Eco-Environmental Knowledge Web

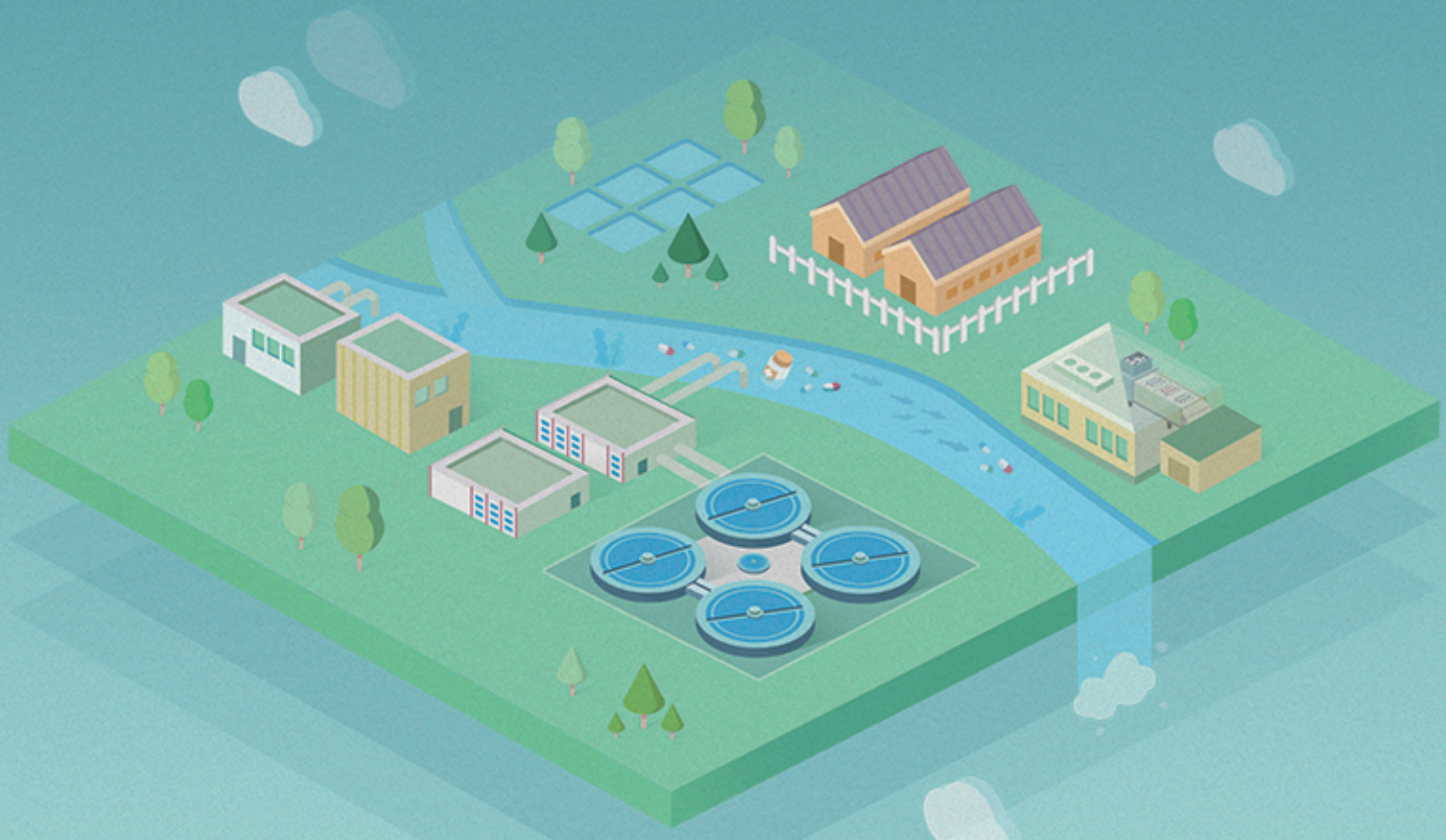
环境科学

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

双奖期刊

2022年6月
第43卷 第6期
Vol.43 No.6

环境科学
(HUANJING KEXUE)
ENVIRONMENTAL SCIENCE
第 43 卷　第 6 期
2022 年 6 月 15 日

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, 张煜娴, 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, 曹云擎, 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, 张煜娴, 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, 高璟赟, 徐虹, 戢运峰, 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, 王妘涛, 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 …… 张坤锋, 昌盛, 付青, 樊月婷, 王恩瑞, 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, 赵丞蒙, 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动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, 冶运涛, 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, 石烜, 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)
南阳盆地东部山区土壤锗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, 杨雪荻, 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)

