and de-cyclical MDA8 concentration and its ratios relative to 2015

排放贡献导致这些地区 HCHO 较高^[9]. 5 a 中对流层 HCHO 呈上升趋势, 年增速为 $0.19 \times 10^{15} \text{ molecules} \cdot (\text{cm}^2 \cdot \text{a})^{-1}$ (图 9), 空间分布上, 大部分区

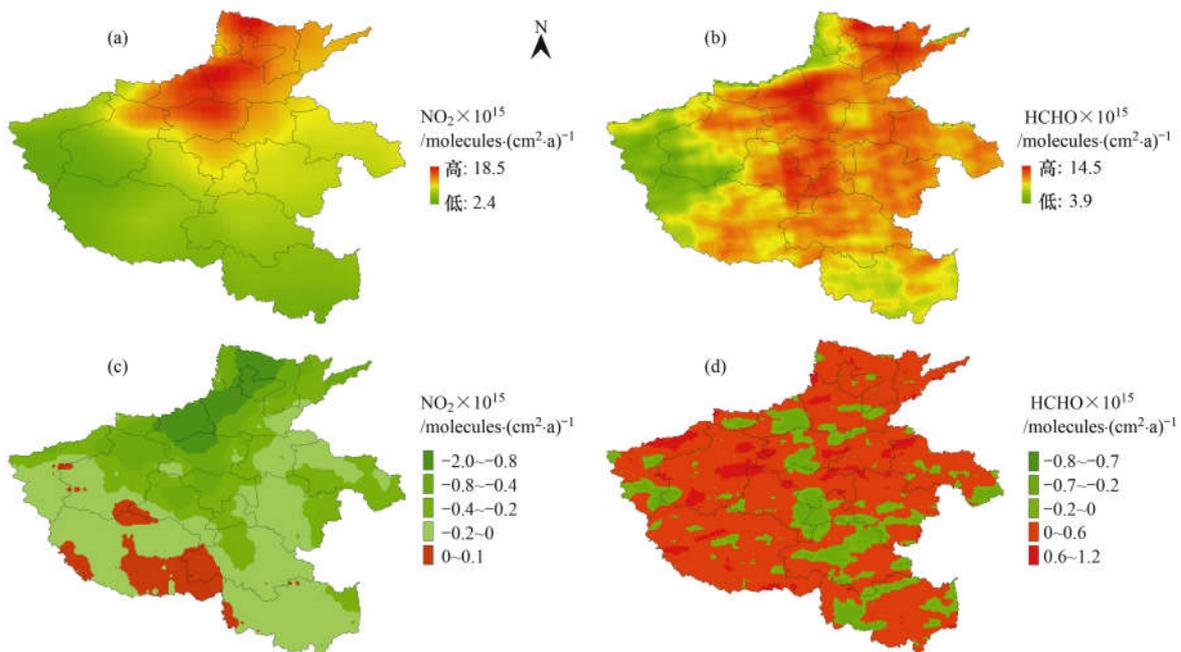


图 9 2015 ~ 2019 年对流层 NO_2 和 HCHO 空间分布及对应的浓度变化

Fig. 9 Maps of satellite-based mean tropospheric NO_2 and HCHO and the corresponding linear trend from 2015 to 2019

域都表现上升的趋势,最大增速为 1.25×10^{15} molecules \cdot (cm² \cdot a)⁻¹,最大下降速率为 0.75×10^{15} molecules \cdot (cm² \cdot a)⁻¹ [图 9(d)].

