

环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第36卷 第1期

Vol.36 No.1

2015

中国科学院生态环境研究中心 主办
科学出版社 出版



目次

2013年夏季典型光化学污染过程中长三角典型城市O ₃ 来源识别	李浩, 李莉, 黄成, 安静宇, 严茹莎, 黄海英, 王杨君, 卢清, 王倩, 楼晟荣, 王红丽, 周敏, 陶士康, 乔利平, 陈明华(1)
厦门冬春季大气VOCs的污染特征及臭氧生成潜势	徐慧, 张晗, 邢振雨, 邓君俊(11)
近10年海南岛大气NO ₂ 的时空变化及污染物来源解析	符传博, 陈有龙, 丹利, 唐家翔(18)
稻草烟尘中有机碳/元素碳及水溶性离子的组成	洪蕾, 刘刚, 杨孟, 徐慧, 李久海, 陈惠雨, 黄柯, 杨伟宗, 吴丹(25)
气相色谱-脉冲氦离子化检测法(GC-PDHID)分析大气中分子氢(H ₂)浓度	栾天, 方双喜, 周凌晔, 王红阳, 张根(34)
小浪底水库影响下的黄河花园口站和小浪底站pCO ₂ 特征及扩散通量	张永领, 杨小林, 张东(40)
夏季中国东海生源有机硫化物的分布及其影响因素研究	李江萍, 张洪海, 杨桂朋(49)
基于Landsat 8影像估算新安江水库总悬浮物浓度	张毅博, 张运林, 查勇, 施坤, 周永强, 王明珠(56)
温瑞塘河流域水体污染时空分异特征及污染源识别	马小雪, 王腊春, 廖玲玲(64)
人类活动影响下水化学特征的影响: 以西江中上游流域为例	于爽, 孙平安, 杜文越, 何师意, 李瑞(72)
太湖梅梁湾不同形态磷周年变化规律及藻类响应研究	汪明, 武晓飞, 李大鹏, 李祥, 黄勇(80)
鄱阳湖沉积物可转化态氮分布特征及其对江湖关系变化的响应	沈洪艳, 张绵绵, 倪兆奎, 王圣瑞(87)
影响浑太河流域大型底栖动物群落结构的环境因子分析	李艳利, 李艳粉, 徐宗学(94)
水华生消过程对巢湖沉积物微生物群落结构的影响	刁晓君, 李一葳, 王曙光(107)
蓝藻水华聚集对水葫芦生理生态的影响	吴婷婷, 刘国锋, 韩士群, 周庆, 唐婉莹(114)
汞在小浪底水库的赋存形态及其时空变化	程柳, 毛宇翔, 麻冰涓, 王梅(121)
三峡库区典型农田小流域土壤汞的空间分布特征	王娅, 赵铮, 木志坚, 王定勇, 余亚伟(130)
三峡库区农林复合小流域水体汞的时空变化特征	赵铮, 王娅, 木志坚, 王定勇(136)
环境条件对三峡库区消落带土壤中邻苯二甲酸二丁酯向上覆水静态迁移释放的影响	宋娇艳, 木志坚, 王强, 杨志丹, 王法(143)
三峡库区消落带土壤中溶解性有机质(DOM)吸收及荧光光谱特征	高洁, 江韬, 李璐璐, 陈雪霜, 魏世强, 王定勇, 闫金龙, 赵铮(151)
舟山渔场有色溶解有机物(CDOM)的三维荧光-平行因子分析	周倩倩, 苏荣国, 白莹, 张传松, 石晓勇(163)
太原市小店污灌区地下水中多环芳烃与有机氯农药污染特征及分布规律	李佳乐, 张彩香, 王焰新, 廖小平, 姚林林, 刘敏, 徐亮(172)
厦门杏林湾水系表层沉积物中PAHs分析与风险评估	程启明, 黄青, 廖祯妮, 苏丽, 刘兴强, 唐剑锋(179)
两种不同的地下水污染风险评价体系对比分析: 以北京市平原区为例	王红娜, 何江涛, 马文洁, 许真(186)
大冶湖滨岸带重金属水-土迁移特征与风险评价	张家泉, 李秀, 张全发, 李琼, 肖文胜, 王永奎, 张建春, 盖希光(194)
铁盐絮凝法从阳宗海湖水中除砷研究与现场扩大试验	陈景, 张曙, 杨项军, 黄章杰, 王世雄, 王莞, 韦群燕, 张艮林, 肖军(202)
铋银氧化物混合物高效氧化降解四溴双酚A的研究	陈满堂, 宋洲, 王楠, 丁耀彬, 廖海星, 朱丽华(209)
一种纳米级不定形碳对水中四环素的吸附研究	吴亦潇, 李爱民, 汪的华, 张维昊(215)
磁性壳聚糖衍生物对阴离子染料的吸附行为	张聪璐, 胡筱敏, 赵研, 苏雷(221)
腐殖酸-高岭土复合体形成机制及对三氯乙烯的吸附	朱晓婧, 何江涛, 苏思慧(227)
降温过程对ANAMMOX工艺城市污水处理系统中微生物群落的影响	赵志瑞, 苗志加, 李铎, 崔丙健, 万敬敏, 马斌, 白志辉, 张洪勋(237)
FISH-NanoSIMS技术在环境微生物生态学上的应用研究	陈晨, 柏耀辉, 梁金松, 袁林江(244)
微囊藻毒素-LR对恶臭假单胞菌细胞活性和表面特性的影响	邓庭进, 叶锦韶, 彭辉, 刘芷辰, 刘则华, 尹华, 陈烁娜(252)
微生物除臭剂的筛选、复配及其除臭条件的优化	曾苏, 李南华, 盛洪产, 贺琨, 胡子全(259)
舟山青浜岛水体及海产品中有机氯农药的分布和富集特征	张泽洲, 邢新丽, 顾延生, 桂福坤, 祁士华, 黄焕芳, 瞿程凯, 张莉(266)
四川凉山藏彝青少年头发中多氯联苯污染水平的研究	周莹, 孙一鸣, 金军, 雷建容, 秦贵平, 何雪珠, 林尤静(274)
铜、毒死蜱单一与复合暴露对蚯蚓的毒性作用	徐冬梅, 王彦华, 王楠, 饶桂维(280)
外源硒对黄瓜抗性、镉积累及镉化学形态的影响	熊仕娟, 刘俊, 徐卫红, 谢文文, 陈蓉, 张进忠, 熊治庭, 王正银, 谢德体(286)
厦门市道路灰尘中铂族元素的污染特征	洪振宇, 洪有为, 尹丽倩, 陈进生, 陈衍婷, 徐玲玲(295)
洋河流域不同土地利用类型土壤硒(Se)分布及影响因素	商靖敏, 罗维, 吴光红, 徐兰, 高佳佳, 孔佩儒, 毕翔, 程志刚(301)
不同钝化剂对重金属污染土壤稳定化效应的研究	吴烈善, 曾东梅, 莫小荣, 吕宏虹, 苏翠翠, 孔德超(309)
畜禽粪便有机肥中Cu、Zn在不同农田土壤中的形态归趋和有效性动态变化	商和平, 李洋, 张涛, 苏德纯(314)
华南某市生活垃圾组成特征分析	张海龙, 李祥平, 齐剑英, 陈永亨, 方建德(325)
生物沥浸耦合类Fenton氧化调理城市污泥	刘昌庚, 张盼月, 蒋娇娇, 曾成华, 黄毅, 徐国印(333)
基于平面波导型荧光免疫传感器的双酚A检测适用性研究	徐玮琦, 张永明, 周小红, 施汉昌(338)
一种新型“Turn-on”荧光探针用于硫化氢可视化检测	刘春霞, 马兴, 魏国华, 杜宇国(343)
典型黄土区油松树干液流变化特征分析	张涵丹, 卫伟, 陈利顶, 于洋, 杨磊, 贾福岩(349)
利用巨藻发酵产氢气与挥发性有机酸的研究	赵晓娟, 范晓蕾, 郭荣波, 薛志欣, 杨智满, 袁宪正, 邱艳玲(357)
人工纳米颗粒在水体中的行为及其对浮游植物的影响	李曼璐, 姜玥璐(365)
《环境科学》征订启事(251) 《环境科学》征稿简则(294) 信息(236, 243, 273, 300)	

2013年夏季典型光化学污染过程中长三角典型城市O₃来源识别

李浩^{1,2,3}, 李莉^{2,3*}, 黄成^{2,3}, 安静宇^{2,3}, 严茹莎^{2,3}, 黄海英^{2,3}, 王杨君⁴, 卢清^{2,3}, 王倩^{2,3}, 楼晟荣^{2,3}, 王红丽^{2,3}, 周敏^{2,3}, 陶士康^{2,3}, 乔利平^{2,3}, 陈明华^{2,3}

(1. 东华大学环境科学与工程学院, 上海 201620; 2. 上海市环境科学研究院, 上海 200233; 3. 国家环境保护城市大气复合污染成因与防治重点实验室, 上海 200233; 4. 上海大学环境与化学工程学院, 上海 200444)