Eco-Environmental Knowledge Web

环 境 科 学
Environmental Science

第43卷第6期 2022年6月
Vol.43, No.6 Jun., 2022

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[1], 刘世杰[1*], 韩美丽[2], 苏超[3], 张志鹏[4], 马琳琳[1], 李洋[1], 程苗苗[1]

(1. 中国环境科学研究院环境基准与风险评估国家重点实验室, 北京 100012; 2. 北京中科三清环境技术有限公司, 北京 101500; 3. 山西大学黄土高原研究所, 太原 030006; 4. 中国石油大学(华东)理学院, 青岛 266580)

摘要: 针对芘(Pyr)和苯并[a]芘(BaP),以京津冀地区2014年为例分别构建CMAQ和BETR模型系统开展数值模拟,对比评估两种模型对PAHs大气迁移转化的模拟效果,并利用XGBoost模型识别CMAQ中影响PAHs环境行为的关键大气物理化学过程和参数. 结果表明, BETR和CMAQ模拟年均值与实测年均值比值基本在1/2~2之间,且CMAQ模拟值和实测值季节变化趋势相同,验证了两类模型结果的可靠性. 同时,将CMAQ模型9 km网格模拟浓度平均至27 km网格并和BETR模拟浓度的对比结果显示, BETR模型Pyr和BaP模拟浓度平均分别约为CMAQ年均模拟浓度的1.59倍和1.38倍,两类模型在年均浓度水平和空间分布方面具有较好的可比性. 基于XGBoost模型的SHAP变量重要性分析表明,边界层高是对Pyr和BaP迁移转化影响最大的气象因素,其重要性在所有因素中占比高达22%~35%,在部分城市和污染物中对浓度变化的贡献甚至超过排放量,且和两种PAHs浓度呈显著负相关; PAHs浓度水平其次受风速影响最大,且风速和PAHs浓度呈负相关关系; 风向对不同城市污染物浓度的影响则各不相同.

关键词:CMAQ模型; BETR模型; 多环芳烃(PAHs); XGBoost模型; SHAP值

中图分类号: X513 **文献标识码**: A **文章编号**: 0250-3301(2022)06-2906-11 **DOI**: 10.13227/j.hjkx.202108218

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[1], LIU Shi-jie[1*], HAN Mei-li[2], SU Chao[3], ZHANG Zhi-peng[4], MA Lin-lin[1], LI Yang[1], CHENG Miao-miao[1]

(1. State Key Laboratory of Environmental Criteria and Risk Assessment, Chinese Research Academy of Environmental Sciences, Beijing 100012, China; 2. 3Clear Technology Co., Ltd., Beijing 101500, China; 3. Institute of Loess Plateau, Shanxi University, Taiyuan 030006, China; 4. College of Science, China University of Petroleum (East China), Qingdao 266580, China)

Abstract: In this study, taking the Beijing-Tianjin-Hebei region as an example, CMAQ and BETR models were constructed to carry out numerical simulation for the pyrene (Pyr) and benzo[a] pyrene (BaP) in 2014. The model results were compared and evaluated for the atmospheric transportation and transformation of PAHs. Additionally, the XGBoost model was used to identify the key atmospheric physicochemical processes and parameters that affect the environmental behavior of PAHs in the CMAQ. The results showed that the ratio of the simulated value of BETR and annual average value of CMAQ to the measured annual average value was between 1/2 and 2, and the seasonal trend of the simulated concentrations of Pyr and BaP from the CMAQ model were basically consistent with the measured values, which verified the reliability of the two types of models. At the same time, the simulated concentration of the CMAQ model averaged from 9 km grid to 27 km grid and was comparable to the BETR concentration. The results showed that the average concentrations of Pyr and BaP in the BETR model were approximately 1.59 and 1.38 times those of the CMAQ simulation concentrations, respectively, indicating that the two models had good comparability in terms of average annual concentration level and spatial distribution. The SHAP-based variable importance on the XGBoost model showed that boundary layer height was the most significant meteorological factor affecting the transportation and transformation of Pyr and BaP, accounting for 22%-35% of all factors, and sometimes even exceeded the emissions for certain cities and pollutants. The boundary layer height was significantly negatively correlated with the concentration of PAHs. Wind speed was a secondary factor affecting the concentration of PAHs and was negatively correlated with the PAHs, whereas the influence of wind direction on the concentration of PAHs varied.