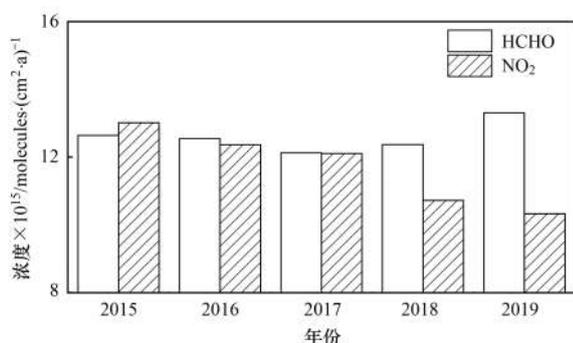


图 10 2015~2019 年对流层 NO₂ 和 HCHO 时间变化

Fig. 10 Time series of tropospheric NO₂ and HCHO column densities from 2015 to 2019

2.6 O₃ 生成敏感性

图 11(a)展示了 2015~2019 年对流层 HCHO/NO₂ 分布,可以看出河南省东部大部分 FNR 值小于

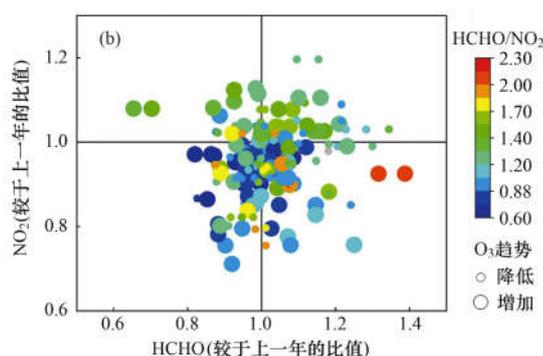
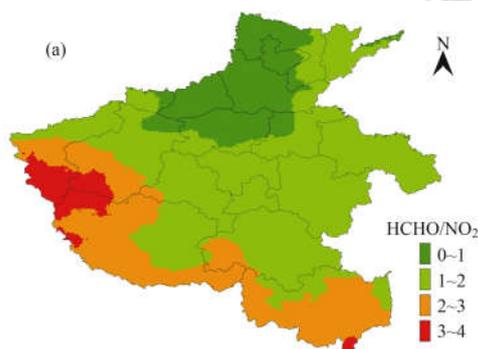


图 11 2015~2019 年 HCHO/NO₂ 空间分布和对流层 HCHO 和 NO₂ 与对应地面站点 MDA8 及 HCHO/NO₂ 的变化

Fig. 11 Spatial distribution of HCHO/NO₂ from 2015 to 2019 and changes in tropospheric HCHO and NO₂ and the MDA8 and HCHO/NO₂ of all study sites from 2015 to 2019

3 结论

(1)2015~2020 年河南省近地面 O₃ 浓度先上升后下降,2018 年 O₃ 浓度最高,MDA8 年均值为 $110.70 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$,各站点间 MDA8 值差异逐渐缩小且年均超标率与 O₃ 浓度逐渐表现出同步性。

(2)2015~2020 年河南省 O₃ 增速为 $2.46 \mu\text{g} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{a})^{-1}$ ($P < 0.05$),2015~2018 年上升趋势更明显,增速为 $6.75 \mu\text{g} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{a})^{-1}$ 。四季上升趋势表现为:秋季 > 夏季 > 春季 > 冬季;6 年间四季 MDA8 浓度增长大小为:秋季 (19.31%) > 冬季 (17.09%) > 春季 (16.82%) > 夏季 (7.24%)。

(3)2015~2019 年河南省对流层 NO₂ 浓度下降趋势明显,下降速率为 0.34×10^{15} molecules \cdot (cm² \cdot a)⁻¹,对流层 HCHO 表现为缓慢上

升趋势,增速为 0.19×10^{15} molecules \cdot (cm² \cdot a)⁻¹; FNR 值逐年上升,河南省东部大部分地区属于 VOCs 控制区,未来应将大力加强 VOCs 的减排。