摘要: 城市化、工业化、机动化的高速推进以及大气活性物质的大量排放,使得长江三角洲地区在夏秋季节面临严峻的以高浓度O₃为典型特征的光化学污染问题。然而,O₃与其前体物之间的高度非线性反应过程使得其来源识别变得十分复杂,因此针对高浓度O₃的控制途径仍不清楚。本文以2013年7月长三角地区发生的一次持续时间长、波及范围广、强度高的高浓度O₃污染过程为研究案例,基于CAMx空气质量数值模型中耦合的臭氧来源追踪方法(OSAT),采用物种示踪的方法对长三角3个代表性城市上海、苏州、杭州近地面O₃的污染来源开展了模拟研究,探讨了4个源区(上海、浙北、苏南和长距离输送)、7类排放源(工业锅炉和窑炉、生产工艺过程、电厂、生活源、流动源、挥发源和天然源)对上海、苏州和杭州城区地面O₃的浓度贡献。研究结果表明:长距离输送以及区域背景产生的O₃约在 $20 \times 10^{-9} \sim 40 \times 10^{-9}$ (体积分数)之间;加上上海及苏南、浙北地区排放的前体物在长三角城区地区二次生成O₃,可使O₃上升至 $40 \times 10^{-9} \sim 100 \times 10^{-9}$ (体积分数)乃至更高。模拟时段内日间8 h O₃浓度的地区贡献分析结果显示,长距离传输对于上海、苏州、杭州的浓度贡献分别为 $42.79\% \pm 10.17\%$ 、 $48.57\% \pm 9.97\%$ 和 $60.13\% \pm 7.11\%$;上海城区O₃来源中,上海本地污染贡献平均为 $28.94\% \pm 8.49\%$,浙北地区贡献约 $19.83\% \pm 10.55\%$;苏州城区O₃来源中,苏南地区贡献约 $26.41\% \pm 6.80\%$;杭州城区O₃来源中,浙北地区贡献约 $29.56\% \pm 8.33\%$ 。从各受点日最大O₃小时浓度贡献来看,长距离传输贡献比例显著下降($35.35\% \sim 58.04\%$),而本地污染贡献上升。区域各类污染源贡献分析结果表明,长三角地区对O₃污染贡献最为突出的几类污染源分别是工业锅炉和窑炉(浓度贡献约 $18.4\% \sim 21.11\%$)、生产工艺过程($19.85\% \sim 28.46\%$)、流动源($21.30\% \sim 23.51\%$)、天然源($13.01\% \sim 17.07\%$)和电厂排放($7.08\% \sim 9.75\%$)。研究结果表明,工业燃烧排放、生产工艺过程中产生的VOC排放以及流动源大气污染物排放,是造成长三角区域夏季高浓度O₃的主要人为源。

关键词: O₃; 来源追踪; 长三角; 城区; OSAT

中图分类号: X515 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2015)01-0001-10 DOI: 10.13227/j. hjkx. 2015. 01. 001

Ozone Source Apportionment at Urban Area during a Typical Photochemical Pollution Episode in the Summer of 2013 in the Yangtze River Delta

LI Hao^{1,2,3}, LI Li^{2,3*}, HUANG Cheng^{2,3}, AN Jing-yu^{2,3}, YAN Ru-sha^{2,3}, HUANG Hai-ying^{2,3}, WANG Yang-jun⁴, LU Qing^{2,3}, WANG Qian^{2,3}, LOU Sheng-rong^{2,3}, WANG Hong-li^{2,3}, ZHOU Min^{2,3}, TAO Shi-kang^{2,3}, QIAO Li-ping^{2,3}, CHEN Ming-hua^{2,3}

(1. School of Environmental Science and Engineering, Donghua University, Shanghai 201620, China; 2. Shanghai Academy of Environmental Sciences, Shanghai 200233, China; 3. State Environmental Protection Key Laboratory of the Cause and Prevention of Urban Complex Air Pollution, Shanghai 200233, China; 4. School of Environmental and Chemical Engineering, Shanghai University, Shanghai 200444, China)

Abstract: With the fast development of urbanization, industrialization and mobilization, the air pollutant emissions with photochemical reactivity become more obvious, causing a severe photochemical pollution with the characteristics of high ozone concentration. However, the ozone source identification is very complicated due to the high non linearity between ozone and its precursors. Thus, ways to reduce ozone is still not clear. A high ozone pollution episode occurred during July, 2013, which lasted for a long period, with large influence area and high intensity. In this paper, we selected this episode to do a case study with the application of ozone source apportionment technology (OSAT) coupled within the CAMx air quality model. In this study, 4 source regions (including Shanghai,

收稿日期: 2014-02-26; 修订日期: 2014-08-18

基金项目: 国家自然科学基金项目(41205122); 环境保护公益性行业科研专项(201209001, 201409008); 上海市科委科技攻关项目(11231200500, 14DZ1202905); 上海市环境保护局2014年重大科研项目[沪环科(2014-01)]

作者简介: 李浩(1988~),男,硕士,主要研究方向为大气复合污染数值模拟, E-mail: meilxin@163.com

* 通讯联系人, E-mail: lili@saes.sh.cn

north Zhejiang, South Jiangsu and long range transport), 7 source categories (including power plants, industrial process, industrial boilers and kilns, residential, mobile source, volatile source and biogenic emissions) are analyzed to study their contributions to surface O_3 in Shanghai, Suzhou and Zhejiang. Results indicate that long range transport contribution to the surface ozone in the YRD is around 20×10^{-9} - 40×10^{-9} (volume fraction). The O_3 concentrations can increased to 40×10^{-9} - 100×10^{-9} (volume fraction) due to precursors emissions in Shanghai, Jiangsu and Zhejiang. As for the regional contribution to 8 hour ozone, long range transport constitutes $42.79\% \pm 10.17\%$, $48.57\% \pm 9.97\%$ and $60.13\% \pm 7.11\%$ of the surface ozone in Shanghai, Suzhou and Hangzhou, respectively. Regarding the high O_3 in Shanghai, local contribution is $28.94\% \pm 8.49\%$, north Zhejiang constitutes $19.83\% \pm 10.55\%$. As for surface O_3 in Suzhou, the contribution from south Jiangsu is $26.41\% \pm 6.80\%$. Regarding the surface O_3 in Hangzhou, the major regional contributor is north Zhejiang ($29.56\% \pm 8.33\%$). Contributions from the long range transport to the daily maximum O_3 concentrations are slightly lower than those to the 8 ~ hourly O_3 , with the contribution of 35.35% - 58.04% , while local contributions increase. As for the contributions from source sectors, it is found that the major source contributors include industrial boilers and kilns (18.4% - 21.11%), industrial process (19.85% - 28.46%), mobile source (21.30% - 23.51%), biogenic (13.01% - 17.07%) and power plants (7.08% - 9.75%). Thus, industrial combustion, industrial processes, and mobile source are major anthropogenic sources of high ozone pollution in summer in the YRD region.

Key words: ozone; source apportionment; Yangtze River Delta; urban area; OSAT

城市化、工业化、机动化的高速推进以及大气活性物质的大量排放,使得我国东部沿海城市群在夏秋季节面临严峻的以高浓度 O_3 为典型特征的光化学污染问题. 高浓度 O_3 具有很强的氧化性,对眼睛和呼吸道有强烈的刺激性,损害人体心肺功能^[1-7],甚至导致死亡^[8,9],因此引起了国内外学者的广泛关注. 然而, O_3 是一种主要由 NO_x 和 VOCs 在光照作用下生成的二次污染物^[9-12],Xing 等^[13]研究表明由于 NO_x 和 VOCs 中的活性组分对 O_3 生消的影响是一个高度非线性过程,因此导致 O_3 的污染来源识别及其防控途径的制定极其复杂. 国内外许多学者针对 O_3 污染来源、前体物排放对 O_3 的影响开展了大量研究,取得了重要的研究成果. Kim 等^[14]采用耦合在三维空气质量模式 CMAQ 中的高阶去耦合直接法 (HDDM) 对 Dallas Fort Worth 地区 O_3 前体物的来源及对 O_3 生成的影响进行分析,探讨了 NO_x 和 VOCs 不同削减量对 O_3 生成的敏感性,研究结果表明削减本地 NO_x 排放对减缓 O_3 污染最为有效. Li 等^[15]采用指示剂法探讨了上海地区 O_3 主控因素,研究表明上海城区主要受 VOCs 控制,而郊区则对 NO_x 更为敏感. Li 等^[16]利用 O_3 来源追踪方法对珠江三角洲区域的地面 O_3 浓度的源解析进行了研究,结果表明区域传输贡献十分显著,机动车是珠江三角洲地区地面 O_3 污染事件中的本地主要贡献者. 王雪松等^[17,18]运用臭氧源识别技术和地区臭氧评估技术,量化了不同地区污染源排放对北京市城近郊区 O_3 污染的贡献. 这些研究对于我国夏秋季节的 O_3 污染防控提供了重要科研成果.

然而,作为东部沿海城市群的典型代表,夏秋季节长三角地区地面高浓度 O_3 的源解析研究工作仍然较少. 本研究选取该时段作为典型夏季 O_3 污染

案例,采用美国 CAMx 三维空气质量数值模型中嵌套的臭氧来源追踪技术 (OSAT) 对长三角 O_3 的污染来源进行了定量研究,探讨了不同地区 (上海、浙江、苏南和长距离输送) 以及 7 类前体物排放源 (工业锅炉和窑炉、生产工艺过程、电厂、生活源、流动源、挥发源和天然源) 对长三角代表性城市上海、苏州和杭州城区地面 O_3 的污染贡献,以期为夏秋季节东部沿海城市群 O_3 污染防控提供科技支撑.