Key words:CMAQ model; BETR model; polycyclic aromatic hydrocarbons(PAHs); XGBoost model; SHAP value

当前我国大气环境污染形势仍然严峻,大气颗粒物和臭氧(O_3)等空气污染问题突出,持久性有机污染物(persistent organic pollutants, POPs)和重金属等有毒有害污染物及其健康效应也越来越引起政府、公众和研究者的重视. 其中多环芳烃(polycyclic aromatic hydrocarbons, PAHs)对生物体具有致癌、致畸和致突变的效应[1],是环境中广泛存在的一类有毒有害污染物,具有严重的生态风险和人体健康风险. 有研究表明,大气是PAHs排放的主要受体和传输扩散通道,也是PAHs的重要储库,是PAHs迁移转化中最重要的环境介质[2~4]. 对我国而言,大气环境中PAHs的浓度水平在几十到几百ng·m^{-3}之间,总体上北方高于南方[5~9],且季节变化明显,冬季浓

收稿日期: 2021-08-20; **修订日期**: 2021-11-04

基金项目: 国家重点研发计划项目(2019YFC0214800); 国家自然科学基金项目(41701588)

作者简介: 张馨露(1994~),女,硕士,主要研究方向为大气环境模拟, E-mail: 13656435287@163.com

* 通信作者, E-mail: liusj@craes.org.cn

度显著高于夏季[10~13]. 在区域尺度上开展 PAHs 大气环境浓度监测成本高且难度大,因此开发和改进模型方法,模拟 PAHs 在大气环境中的迁移转化行为,能够为控制和管理 PAHs 排放,制定区域产业调整对策提供科学依据.

目前用于模拟大气环境中 PAHs 迁移转化的模型主要有两类,即空间多介质逸度模型和大气化学输送模型. 已有许多研究者分别利用这两类模型对 PAHs 的大气迁移转化过程开展了大量研究,其中应用比较广泛的空间多介质逸度模型包括在北美、欧洲和中国都有广泛应用的 BETR 模型[14]和 SimpleBox 模型[15]、欧洲 EMEP 开发的 MSCE-POP 模型[16]、美国的 SO-MUM 模型[17]和针对中国开展模拟的 SESAMe 模型[18,19]等. 其中 BETR 模型是应用最为广泛的模型之一,多个国内外研究者利用 BETR 模型在北美、欧洲和中国分别针对 PAHs 和有机氯农药(OCPs)、多氯联苯(PCBs)、多溴联苯醚(PBDEs)和全氟辛烷磺酸(PFOS)等多种 POPs 开展了大量模拟研究[3,20~26]. 和空间多介质模型相比,大气化学输送模型能够用复杂的数值方法和更为详实的参数分析预测不同条件下 PAHs 等污染物在大气环境中的分布和传输状况. 在区域尺度上,研究者将 PAHs 在大气中的分配和吸附过程加入 CMAQ 模型[27],并将 PAHs 在大气环境中发生的气相和多相化学反应纳入 CB04[28,29]、SAPRC99[30~33]或 SAPRC07[34,35]等模型现有化学机制,利用模型探讨 PAHs 在大气环境中的区域迁移转化特征[27~29]、人群暴露风险[30,31]和对二次颗粒物(SOA)生成的贡献和影响[34,35].

多介质迁移是 PAHs 等半挥发性有机污染物的重要特性之一,只有同时模拟其在所有环境介质中的迁移转化行为,才能够全面评估其环境风险. 目前能够模拟 PAHs 多介质迁移转化的 BETR 等空间多介质模型对 PAHs 在大气环境中的物理化学过程描述过于简化,模拟结果误差较大. 借鉴大气化学输送模型中污染物介质分配、化学反应和沉降去除等过程的机制,筛选对 PAHs 迁移转化具有显著影响的关键参数和过程,有助于真正有效地完善空间多介质模型中的大气模块,提升其对 PAHs 多介质迁移转化行为模拟的精度和准确性. 然而,目前两类模型对 PAHs 的模拟效果缺乏对比和评估,对大气化学输送模型中哪些过程和参数会显著影响 PAHs 的迁移转化也尚不明确,很大程度上阻碍了两类模型机制的相互补充和融合.