2,表明这些区域 O₃ 的生成受 VOCs 控制,西部和南部的信阳地区 FNR 大于 2。图 11(b)为 2015~2019 年 52 个监测站点 MDA8 浓度与对应格网对流层 HCHO、NO₂ 和 FNR 的年际变化关系。可以看出,低 FNR 值的点多位于第三和第四象限且在 HCHO 等于 1 的附近,即河南省 NO_x 排放显著降低,而 VOCs 排放有上升趋势,根据清华大学 MEIC 清单显示,我国人为源 VOCs 排放量在“十三五”期间排放量基本持平,与 2010 年相比,2018 年 NO_x 下降 20% [33]。

有研究表明河南省属于 O₃ 高污染且是以区域传输影响为主的地区 [34],在 O₃ 污染高发的夏季,郑州市 O₃ 主要潜在来源除本地外,河北、安徽和山东等地的传输也较为显著 [35],应加强 O₃ 污染区域联防联控。河南省近 6 年来对 O₃ 前体物的控制主要聚焦在 NO_x 的减排上,导致 FNR 值上升,不利于 O₃ 污染控制,未来应通过增加 VOCs 减排,促使 FNR 值下降,加强区域联防联控。

升趋势,增速为 0.19×10^{15} molecules \cdot (cm² \cdot a)⁻¹; FNR 值逐年上升,河南省东部大部分地区属于 VOCs 控制区,未来应将大力加强 VOCs 的减排。

参考文献:

- [1] Li K, Jacob D J, Shen L, *et al.* Increases in surface ozone pollution in China from 2013 to 2019: anthropogenic and meteorological influences [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2020, **20**(19): 11423-11433.
- [2] 林楠, 蒋荣复, 何宇晖, 等. 莆田地区一次臭氧污染过程分析[J]. *环境科学学报*, 2021, **41**(7): 2569-2576.
Lin N, Jiang R F, He Y H, *et al.* A case study of ozone pollution in Putian[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2021, **41**(7): 2569-2576.
- [3] 孙晓艳, 赵敏, 申恒青, 等. 济南市城区夏季臭氧污染过程及来源分析[J]. *环境科学*, 2022, **43**(2): 686-695.
Sun X Y, Zhao M, Shen H Q, *et al.* Ozone formation and key VOCs of a continuous summertime O₃ pollution event in Jinan [J]. *Environmental Science*, 2022, **43**(2): 686-695.
- [4] Miao W J, Huang X, Song Y. An economic assessment of the