1 材料与方法

1.1 模式简介及参数设置

CAMx (comprehensive air quality model with extensions) 模型是一个欧拉光化学扩散模型,它基于“一个大气”的框架,将气态和颗粒态大气污染物在城市和区域等多种尺度进行综合模拟和评估. CAMx 通过求解每个网格中每种污染物的物理化学变化方程来模拟排放、扩散、化学反应及污染物在大气中的去除过程. 该模型的核心数学表达式^[19]如下:

$$\begin{aligned} \frac{\partial c_i}{\partial t} = & -\nabla_H \cdot V_H c_i + \left[\frac{\partial(c_i \eta)}{\partial z} - c_i \frac{\partial^2 h}{\partial z \partial t} \right] \\ & + \nabla \cdot \rho K \nabla(c_i \rho) + \left. \frac{\partial c_i}{\partial t} \right|_{\text{Emission}} \\ & + \left. \frac{\partial c_i}{\partial t} \right|_{\text{Chemistry}} + \left. \frac{\partial c_i}{\partial t} \right|_{\text{Removal}} \end{aligned}$$

式中, V_H 代表水平方向风矢量, η 是净垂直传输率, h 是层界面高度, ρ 是大气密度, K 是湍流扩散系数. 等式右边第一项代表水平平流 (风场输送), 第二项代表净垂直传输, 第三项代表湍流扩散, 第四项代表源排放, 第五项代表化学反应过程, 第六项表示污染物的去除过程.

本研究采用的模拟区域如图 1 所示, 研究采用 4 层网格嵌套, 最外层模拟区域网格精度为 $81\text{ km} \times 81\text{ km}$, 覆盖整个东亚和东南亚地区. 第二层模拟区域网格精度为 $27\text{ km} \times 27\text{ km}$; 覆盖中国中东部地区; 第三层区域网格精度为 $9\text{ km} \times 9\text{ km}$, 覆盖整

个中国东部山东省、长江三角洲地区和部分华南地区; 第四层模拟区域网格分辨率为 $3\text{ km} \times 3\text{ km}$, 面积 $90\,882\text{ km}^2$, 包括整个上海、江苏省南部(苏南)、浙江省北部(浙北)和部分海域, 模拟区域范围见图 1.

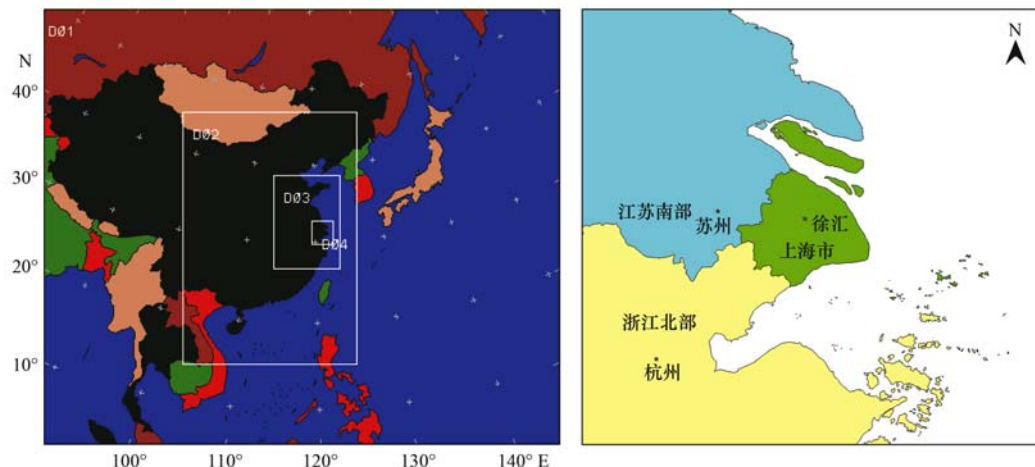


图 1 四层网格嵌套模拟区域和长三角模拟区域

Fig. 1 One way nested model domain and the inner YRD model domain

1.2 臭氧源识别技术

臭氧源识别技术 (ozone source apportionment technology, OSAT)^[20] 是一种耦合在 CAMx 数值模型中的敏感性分析和过程分析的综合方法. 该方法以示踪的方式获取有关臭氧及其前体物生成(或排放)和消耗的信息, 并统计不同地区、不同种类的污染源排放以及初始条件和边界条件对臭氧生成的贡献.

臭氧源识别技术的关键在于两个方面: ① O_3 生成是受 NO_x 控制还是 VOC 控制的判别, 对此臭氧源识别技术采用了 Sillman^[21] 提出的指示剂法判断 O_3 生成 NO_x 和 VOC 的敏感性, 判断标准为 $P_{H_2O_2}/P_{HNO_3} = 0.35$, 其中 $P_{H_2O_2}$ 和 P_{HNO_3} 是反应过程中 H_2O_2 和 HNO_3 的生成速率; 当 $P_{H_2O_2}/P_{HNO_3}$ 大于 0.35 时, O_3 生成受 NO_x 控制, $P_{H_2O_2}/P_{HNO_3}$ 小于 0.35 时, O_3 生成受 VOC 控制; ② 如何实现对 O_3 及其前体物的完全示踪, 臭氧源识别技术加入反应性示踪物的方式, 跟踪 O_3 前体物在大气中的迁移、转化和清除过程, 获取有关 O_3 及其前体物生成和消耗的信息, 为此使用了 4 种示踪物: N_i 、 V_i 、 O_3N_i 和 O_3V_i , 其中, N_i 和 V_i 分别用于示踪来自第 i 类污染源(即某个地区的某类污染源, 也可以表示模式的初始条件或边界条件)排放的 NO_x 和 VOCs, O_3N_i 和 O_3V_i 则分别表示在 NO_x 控制下和 VOCs 控制下, 第 i 类污染源排放对 O_3 的生成贡献. 综上, 臭氧源识别

技术采用 $P_{H_2O_2}/P_{HNO_3}$ 判断 O_3 生成的化学敏感性, 然后根据受点点位由 NO_x 或 VOCs 总浓度的权重大小将 O_3 化学生成量分配给污染源的示踪物 O_3N (NO_x 控制) 或 O_3V (VOC 控制), 识别不同污染源排放对 O_3 生成贡献的大小.

该方法可用于量化多个污染源区、多种污染源类别以及多种前体物类型对受体点位 O_3 的浓度贡献. OSAT 可以在一次模拟过程中, 测算所有潜在污染源对受点网格 O_3 的污染贡献, 其中包括排放、边界条件(BC)和初始条件(IC). 由于 O_3 化学的非线性, 因此采用在受点网格 O_3 生成时刻的前体物进行解析.

1.3 模型输入

模拟时段选取 2013 年 7 月 1 ~ 30 日, 模型采用 14 层垂直分层, 使用的气相化学反应机理为 CB05 化学机制^[22~25]. 气象场资料由 MM5 中尺度气象模式的运行结果提供, 为 CAMx 模式提供逐时的气象输入数据. 其中 MM5 的驱动场和初始场取自美国国家环境预报中心(NCEP)的 $1^\circ \times 1^\circ$ 全球再分析资料.

为了识别不同类型的污染源和不同地区源排放对 O_3 生成的贡献, 本研究将 O_3 前体物排放源分为 7 类, 分别是工业锅炉和窑炉、生产工艺过程排放、电厂、流动源、生活面源、挥发源和天然源, 见表 1. 外层区域大气污染物排放清单采取 INTEX ~ B 亚洲地

区排放清单^[26],内层模拟区域排放清单选取本研究团队在 2007 年建立的大气污染物排放清单^[27],并根据江浙沪两省一市重点大气污染源活动水平数据更新至 2012 年. 对于天然源 VOC 排放,研究选取 GEIA 全球排放清单 (<http://geiacenter.org>). 源追踪区域设定为 4 个,即最内层模拟区域所覆盖的上海,江苏南部、浙江北部和区域外的长距离输送,见图 1(b). 臭氧来源追踪受点选取长三角地区典型城市监测点位:上海市城区徐汇站、江苏苏州市城区站点、浙江

杭州市城区站点,见图 1(b).

初始场(IC)浓度和边界场(BC)的浓度(最外层模拟区域的直接给定)来自上一层模拟区域的模拟结果,本研究所指初始场和边界场为最内层模拟区域的初始场和边界场. 考虑到本研究主要讨论污染源类别和污染源区域对本地 O₃ 的来源贡献,故将初始场浓度、边界场浓度和内层模拟区域中的海洋部分贡献统一划分为外围输送(背景浓度和长距离输送).

表 1 污染源类型设置

Table 1 Split of emission sectors

序号	污染源类别	内容	主要 O ₃ 前体物排放
1	工业锅炉和窑炉	燃煤、燃重油、焦炭、燃气等工业锅炉和工业窑炉	NO _x 、VOCs、CO
2	生产工艺过程	石化和化工、水泥生产、炼钢、炼焦等工艺过程	VOCs、NO _x
3	电厂	燃煤、燃气电厂污染源排放	NO _x 、CO
4	流动源	汽油尾气、柴油尾气、蒸发排放、船舶飞机	NO _x 、VOCs
5	挥发源	建筑涂料、油气挥发、餐饮油烟	VOCs
6	生活源	民用燃烧	NO _x 、VOCs
7	天然源	植物排放	VOCs

2 模型性能验证

对于 CAMx 空气质量模式模拟结果的验证,通过 2013 年 7 月 O₃ 小时浓度模拟结果与上海市环境科学研究院的地面观测资料进行比对. 验证所采用的统计方法包括平均偏差(Bias)、归一化平均偏差 NMB(normalized mean bias)、标准平均误差 NME(normalized mean error)和一致性指数(IOA)^[28].