本研究在 CMAQ 化学输送模块中加入 PAHs 相关分配和反应过程,以京津冀地区 2014 年为案例,尽量采用相同的空间划分、环境参数和排放清单,分别构建 CMAQ 和 BETR 模型系统并针对芘(Pyr)和苯并[a]芘(BaP)开展数值模拟. 在此基础上与实测值进行对比评估验证模型结果可靠性,系统比较分析 CMAQ 和 BETR 模型结果的可比性,并基于 XGBoost 模型和解释性方法对 CMAQ 模型参数开展变量重要性分析,识别影响 PAHs 环境行为的关键气象参数.

1　材料与方法

1.1　BETR 模型构建与参数化

本研究中 BETR 包含的环境介质包括大气、淡水、海水、土壤、陆生植物和淡水沉积物等多个介质,每个介质中又包含若干子环境相和若干环境过程,由于环境中 PAHs 主要来自于各种有机物的不完全燃烧,故模型中假设 PAHs 全部排放至大气中. 由于 BETR 模型需同时考虑多个环境介质间的迁移转化过程,受模型计算能力所限, BETR 模型模拟区域主要包含京津冀地区全域,水平网格分辨率为 27 km × 27 km,模型区域设置和网格划分如图 1(a)所示.

BETR 模型模拟的 PAHs 物种包括 Pyr 和 BaP,其物理化学性质包括热力学参数、分配参数、动力学参数和相变焓,来自于经验手册和文献[36]. 源排放数据选用最新的全球空间分辨率为 0.1° × 0.1°的 PKU-PAHs-2014 排放清单[37],并按照研究区提取数据后将数据进行栅格化. BETR 模型中的环境特征参数来源为模型缺省值或文献[3,18,19,21,38],其中气象数据尽可能采用与 CMAQ 模型一致的 WRF 气象模式. 另外,本研究共需考虑 4 种流动矩阵,即空气流动矩阵、淡水流动矩阵、海水流动矩阵和从河口汇入海洋的入海流动矩阵,流动矩阵的详细参数化过程参考文献[3,21],空气流动矩阵也基于 WRF 模式结果进行计算.