- health effects and crop yield losses caused by air pollution in mainland China[J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2017, **56**: 102-113.
- [5] Xu J W, Huang X, Wang N, *et al.* Understanding ozone pollution in the Yangtze River Delta of eastern China from the perspective of diurnal cycles [J]. *Science of the Total Environment*, 2021, **752**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2020.141928.
- [6] 杨雷峰. 中国典型区域臭氧污染长期趋势变化控制因素的识别研究[D]. 广州: 华南理工大学, 2020.
- Yang L F. Identification of controlling factors on the long-term trends of ozone pollution over typical areas of China [D]. Guangzhou: South China University of Technology, 2020.
- [7] 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.
- [8] 张小娟, 李莉, 王红丽, 等. 2010—2016 年上海城区臭氧长时间序列变化特征初探[J]. *环境科学学报*, 2019, **39**(1): 86-94.
- Zhang X J, Li L, Wang H L, *et al.* Preliminary study on the long-term trends of ozone in urban Shanghai from 2010 to 2016 [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2019, **39**(1): 86-94.
- [9] Yin C P, Deng X J, Zou Y, *et al.* Trend analysis of surface ozone at suburban Guangzhou, China[J]. *Science of the Total Environment*, 2019, **695**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2019.133880.
- [10] Wang W N, van der A R, Ding J Y, *et al.* Spatial and temporal changes of the ozone sensitivity in China based on satellite and ground-based observations [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2021, **21**(9): 7253-7269.
- [11] Gao C, Xiu A J, Zhang X L, *et al.* Spatiotemporal characteristics of ozone pollution and policy implications in Northeast China[J]. *Atmospheric Pollution Research*, 2020, **11**(2): 357-369.
- [12] 武卫玲, 薛文博, 雷宇, 等. 基于 OMI 数据的京津冀及周边地区 O₃ 生成敏感性[J]. *中国环境科学*, 2018, **38**(4): 1201-1208.
- Wu W L, Xue W B, Lei Y, *et al.* Sensitivity analysis of ozone in Beijing-Tianjin-Hebei (BTH) and its surrounding area using OMI satellite remote sensing data [J]. *China Environmental Science*, 2018, **38**(4): 1201-1208.
- [13] 赵伟, 高博, 卢清, 等. 2006 ~ 2019 年珠三角地区臭氧污染趋势[J]. *环境科学*, 2021, **42**(1): 97-105.
- Zhao W, Gao B, Lu Q, *et al.* Ozone pollution trend in the Pearl River Delta region during 2006- 2019 [J]. *Environmental Science*, 2021, **42**(1): 97-105.
- [14] Ma M L, Yao G B, Guo J P, *et al.* Distinct spatiotemporal variation patterns of surface ozone in China due to diverse influential factors [J]. *Journal of Environmental Management*, 2021, **288**, doi: 10.1016/j.jenvman.2021.112368.
- [15] 庄立跃. 中国三大城市群近地面臭氧污染特征及其敏感性研究[D]. 广州: 华南理工大学, 2019.
- Zhuang L Y. Ground level ozone concentration characteristics and formation sensitivity in China's Three Agglomerations [D]. Guangzhou: South China University of Technology, 2019.
- [16] Yu S J, Yin S S, Zhang R Q, *et al.* Spatiotemporal characterization and regional contributions of O₃ and NO₂: An investigation of two years of monitoring data in Henan, China [J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2020, **90**: 29-40.
- [17] 齐艳杰, 于世杰, 杨健, 等. 河南省臭氧污染特征与气象因子影响分析[J]. *环境科学*, 2020, **41**(2): 587-599.
- Qi Y J, Yu S J, Yang J, *et al.* Analysis of characteristics and meteorological influence factors of ozone pollution in Henan province [J]. *Environmental Science*, 2020, **41**(2): 587-599.
- [18] Li Y S, Yin S S, Yu S J, *et al.* Characteristics of ozone pollution and the sensitivity to precursors during early summer in central plain, China [J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2021, **99**: 354-368.
- [19] 杨健, 尹沙沙, 于世杰, 等. 安阳市近地面臭氧污染特征及气象影响因素分析[J]. *环境科学*, 2020, **41**(1): 115-124.
- Yang J, Yin S S, Yu S J, *et al.* Characteristic of surface ozone and meteorological parameters analysis in Anyang city [J]. *Environmental Science*, 2020, **41**(1): 115-124.
- [20] Ren J, Hao Y F, Simayi M, *et al.* Spatiotemporal variation of surface ozone and its causes in Beijing, China since 2014 [J]. *Atmospheric Environment*, 2021, **260**, doi: 10.1016/j.atmosenv.2021.118556.
- [21] Zhang L S, Lee C S, Zhang R Q, *et al.* Spatial and temporal evaluation of long term trend (2005-2014) of OMI retrieved NO₂ and SO₂ concentrations in Henan Province, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2017, **154**: 151-166.
- [22] Kalsoom U, Wang T J, Ma C Q, *et al.* Quadrennial variability and trends of surface ozone across China during 2015-2018: a regional approach [J]. *Atmospheric Environment*, 2021, **245**, doi: 10.1016/j.atmosenv.2020.117989.
- [23] Maji K J, Namdeo A. Continuous increases of surface ozone and associated premature mortality growth in China during 2015-2019 [J]. *Environmental Pollution*, 2021, **269**, doi: 10.1016/j.envpol.2020.116183.
- [24] Duncan B N, Yoshida Y, Olson J R, *et al.* Application of OMI observations to a space-based indicator of NO_x and VOC controls on surface ozone formation [J]. *Atmospheric Environment*, 2010, **44**(18): 2213-2223.
- [25] 赵金帅, 于世杰, 王楠, 等. 郑州市少数民族运动会期间 O₃ 及 VOCs 污染特征的演变和评估[J]. *环境科学*, 2020, **41**(10): 4436-4445.
- Zhao J S, Yu S J, Wang N, *et al.* Evolution and evaluation of O₃ and VOCs in Zhengzhou during the national traditional games of ethnic minorities period [J]. *Environmental Science*, 2020, **41**(10): 4436-4445.
- [26] 高丹丹, 尹沙沙, 谷幸珂, 等. 河南省 2016 ~ 2019 年机动车大气污染物排放清单及特征[J]. *环境科学*, 2021, **42**(8): 3663-3675.
- Gao D D, Yin S S, Gu X K, *et al.* Vehicle air pollutant emission inventory and characterization in Henan province from 2016 to 2019 [J]. *Environmental Science*, 2021, **42**(8): 3663-3675.
- [27] 王红果, 孙永旺, 王芳, 等. 济源市疫情防控期间 VOCs 的变化特征、臭氧生成潜势及来源解析[J]. *环境科学学报*, 2021, **41**(3): 761-769.
- Wang H G, Sun Y W, Wang F, *et al.* Characteristics, ozone formation potential and source apportionment of VOCs during epidemic prevention in Jiyuan [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2021, **41**(3): 761-769.
- [28] Wang M, Lu S H, Shao M, *et al.* Impact of COVID-19 lockdown on ambient levels and sources of volatile organic compounds (VOCs) in Nanjing, China [J]. *Science of the Total Environment*, 2021, **757**, doi: 10.1016/j.scitotenv.2020.143823.
- [29] 王申博, 范相阁, 和兵, 等. 河南省春节和疫情影响情景下