图 2 所示为 2013 年 7 月高浓度 O₃ 污染期间空气质量数值模式 CAMx 模拟值与地面观测值的时间序列. 从中可见,模式能够很好地反映出该地区 O₃ 浓度的变化态势. O₃ 模拟高值部分有所偏低,在 7 月 9~11 日和 7 月 26~28 日附近模拟值与观测值的偏差较大,这可能主要是由于气象模式对于极端高温的模拟存在一定偏差. 总体上,O₃ 的模拟值与观测值整体变化趋势吻合较好.

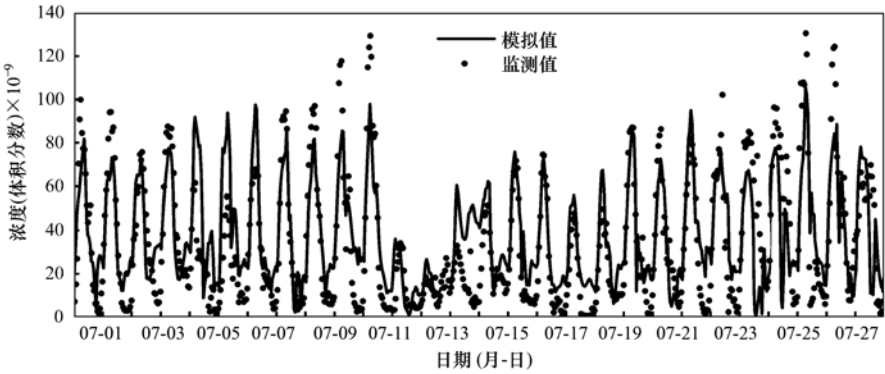


图 2 上海市环境科学研究院观测站 O₃ 模拟值与观测值浓度对比

Fig. 2 Time series of the predicted and observed O₃ concentrations at the SAES site in Shanghai

表 2 所示为高污染模拟时段内 O₃ 平均浓度、最大值、最小值的模拟值与观测值的对比. 从中可见,O₃ 平均浓度、最小值的模拟值与观测值较接近,而最大模拟值比最大观测值偏低. 统计结果显示,模拟值与观测值之间的平均偏差(Bias)为 1.04,归一化平均偏差(NMB)、标

准平均误差(NME)和一致性指数(IOA)分别为 0.12、0.43 和 0.87. 统计结果表明,模拟值与统计值拟合较好,MM5-CAMx 空气质量模型系统及大气污染物排放清单能够较好地再现 2013 年 7 月长三角地区光化学污染事件中的高浓度 O₃ 污染状况.

表 2 上海市环境科学研究院地面观测 O₃ 模拟值与观测值对比统计结果

Table 2 Statistical data of the predicted and observed O ₃ concentrations							
数据来源	平均值 × 10 ⁻⁹ (体积分数)	最大值 × 10 ⁻⁹ (体积分数)	最小值 × 10 ⁻⁹ (体积分数)	Bias	NMB	NME	IOA
观测值	90.06	130.54	0.48	1.04	0.12	0.43	0.87
模拟值	91.85	106.01	0.13				

3 结果与讨论

3.1 污染过程

2013 年 7 月 1 日~8 月上旬,长三角地区许多城市(杭州、湖州、嘉兴、宁波、舟山、苏州、南通)出现了持续时间较长、强度较高的光化学污染现象,区域同步性十分明显(<http://113.108.142.147:20035/emcpublish/>). 期间,长江中下游地区梅雨期与历年相比较短,出梅较早,副热带高压从 7 月初便开始持续控制长三角地区,受下沉气流影响,天气晴朗少云,太阳辐射较强. 如图 3 所示,7 月上海、苏州与杭州的晴天天数为 11、13 和 19 d,多云天数为 14、13 和 7 d,总体上晴天与多云天占 7 月总天数的 80% 以上. 7 月气温趋势如图 4 所示,上海、苏州与杭州最高气温超过 35℃ 的高温天数均为 28 d. 其次大气环流异常,7、8 月间北上并深入内陆的台风几乎没有,台风影响偏南,主要在台湾海峡和南海一带活动,加剧了副热带高压控制强度,导致长三角地区出现高温,高压的气象条件. 充足的太阳光照与高温天气为 O₃ 的光化学氧化生成提供了有利条件. 地面主导风向多为偏南风且风速较小(图 5),污染物难以扩散,为本地 O₃ 前体物的排放累积创造条件. 综合以上条件导致长三角地区 7 月 O₃ 超标现象严重.

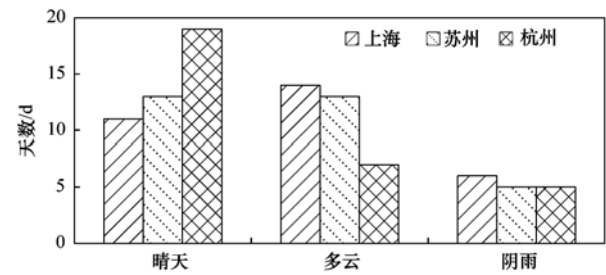


图 3 2013 年 7 月天气状况统计

Fig. 3 Weather statistical data during July, 2013

3.2 高污染期间 O₃ 地区来源贡献分析

3.2.1 上海城区 O₃ 的地区来源贡献

2013 年 7 月高浓度 O₃ 污染期间,上海 O₃ 浓度的区域贡献如图 6 所示. 从中可见,上海城区白天

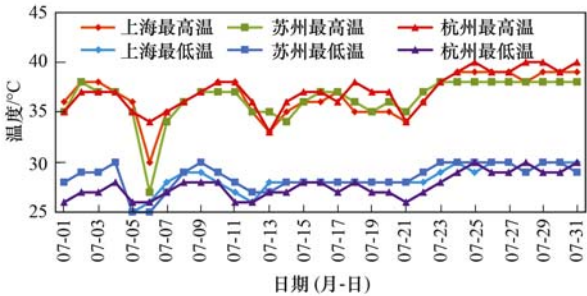


图 4 2013 年 7 月最高气温和最低气温走势

Fig. 4 Maximum and minimum temperature trends during July, 2013

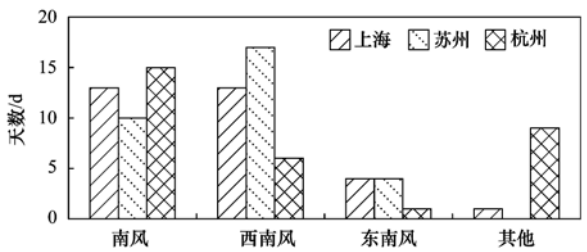


图 5 2013 年 7 月风向统计

Fig. 5 Wind statistical data during July, 2013

高浓度 O₃ 由上海本地、浙北地区人为源前体物排放及外围输送共同作用所致,而在 O₃ 浓度较低时,长距离输送以及区域背景浓度占主导地位. 其中,长距离输送以及区域背景产生的 O₃ 浓度约在 20 × 10⁻⁹ ~ 30 × 10⁻⁹ (体积分数)之间;加上上海及周边苏南、浙北地区排放的前体物在上海地区二次生成 O₃,可使 O₃ 浓度上升至 40 × 10⁻⁹ ~ 100 × 10⁻⁹ (体积分数)乃至更高. 浙江和江苏的相对贡献大小主要受风向控制. 从整个模拟时间段来看,浙北地区贡献大于苏南,这是因为夏季上海主导风向是东南风,而浙江位于上海的南部地区.

如表 3 所示日间 8 h(08:00~16:00) O₃ 浓度区域贡献,外围输送对上海城区 O₃ 浓度贡献平均为 42.79% ± 10.17%,这部分贡献既包括上风向源区排放的 NO_x、VOCs 等前体物输送到上海并发生光化学反应生成 O₃,还包括传输途径中形成的 O₃ 直接传输到上海. 上海本地污染源排放对城区日间 8 h O₃ 浓度平均贡献为 28.94% ± 8.49%,浙北贡献约为 19.83% ± 10.55%,苏南为 8.44% ± 7.23%.

表 3 2013 年 7 月期间长三角代表城市 O₃ 的地区贡献

受点/源区	日间 8 h O ₃ 浓度地区贡献/%			日最大 O ₃ 浓度地区贡献/%		
	上海	苏州	杭州	上海	苏州	杭州
上海	28.94 ± 8.49	9.82 ± 6.13	7.73 ± 0.91	31.63 ± 10.89	8.78 ± 5.64	7.46 ± 1.17
苏南	8.44 ± 7.23	26.41 ± 6.80	2.58 ± 0.30	8.15 ± 8.07	27.70 ± 9.07	2.49 ± 0.39
浙北	19.83 ± 10.55	15.11 ± 9.85	29.56 ± 8.33	24.86 ± 13.19	20.82 ± 12.07	32.01 ± 10.65
长距离输送	42.79 ± 10.17	48.57 ± 9.97	60.13 ± 7.11	35.35 ± 9.95	42.70 ± 10.79	58.04 ± 9.09

从日最大 O₃ 浓度地区贡献平均贡献来看,外围输送对上海城区贡献平均为 35.35% ± 9.95%,上海市污染源排放对 O₃ 浓度的平均贡献为 31.63% ± 10.89%,浙北贡献约为 24.86% ± 13.19%,苏南为 8.15% ± 8.07%。表明上海本地污染物排放对于造成白天高 O₃ 浓度起着至关重要的作用,因此控制上海本地污染物的排放是减轻上海本地高浓度 O₃ 污

染的重要途径。如果扣除外围输送,对于日间高浓度 O₃ 时段内的区域贡献分别是:上海本地对高值的平均贡献为 50.59%,浙北平均贡献约 31.66%,苏南贡献约 11.88%。可见昼间高浓度 O₃ 过程中,本地排放以及上风向的浙北地区是上海城区 O₃ 最主要的污染来源。