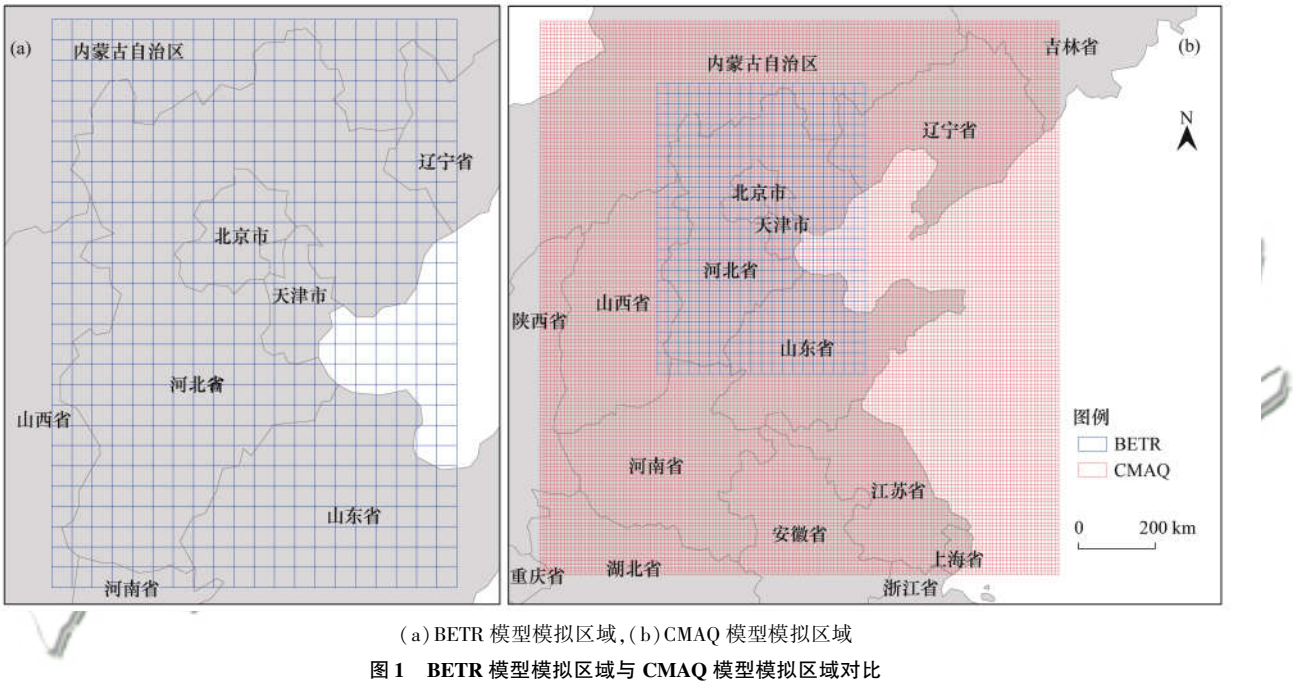
1.2　CMAQ 模式发展与构建

本研究基于 CMAQv5.0.2 版本,化学机制选择 SAPRC99_ae5_aq,添加 Pyr 和 BaP 两种 PAHs 物种. CMAQ 模式中添加了污染物的气相和颗粒相两种物质形态,并考虑了气相-颗粒相间分配模式(K_{OA}吸收模式),大气中 PAHs 的输送、化学转化(主要考虑与·OH的化学反应[39])和干沉降、湿沉降等过程. 由于 PAHs 以颗粒相吸附到直径约 0.1 ~2 mm 的细粒子中,且大都以积聚模态的形式存在[40,41],因此本研究 CMAQ 模式中假设 PAHs 以积聚模态存在.

本研究 CMAQ 模式采用一重网格模拟,在 BETR 模型的基础上,将模拟区域扩展到东北、华北

和华东大部分地区,以充分考虑边界条件对模拟区域的影响. 在水平网格分辨率设置方面,本研究将BETR 模型中 27 km × 27 km 网格进一步细化为 9 km × 9 km,模拟域采用 Lambert 地图投影,投影中心坐标为(35°N, 110°E),标准纬线为 24°N 和 46°N [图 1(b)]. CMAQ 模式从地面至对流层顶垂直分层为 20 层,边界层内约分为 10 层,模拟时间段为 2014 年全年. 本研究选用 WRF 气象模式为 CMAQ 空气质量模式提供气象输入数据,WRF 模拟区域覆盖全国,水平网格分辨率为 9 km × 9 km. WRF 模式垂直方向上设 35 层网格; 长波辐射方案为 RRTM,短波辐射方案为 Dudhia,边界层方案为 Mellor-Yamada-Janjic (Eta),积云参数化方案为 Kain-Fritsch (new Eta). 气象场的初始条件和边界条件均采用美国国家环境预报中心(NCEP)的时间间隔为 6 h、空间分辨率为 1° × 1°的 FNL 再分析气象数据,地形和下垫面数据来自 USGS30s 全球地形和 MODIS 下垫面资料.

本研究中 2014 年常规大气污染物(包括 $PM_{2.5}$、PM_{10}、CO、SO_2、NO_x、BC、OC、NH_3 和 VOCs)排放清单的国外源排放选用亚洲区域源排放清单(REASv3.2,水平分辨率 0.25° × 0.25°),国内常规大气污染物源排放选用中国多尺度排放清单(MEIC,水平分辨率 0.25° × 0.25°). PAHs 源排放数据与 BETR 模型相同,为 PKU-PAHs-2014 排放清单.