- PM_{2.5}组分特征[J]. 中国环境科学, 2020, **40**(12): 5115-5123.
- Wang S B, Fan X G, He B, *et al.* Chemical composition characteristics of PM_{2.5} in Henan province during the spring festival and COVID-19 outbreak [J]. China Environmental Science, 2020, **40**(12): 5115-5123.
- [30] Duan W J, Wang X Q, Cheng S Y, *et al.* Influencing factors of PM_{2.5} and O₃ from 2016 to 2020 based on DLNM and WRF-CMAQ [J]. Environmental Pollution, 2021, **285**, doi: 10.1016/j.envpol.2021.117512.
- [31] Li X K, Zhang C R, Zhang B, *et al.* A comparative time series analysis and modeling of aerosols in the contiguous United States and China [J]. Science of the Total Environment, 2019, **690**: 799-811.
- [32] Lu X, Zhang L, Wang X L, *et al.* Rapid increases in warm-season surface ozone and resulting health impact in China since 2013 [J]. Environmental Science & Technology Letters, 2020, **7**(4): 240-247.
- [33] 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 the causes and prevention and control recommendations [J]. Research of Environmental Sciences, 2021, **34**(7): 1576-1582.
- [34] 闫慧, 张维, 侯墨, 等. 我国地级及以上城市臭氧污染来源及控制区划分 [J]. 环境科学, 2020, **41**(12): 5215-5224.
- Yan H, Zhang W, Hou M, *et al.* Sources and control area division of ozone pollution in cities at prefecture level and above in China [J]. Environmental Science, 2020, **41**(12): 5215-5224.
- [35] 王旭东, 尹沙沙, 杨健, 等. 郑州市臭氧污染变化特征、气象影响及输送源分析 [J]. 环境科学, 2021, **42**(2): 604-615.
- Wang X D, Yin S S, Yang J, *et al.* Characteristics, meteorological Influences, and transport source of ozone pollution in Zhengzhou city [J]. Environmental Science, 2021, **42**(2): 604-615.



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 Transport 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-ji, <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 Autoxidation	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)