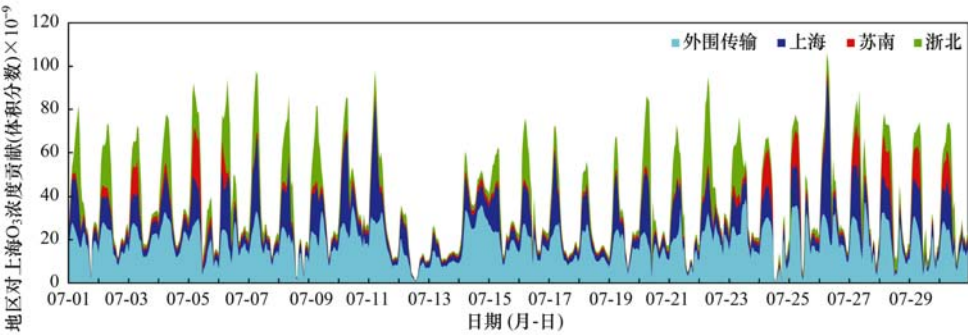


图 6 2013 年 7 月上海市 O₃ 污染地区贡献时间序列

Fig. 6 Time series of the regional contribution to O₃ concentrations in Shanghai during July, 2013

3.2.2 苏州市 O₃ 的地区来源贡献

在长三角区域,苏州市位于江苏南部地区,地处上海市西北方向、浙江省东北方向,在夏季主导风向影响下,该地区同时处于上海和浙江的下风向。如图 7 所示,以苏州城区站点作为受点分析,针对苏州开展的臭氧来源追踪研究结果表明,在 2013 年夏季一次高浓度 O₃ 污染期间,长距离输送以及区域背

景对该地区所造成的 O₃ 浓度处于 20 × 10⁻⁹ ~ 40 × 10⁻⁹ (体积分数) 上下,江苏、上海、浙江大气污染源排放共同使得该地区 O₃ 浓度在日间出现高值,最高可达 100 × 10⁻⁹ (体积分数)。该时段内 O₃ 污染的地区贡献解析显示,苏州城区白天高浓度 O₃ 来源与上海情况略有不同,受西南风主导风向作用,主要由江苏本地和浙北人为源前体物的排放和长距离输

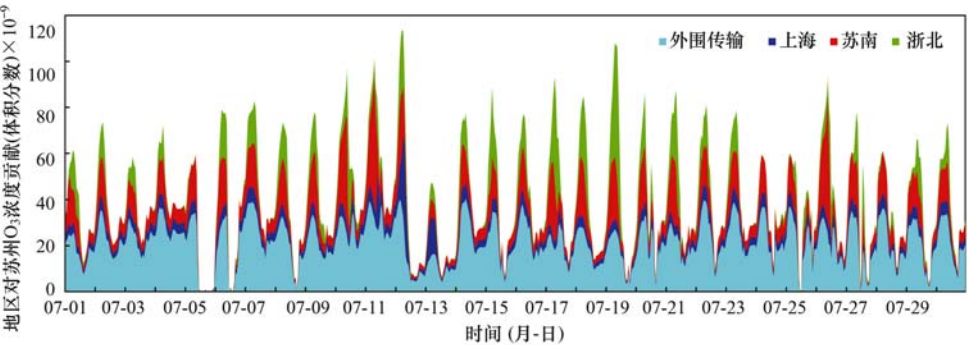


图 7 2013 年 7 月苏州市 O₃ 污染地区贡献时间序列

Fig. 7 Time series of the regional contribution to O₃ concentrations in Suzhou during July, 2013

送作用而致.

表 3 所示为 7 月日间 8 h O₃ 浓度来源解析结果,由表可见,长距离传输贡献在苏州 O₃ 区域贡献中占比为 $48.57\% \pm 9.97\%$,江苏南部贡献约 $26.41\% \pm 6.80\%$,浙江北部贡献约 $15.11\% \pm 9.85\%$. 针对日最大 O₃ 浓度的来源解析结果表明,江苏南部大气污染源排放对于 O₃ 高值贡献有所增加,平均贡献约占 $27.70\% \pm 9.07\%$,地处上风向的浙江北部地区平均贡献约 $20.82\% \pm 12.07\%$. 由此可见,控制浙江北部和江苏南部大气污染源排放,对于降低苏州日间 O₃ 高值将起到显著作用.

3.2.3 杭州市 O₃ 的地区来源贡献

由图 1(b)可见,杭州受点位于长三角模拟区域内的西南方,处于夏季上海市和江苏省的上风向地区,该时段内 O₃ 污染的地区贡献解析显示,与上海

和苏州城区明显不同,该时段日间高浓度 O₃ 主要由本地排放源和长距离输送造成. 如表 3 所示,无论日间 8 h O₃ 浓度,还是日间最大 O₃ 浓度,区域贡献的解析结果均表明,浙江北部大气污染物排放源均是造成 O₃ 高值的主导因素,对模拟时段内日间 8 h O₃ 浓度平均贡献约 $29.56\% \pm 8.33\%$,对日最大 O₃ 浓度贡献平均为 $32.01\% \pm 10.65\%$.

图 8 显示外围传输对杭州受点的 O₃ 贡献高达 65.71%,不仅决定夜间的浓度水平,而且对日间 O₃ 峰值的高低也起主要作用,这是因为夏季长三角地区盛行西南风而杭州处于内层模拟区域的南端,如图 1(b)所示,上海和苏南处在杭州的下风向,因此对其贡献较小. 杭州的上风向大都在内层模拟区域外,这一部分的来源贡献归入外围传输,故外围的贡献较大.

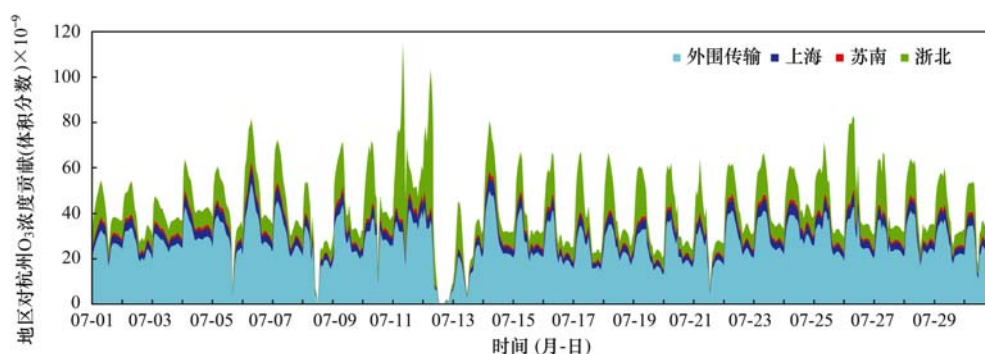


图 8 2013 年 7 月杭州市 O₃ 污染地区贡献时间序列

Fig. 8 Time series of the regional contribution to O₃ concentrations in Hangzhou during July, 2013

3.3 高污染期间 O₃ 源类贡献分析

3.3.1 上海城区 O₃ 的源类贡献

图 9 所示为模拟区域内 7 类主要污染源对 2013 年 7 月上海城区 O₃ 浓度贡献. 从中可见,大约 $20 \times 10^{-9} \sim 40 \times 10^{-9}$ (体积分数) 的 O₃ 主要来自于背景浓度以及模拟区域以外的长距离传输,而日间 O₃ 高值则主要由于区域范围内的主要污染源排放大量前体物经化学反应生成所致. 从长三角区域不同类型污染源对此次光化学污染事件中 O₃ 的浓度贡献来看,2013 年 7 月重污染期间,上海城区 O₃ 的主要源类贡献为长三角区域范围内的生产工艺过程、流动源、工业锅炉和窑炉、天然源. 由表 4 可见,如果不考虑长距离输送,这几类污染源对日间 (08:00 ~ 16:00) 上海城区高浓度 O₃ 的贡献分别为 $28.46\% \pm 11.46\%$ 、 $23.51\% \pm 6.43\%$ 、 $18.4\% \pm 7.81\%$ 和 $13.01\% \pm 3.27\%$. 生产工艺过程中的原油加工、化工、建材和工业溶剂生产使用等排放大

量的 VOCs,工业锅炉和窑炉由于燃料煤、重油、焦炭等燃料燃烧排放大量 NO_x,机动车尾气中的成分主要包括光化学反应活跃的 VOCs 物种与 NO_x,因此,这些长三角区域内大量前体物的排放源对于高浓度 O₃ 造成了显著贡献.

对上海城区日最大 O₃ 浓度污染贡献较大的几类源依次分别为生产工艺过程 $25.56\% \pm 10.39\%$ 、工业锅炉和窑炉 $22.27\% \pm 7.28\%$ 、流动源 $21.28\% \pm 6.18\%$ 、天然源 $12.16\% \pm 3.32\%$ 、电厂源 $8.44\% \pm 2.04\%$. 可见,长三角区域范围内工业源、流动源、天然源是造成上海城区高浓度 O₃ 的主导污染源.

3.3.2 苏州市 O₃ 的源类贡献

2013 年 7 月长三角地区光化学污染期间,苏州市 O₃ 源类贡献结果见图 10. 由图 10 与表 4 可见,苏州地区日间 8 h O₃ 的主要源贡献包括工业锅炉和窑炉 ($21.11\% \pm 8.29\%$)、生产工艺过程

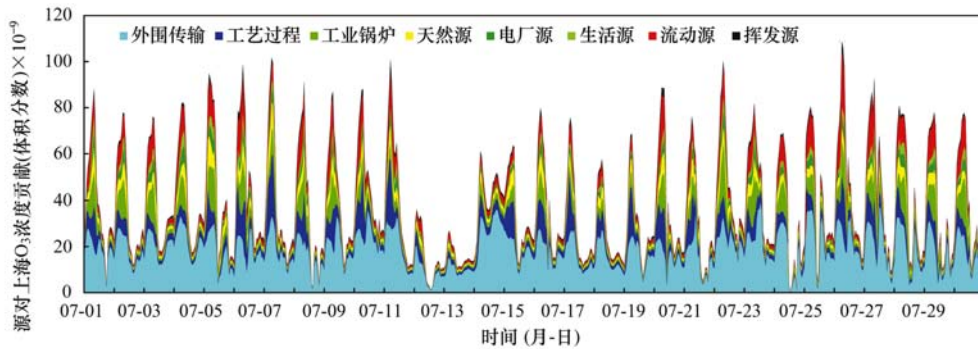


图9 各类污染源对上海市 O_3 浓度贡献时间序列

Fig. 9 Time series of the source category contribution to O_3 concentrations in Shanghai

($19.85\% \pm 7.80\%$)、流动源 ($21.30\% \pm 4.56\%$)、天然源 ($17.07\% \pm 5.15\%$)、电厂 ($9.75\% \pm 4.11\%$)。日最大 O_3 浓度贡献中,工业锅炉和窑炉贡献约 $27.12\% \pm 7.24\%$,流动源占 $18.97\% \pm 4.61\%$ 、生产工艺过程贡献占 14.60%

$\pm 5.18\%$ 、天然源占 $13.97\% \pm 4.44\%$ 、电厂贡献约 $12.35\% \pm 4.60\%$,对比日间 8 h 与最大值贡献可知,工业和流动源是造成苏州市高浓度 O_3 的主导污染源. 生产工艺过程、天然源和电厂源的占比也较为突出.

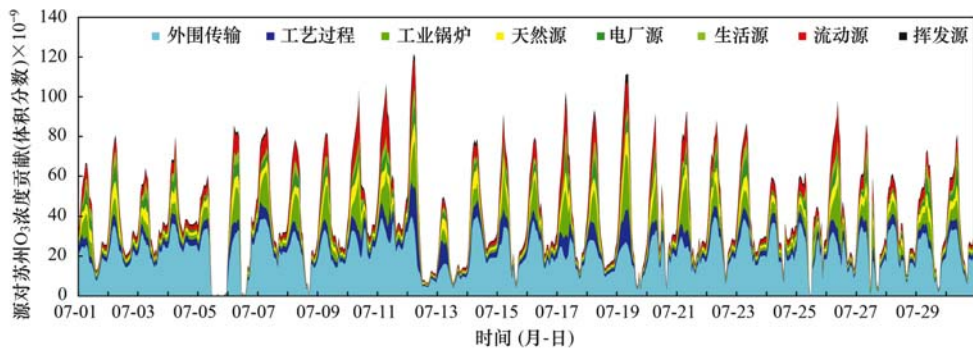


图10 各类污染源对苏州市 O_3 浓度贡献时间序列

Fig. 10 Time series of the source category contribution to O_3 concentrations in Suzhou

3.3.3 杭州市 O_3 的源类贡献

江苏省杭州市 O_3 来源追踪结果如图 11 所示. 研究结果表明,2013 年 7 月,杭州地区日间 8 h O_3 浓度的主要源贡献包括生产工艺过程 ($25.03\% \pm 4.80\%$)、流动源 ($22.24\% \pm 3.64\%$)、工业锅炉和

窑炉 ($20.47\% \pm 4.87\%$) 天然源 ($15.25\% \pm 4.34\%$) 和电厂 ($8.41\% \pm 1.88\%$). 日最大 O_3 浓度的主要污染源贡献则与日间 8 h 浓度贡献一致,为生产工艺过程、工业锅炉和窑炉、流动源、天然源和电厂.

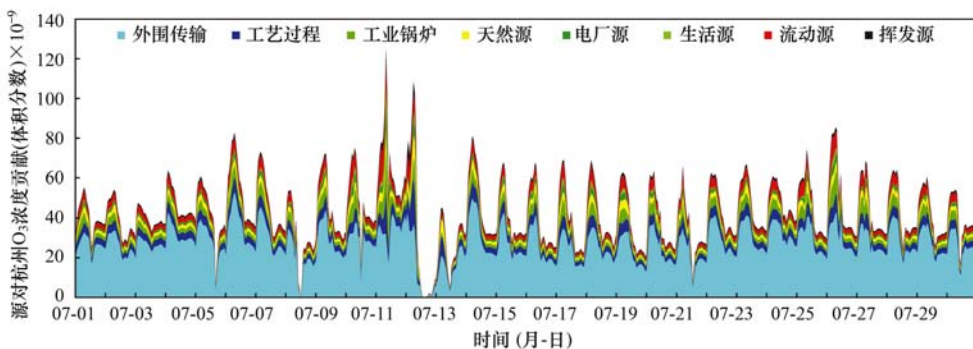


图11 各类污染源对杭州市 O_3 浓度贡献时间序列

Fig. 11 Time series of the source category contribution to O_3 concentrations in Hangzhou

表 4 长三角区域主要污染源对 2013 年 7 月期间长三角城市 O₃ 高值浓度贡献

Table 4 Source category contributions to high O₃ concentrations in the Yangtze River Delta during July, 2013

项目	日间 8 h O ₃ 浓度源贡献/%			日最大 O ₃ 浓度源贡献/%		
	上海	苏州	杭州	上海	苏州	杭州
生产工艺过程	28.46 ± 11.46	19.85 ± 7.80	25.03 ± 4.80	25.56 ± 10.39	14.60 ± 5.18	23.50 ± 4.12
工业锅炉和窑炉	18.40 ± 7.81	21.11 ± 8.29	20.47 ± 4.87	22.27 ± 7.28	27.12 ± 7.24	21.84 ± 3.88
天然源	13.01 ± 3.27	17.07 ± 5.15	15.25 ± 4.34	12.16 ± 3.32	13.97 ± 4.44	14.44 ± 4.06
电厂	7.08 ± 2.31	9.75 ± 4.11	8.41 ± 1.88	8.44 ± 2.04	12.35 ± 4.60	9.60 ± 1.89
生活源	4.41 ± 2.90	6.46 ± 4.58	3.13 ± 2.30	6.54 ± 2.33	9.82 ± 4.91	4.72 ± 2.79
流动源	23.51 ± 6.43	21.30 ± 4.56	22.24 ± 3.64	21.28 ± 6.18	18.97 ± 4.61	21.00 ± 3.32
挥发源	5.12 ± 2.19	4.47 ± 1.84	5.48 ± 1.68	3.75 ± 1.14	3.16 ± 0.96	4.91 ± 0.85

4 结论

(1)2013 年 7 月高浓度 O₃ 污染事件期间,长距离输送以及背景浓度对长三角不同受点贡献的 O₃ 浓度在 20 × 10⁻⁹ ~ 40 × 10⁻⁹ (体积分数)上下. 其中针对日间 8 h (08:00 ~ 16:00) O₃ 浓度的地区贡献分析结果显示,长距离传输对于上海、苏州、杭州的浓度贡献分别为 42.79% ± 10.17%、48.57% ± 9.97%、60.13% ± 7.11%;上海城区 O₃ 来源中,上海本地污染贡献平均为 28.94% ± 8.49%;苏州城区 O₃ 来源中,苏南地区贡献约 26.41% ± 6.80%;杭州城区 O₃ 来源中,浙北地区贡献约 29.56% ± 8.33%;可见本地贡献是日间 O₃ 高值污染的主要原因. 从各受点日最大 O₃ 浓度贡献来看,长距离传输贡献比例有所下降 (35.35% ~ 58.04%),而本地污染贡献上升.

(2)长三角区域污染源贡献分析结果表明,长三角地区对 O₃ 污染贡献最为突出的几类污染源分别是工业锅炉和窑炉 (贡献约 18.4% ~ 21.11%)、生产工艺过程 (19.85% ~ 28.46%)、流动源 (21.30% ~ 23.51%)、天然源 (13.01% ~ 17.07%) 和电厂排放 (7.08% ~ 9.75%). 工业锅炉和窑炉燃烧产生的 NO_x 等前体物排放对于杭州市、苏州市高浓度 O₃ 贡献最突出,而生产工艺过程中排放的各种挥发性有机物对于上海市 O₃ 贡献最明显. 在整个区域流动源的贡献均高达 22% 左右,贡献十分突出. 区域高架源电厂贡献也不容忽视,特别是对于区域下风向的苏州市贡献最明显. 挥发性污染源产生的无组织排放,对于区域 O₃ 浓度也有一定浓度贡献.

(3)研究表明,上海、苏南和浙北地区大气 O₃ 污染是本地活性物质的一次排放和外源伴随生成共同作用的结果,在高污染时段以本地贡献占主导地位. 在区域污染源中,重点工艺过程排放的 VOC 贡献最为显著,其次为交通源、工业锅炉和窑炉,以及

天然源和民用挥发源等其他污染源排放. 由此可见,工业污染燃烧排放、生产工艺过程中产生的 VOC 排放以及流动源大气污染物排放,是造成长三角区域夏季高浓度 O₃ 的主要人为源.

参考文献:

[1] 唐孝炎,张远航,邵敏. 大气环境化学[M]. (第二版). 北京:高等教育出版社,2006.

[2] 张远航,邵可声,唐孝炎,等. 中国城市光化学烟雾污染研究[J]. 北京大学学报(自然科学版),1998, 34(2-3): 392-400.

[3] Shao M, Tang X Y, Zhang Y H, *et al.* City clusters in China: air and surface water pollution [J]. *Frontiers in Ecology and the Environment*, 2006, 4(7): 353-361.

[4] Streets D G, Fu J S, Jang C J, *et al.* Air quality during the 2008 Beijing Olympic Games [J]. *Atmospheric Environment*, 2007, 41(3): 480-492.

[5] Zhang Y H, Zhu X L, Slanina S, *et al.* Aerosol pollution in some Chinese cities[J]. *Pure and Applied Chemistry*, 2004, 76(6): 1227-1239.

[6] 孔琴心,刘广仁,李桂忱. 近地面臭氧浓度变化及其对人体健康的可能影响 [J]. *气候与环境研究*, 1999, 4(1): 61-66.

[7] 马一琳,张远航. 北京大气光化学氧化剂污染研究 [J]. *环境科学研究*, 2000, 13(1): 14-17.

[8] Yang C X, Yang H B, Guo S, *et al.* Alternative ozone metrics and daily mortality in Suzhou: the China air pollution and health effects study(CAPES) [J]. *Science of the Total Environment*, 2012, 426(1): 83-89.

[9] Liu T, Li T T, Zhang Y H, *et al.* The short-term effect of ambient ozone on mortality is modified by temperature in Guangzhou, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2013, 76: 59-67.

[10] Huang J P, Zhou C H, Lee X H, *et al.* The effects of rapid urbanization on the levels in tropospheric nitrogen dioxide and ozone over East China [J]. *Atmospheric Environment*, 2013, 77: 558-567.

[11] Zhang Y N, Xiang Y R, Chan L Y, *et al.* Procuring the regional urbanization and industrialization effect on ozone pollution in Pearl River Delta of Guangdong, China [J]. *Atmospheric Environment*, 2011, 45(28): 4898-4906.

[12] Chen P F, Quan J N, Zhang Q, *et al.* Measurements of vertical

- and horizontal distributions of ozone over Beijing from 2007 to 2010 [J]. *Atmospheric Environment*, 2013, **74**: 37-44.
- [13] Xing J, Wang S X, Jang C, *et al.* Nonlinear response of ozone to precursor emission changes in China: a modeling study using response surface methodology [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2011, **11**: 5027-5044.
- [14] Kim S, Byun D W, Cohan D. Contributions of inter-and intra-state emissions to ozone over Dallas-Fort Worth, Texas [J]. *Civil Engineering and Environmental Systems*, 2009, **26**: 103-116.
- [15] Li L, Chen C H, Huang C, *et al.* Ozone sensitivity analysis with the MM5-CMAQ modeling system for Shanghai [J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2011, **23**(7): 1150-1157.
- [16] Li Y, Lau A K H, Fung J C H, *et al.* Ozone source apportionment(OSAT) to differentiate local regional and super-regional source contributions in the Pearl River Delta region, China [J]. *Journal of Geophysics Research*, 2012, **117**: D15305, doi: 10.1029/2011JD017340.
- [17] 王雪松, 李金龙, 张远航, 等. 北京地区臭氧污染的来源分析[J]. *中国科学 B 辑: 化学*, 2009, **39**(6): 548-559.
- [18] 王雪松, 李金龙. 北京地区臭氧源识别个例研究[J]. *北京大学学报(自然科学版)*, 2003, **39**(2): 244-253.
- [19] CAMx User's Guide comprehensive air quality model with extensions Version 5.10 [M]. ENVIRON International Corporation, 1997-2009.
- [20] Yarwood G, Morris R E, Yocke M A, *et al.* Development of a methodology for source apportionment of ozone concentration estimates from a photochemical grid model [Z]. Presented at the 89th AWMA Annual Meeting, Nashville TN, 1996.
- [21] Sillman S. The use of NO_y, H₂O₂, and HNO₃ as indicators for ozone-NO_x-hydrocarbon sensitivity in urban locations [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* (1984-2012), 1995, **100**(D7): 14175-14188.
- [22] Yarwood G, Rao S, Yocke M, *et al.* Updates to the carbon bond chemical mechanism: CB05[R]. Final Report prepared for US EPA, 2005. Available at http://www.camx.com/publ/pdfs/CB05_Final_Report_120805.pdf.
- [23] Dunker A M, Yarwood G, Ortman J P, *et al.* Comparison of source apportionment and source sensitivity of ozone in a three-dimensional air quality model [J]. *Environmental Science & Technology*, 2002, **36**(13): 2953-2964.
- [24] Yarwood G, Stoeckenius T E, Wilson G, *et al.* Development of a methodology to assess geographic and temporal ozone control strategies for the South Coast Air Basin [Z]. Prepared for South Coast Air Quality Management District, Diamond Bar, CA.
- [25] Yarwood G, Whitten G Z, Rao S. Updates to the Carbon Bond 4 Photochemical Mechanism[Z]. Prepared for the Lake Michigan Air Directors Consortium, Des Plaines, 2005.
- [26] Zhang Q, Streets D G, Carmichael G R, *et al.* Asian emissions in 2006 for the NASA INTEX-B mission [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2009, **9**: 5131-5153.
- [27] Huang C, Chen C H, Li L, *et al.* Emission inventory of anthropogenic air pollutants and VOC species in the Yangtze River Delta region, China [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2011, **11**: 4105-4120.
- [28] Boylan J W, Russell A G. PM and light extinction model performance metrics, goals, and criteria for three-dimensional air quality models [J]. *Atmospheric Environment*, 2006, **40**(26): 4946-4959.

CONTENTS

Ozone Source Apportionment at Urban Area during a Typical Photochemical Pollution Episode in the Summer of 2013 in the Yangtze River Delta	LI Hao, LI Li, HUANG Cheng, <i>et al.</i> (1)
Pollution Characteristics and Ozone Formation Potential of Ambient VOCs in Winter and Spring in Xiamen	XU Hui, ZHANG Han, XING Zhen-yu, <i>et al.</i> (11)
Temporal and Spatial Characteristics of Atmospheric NO ₂ over Hainan Island and the Pollutant Sources in Recent 10 Years	FU Chuan-bo, CHEN You-long, DAN Li, <i>et al.</i> (18)
Composition of Organic Carbon/Elemental Carbon and Water-soluble Ions in Rice Straw Burning	HONG Lei, LIU Gang, YANG Meng, <i>et al.</i> (25)
Gas Chromatography with a Pulsed Discharge Helium Ionization Detector for Measurement of Molecular Hydrogen(H ₂) in the Atmosphere	LUAN Tian, FANG Shuang-xi, ZHOU Ling-xi, <i>et al.</i> (34)
Partial Pressure of CO ₂ and CO ₂ Degassing Fluxes of Huayankou and Xiaolangdi Station Affected by Xiaolangdi Reservoir	ZHANG Yong-ling, YANG Xiao-lin, ZHANG Dong (40)
Distribution of Biogenic Organic Dimethylated Sulfur Compounds and Its Influencing Factors in the East China Sea in Summer	LI Jiang-ping, ZHANG Hong-hai, YANG Gui-peng (49)
Remote Sensing Estimation of Total Suspended Matter Concentration in Xin'anjiang Reservoir Using Landsat 8 Data	ZHANG Yi-bo, ZHANG Yun-lin, ZHA Yong, <i>et al.</i> (56)
Spatio-temporal Characteristics and Source Identification of Water Pollutants in Wenruiang River Watershed	MA Xiao-xue, WANG La-chun, LIAO Ling-ling (64)
Effect of Hydrochemistry Characteristics Under Impact of Human Activity: A Case Study in the upper Reaches of the Xijiang River Basin	YU Shi, SUN Ping-an, DU Wen-yue, <i>et al.</i> (72)
Annual Variation of Different Phosphorus Forms and Response of Algae Growth in Meiliang Bay of Taihu Lake	WANG Ming, WU Xiao-fei, LI Da-peng, <i>et al.</i> (80)
Distribution of Transferable Nitrogen in Poyang Lake Sediments and Its Response to the Variation of River-Lake Relationship	SHEN Hong-yan, ZHANG Mian-mian, NI Zhao-kui, <i>et al.</i> (87)
Effect of Environmental Factors on Macroinvertebrate Community Structure in the Huntai River Basin in the Huntai River Basin	LI Yan-li, LI Yan-fen, XU Zong-xue (94)
Effects of Outbreak and Extinction of Algal Blooms on the Microbial Community Structure in Sediments of Chaohu Lake	DIAO Xiao-jun, LI Yi-wei, WANG Shu-guang (107)
Impacts of Algal Blooms Accumulation on Physiological Ecology of Water Hyacinth	WU Ting-ting, LIU Guo-feng, HAN Shi-qun, <i>et al.</i> (114)
Speciation and Spatial-temporal Variation of Mercury in the Xiaolangdi Reservoir	CHENG Liu, MAO Yu-xiang, MA Bing-juan, <i>et al.</i> (121)
Spatial Distribution of Mercury in Soils of a Typical Small Agricultural Watershed in the Three Gorges Reservoir Region	WANG Ya, ZHAO Zheng, MU Zhi-jian, <i>et al.</i> (130)
Temporal and Spatial Variation of Mercury in Water of Agro-forestry and Livestock Compound Watershed in the Three Gorges Reservoir Area	ZHAO Zheng, WANG Ya, MU Zhi-jian, <i>et al.</i> (136)
Effect of External Condition on the Static Migration and Release of Dibutyl-phthalate in the Soil of the Fluctuating Zone of the Three Gorges Reservoir to the Overlying Water	SONG Jiao-yan, MU Zhi-jian, WANG Qiang, <i>et al.</i> (143)
Ultraviolet-Visible(UV-Vis) and Fluorescence Spectral Characteristics of Dissolved Organic Matter(DOM) in Soils of Water-Level Fluctuation Zones of the Three Gorges Reservoir Region	GAO Jie, JIANG Tao, LI Lu-lu, <i>et al.</i> (151)
Characterization of Chromophoric Dissolved Organic Matter(CDOM) in Zhoushan Fishery Using Excitation-Emission Matrix Spectroscopy(EEMs) and Parallel Factor Analysis(PARAFAC)	ZHOU Qian-qian, SU Rong-guo, BAI Ying, <i>et al.</i> (163)
Pollution Characteristics and Distribution of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Organochlorine Pesticides in Groundwater at Xiaodian Sewage Irrigation Area, Taiyuan City	LI Jia-le, ZHANG Cai-xiang, WANG Yan-xin, <i>et al.</i> (172)
Risk Assessment and Analysis of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in the Surface Sediments of Xinglin Bay Suburb Rivers of Xiamen	CHENG Qi-ming, HUANG Qing, LIAO Zhen-ni, <i>et al.</i> (179)
Comparative Analysis of Two Different Methods for Risk Assessment of Groundwater Pollution: A Case Study in Beijing Plain	WANG Hong-na, HE Jiang-tao, MA Wen-jie, <i>et al.</i> (186)
Transportation and Risk Assessment of Heavy Metal Pollution in Water-Soil from the Riparian Zone of Daye Lake, China	ZHANG Jia-quan, LI Xiu, ZHANG Quan-fa, <i>et al.</i> (194)
Arsenic Removal by Coagulation Process and the Field Expanding Experiments for Yangzonghai Lake	CHEN Jing, ZHANG Shu, YANG Xiang-jun, <i>et al.</i> (202)
Efficient Oxidative Degradation of Tetrabromobisphenol A by Silver Bismuth Oxide	CHEN Man-tang, SONG Zhou, WANG Nan, <i>et al.</i> (209)
Removal of Tetracycline by a Kind of Nano-Sized Amorphous Carbon	WU Yi-xiao, LI Ai-min, WANG Di-hua, <i>et al.</i> (215)
Adsorption Behavior of Anionic Dyes onto Magnetic Chitosan Derivatives	ZHANG Cong-lu, HU Xiao-min, ZHAO Yan, <i>et al.</i> (221)
Forming Mechanism of Humic Acid-Kaolin Complexes and the Adsorption of Trichloroethylene	ZHU Xiao-jing, HE Jiang-tao, SU Si-hui (227)
Impact on the Microbial Community of Municipal Sewage in the ANAMMOX System During the Cooling Process	ZHAO Zhi-rui, MIAO Zhi-jia, LI Duo, <i>et al.</i> (237)
Application of FISH-NanoSIMS Technique in Environmental Microbial Ecology Study	CHEN Chen, BAI Yao-hui, LIANG Jin-song, <i>et al.</i> (244)
Influence of Microcystin-LR on Cell Viability and Surface Characteristics of <i>Pseudomonas putida</i>	DENG Ting-jin, YE Jin-shao, PENG Hui, <i>et al.</i> (252)
Screening, Combination of Microbial Deodorizer and the Optimization of Its Deodorizing Conditions	ZENG Su, LI Nan-hua, SHENG Hong-chan, <i>et al.</i> (259)
Distribution and Enrichment Characteristics of Organochlorine Pesticides in Water and Halobios from Qingbang Island in Zhoushan, China	ZHANG Ze-zhou, XING Xin-li, GU Yan-sheng, <i>et al.</i> (266)
Levels of Polychlorinated Biphenyls in Tibetan and Yi Adolescents' Hair from Liangshan Prefecture, Sichuan Province	ZHOU Ying, SUN Yi-ming, JIN Jun, <i>et al.</i> (274)
Effects of Single and Co-Exposure of Cu and Chlorpyrifos on the Toxicity of Earthworm	XU Dong-mei, WANG Yan-hua, WANG Nan, <i>et al.</i> (280)
Effect of Exogenous Selenium on Accumulation and Chemical Forms of Cadmium in Cucumber(<i>Cucumis sativus</i> L.)	XIONG Shi-juan, LIU Jun, XU Wei-hong, <i>et al.</i> (286)
Pollution Characteristics of Platinum Group Elements in Road Rust in Xiamen	HONG Zhen-yu, HONG You-wei, YIN Li-qian, <i>et al.</i> (295)
Spatial Distribution of Se in Soils from Different Land Use Types and Its Influencing Factors Within the Yanghe Watershed, China	SHANG Jing-min, LUO Wei, WU Guang-hong, <i>et al.</i> (301)
Immobilization Impact of Different Fixatives on Heavy Metals Contaminated Soil	WU Lie-shan, ZENG Dong-mei, MO Xiao-rong, <i>et al.</i> (309)
Form Tendency and Bio-availability Dynamics of Cu and Zn in Different Farm Soils After Application of Organic Fertilizer of Livestock and Poultry Manures	SHANG He-ping, LI Yang, ZHANG Tao, <i>et al.</i> (314)
Analysis of Composition Characteristics of Municipal Solid Waste in South China	ZHANG Hai-long, LI Xiang-ping, QI Jian-ying, <i>et al.</i> (325)
Sewage Sludge Conditioning by Bioleaching Combined with Fenton-like Oxidation	LIU Chang-geng, ZHANG Pan-yue, JIANG Jiao-jiao, <i>et al.</i> (333)
Applicability of Bisphenol A Detection by a Planar Waveguide Fluorescent Biosensor	XU Wei-qi, ZHANG Yong-ming, ZHOU Xiao-hong, <i>et al.</i> (338)
A New "Turn-on" Fluorescent Probe for Visual Detection of Hydrogen Sulfide	LIU Chun-xia, MA Xing, WEI Guo-hua, <i>et al.</i> (343)
Analysis of Sap Flow Characteristics of the Chinese Pine in Typical Loess Plateau Region of China	ZHANG Han-dan, WEI Wei, CHEN Li-ding, <i>et al.</i> (349)
Simultaneous Production of Hydrogen and Volatile Fatty Acid from <i>Macrocystis pyrifera</i>	ZHAO Xiao-xian, FAN Xiao-lei, GUO Rong-bo, <i>et al.</i> (357)
Behaviors of Engineered Nanoparticles in Aquatic Environments and Impacts on Marine Phytoplankton	LI Man-lu, JIANG Yue-lu (365)

《环境科学》第6届编辑委员会

主 编: 欧阳自远

副主编: 赵景柱 郝吉明 田 刚

编 委: (按姓氏笔画排序)

万国江 王华聪 王凯军 王绪绪 田 刚 田 静 史培军
朱永官 刘志培 汤鸿霄 陈吉宁 孟 伟 周宗灿 林金明
欧阳自远 赵景柱 姜 林 郝郑平 郝吉明 聂永丰 黄 霞
黄 耀 鲍 强 潘 纲 潘 涛 魏复盛

环 境 科 学

(HUANJING KEXUE)

(月刊 1976年8月创刊)

2015年1月15日 第36卷 第1期

ENVIRONMENTAL SCIENCE

(Monthly Started in 1976)

Vol. 36 No. 1 Jan. 15, 2015

主 管	中国科学院	Superintended	by	Chinese Academy of Sciences
主 办	中国科学院生态环境研究中心	Sponsored	by	Research Center for Eco-Environmental Sciences, Chinese Academy of Sciences
协 办	(以参加先后为序) 北京市环境保护科学研究院 清华大学环境学院	Co-Sponsored	by	Beijing Municipal Research Institute of Environmental Protection School of Environment, Tsinghua University
主 编	欧阳自远	Editor-in -Chief		OUYANG Zi-yuan
编 辑	《环境科学》编辑委员会 北京市 2871 信箱(海淀区双清路 18 号, 邮政编码: 100085) 电话: 010-62941102, 010-62849343 传真: 010-62849343 E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn	Edited	by	The Editorial Board of Environmental Science (HUANJING KEXUE) P. O. Box 2871, Beijing 100085, China Tel: 010-62941102, 010-62849343; Fax: 010-62849343 E-mail: hjkx@ rcees. ac. cn http://www. hjkx. ac. cn
出 版	科 学 出 版 社 北京东黄城根北街 16 号 邮政编码: 100717	Published	by	Science Press 16 Donghuangchenggen North Street, Beijing 100717, China
印 刷 装 订	北京北林印刷厂	Printed	by	Beijing Bei Lin Printing House
发 行	科 学 出 版 社 电话: 010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com	Distributed	by	Science Press Tel: 010-64017032 E-mail: journal@ mail. sciencep. com
订 购 处	全国各地邮电局	Domestic		All Local Post Offices in China
国外总发行	中国国际图书贸易总公司 (北京 399 信箱)	Foreign		China International Book Trading Corporation (Guoji Shudian), P. O. Box 399, Beijing 100044, China

中国标准刊号: ISSN 0250-3301
CN 11-1895/X

国内邮发代号: 2-821

国 内 定 价: 120.00 元

国外发行代号: M 205

国 内 外 公 开 发 行