(a) BETR 模型模拟区域,(b) CMAQ 模型模拟区域

图 1 BETR 模型模拟区域与 CMAQ 模型模拟区域对比

Fig. 1 Comparison of BETR model simulation area and CMAQ model simulation area

1.3 XGBoost 模型与 SHAP 值

与强力削源法(brute force method)和去耦合直接法(decoupled direct method)等基于空气质量模型的参数敏感性方法相比,机器学习模型方法无需考虑大气污染变化的复杂机制,计算效率和准确性提升明显,同时结合解释性方法可以给出参数敏感性和影响规律. 本研究采用极限梯度提升(XGBoost)模型结合 SHAP (shapley additive explanations)方法探索 PAHs 大气迁移转化过程的关键影响因素及其变化规律,以期未来完善空间多介质模型中的大气模块,提升其对 PAHs 多介质迁移转化行为模拟的精度. XGBoost 是一种大规模并行梯度提升决策树(GBDT)工具,与传统的 GBDT 相比,XGBoost 通过对损失函数进行二阶泰勒展开并加入正则项,能够有效控制模型复杂度,防止过拟合,且模拟效率远高于 GBDT[42]. SHAP 是 Lundberg 等[43]基于博弈论提出的一类可解释机器学习方法,它使用 Shapley 值来量化每个特征对模型结果的具体贡献,图 2 是 SHAP 方法的理论示意,基线值是所有样本预测的平均,$f(x)$是某样本的预测值,每个特征的 Shapley 值有正负大小之分,反映了和平均预测相比该特征的取值对某样本预测值的贡献大小,以及该贡献对预测起推动(正值)还是抑制(负值)作用,从而从单个样本的角度给出特征的影响力和影响的正负性. 进一步,对每个特征的 Shapley 绝对值取平均,能够从整个数据集的角度给出特征的重要性排序和特征的具体影响规律等[43]. 与以往研究中多采用线性相关的方法量化 PAHs 浓度和气象的关系且无法排除气象因素间的相互干扰相比,采用 XGBoost 模型并结合 SHAP 方法不仅可以模拟 PAHs 浓度和气象因素的非线性关系,还能够分离出每个气象因素对 PAHs 浓度的独立影响.

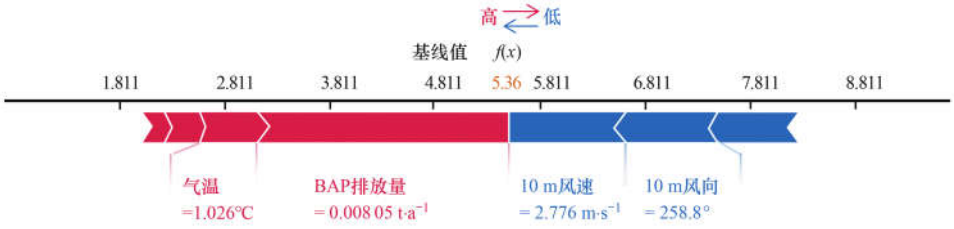


图 2　SHAP 方法示意

Fig. 2　Schematic diagram of SHAP method

本研究以 CMAQ 模型输出污染物浓度和气象变量小时值为输入数据，以整个区域（包含所有城市，并去掉城市信息）、北京市、石家庄市和邯郸市为案例城市，分别对 Pyr 和 BaP 建立 XGBoost 模型. 在变量选择方面，选择在 BETR 模型中已有的参数或可能对污染物浓度有较大影响的参数，并经过多次模拟比选，最终确定污染物排放量（EPPYR、EPBAP）、10 m 风速（$WSPD_{10}$）、10 m 风向（$WDIR_{10}$）、边界层高度（PBLH）、气温（T_2）、相对湿度（RH_2）、累积降水量（RAINNC）和累积降雪量（SNOWNC）为模型的特征变量，以 2 种 PAHs 模拟浓度为目标变量. 在模型超参数方面，使用 GirdSearchCV 网格搜索的方法进行参数遍历调参，确定最佳参数. 完成建模后，借鉴 SHAP 方法中特征归因值的思想，以具有较大的平均 Shapley 绝对值来评估 SHAP 特征重要性，并将重要特征定义为影响 PAHs 迁移转化的关键参数. 在此基础上，结合 SHAP 方法针对排放、气象等参数对污染物浓度变化影响的特征重要性、浓度对各个气象参数的特征依赖性等开展分析，研究 CMAQ 模型中关键过程和主要参数对 PAHs 大气迁移转化过程的影响程度与趋势.

2　结果与讨论

2.1　CMAQ 和 BETR 模拟结果验证

为更好地评估模式模拟的准确性和可靠性，表 1 提取了 CMAQ 和 BETR 模型输出结果的颗粒相 Pyr 和 BaP 模拟浓度，与文献[44 ~ 52]模拟年份前后 2 a 内研究区域可获取的实测值进行对比验证. 由于 BETR 模型为稳态模型，无法得到污染物在模拟时段内的动态变化，故 BETR 模拟浓度仅与实测年均浓度进行比较，针对 CMAQ 模型则开展了年均和分季节模拟浓度与实测浓度的比较.

如表 1 所示，两种模型 Pyr 和 BaP 模拟浓度与实测浓度年均值的比值基本在 1/2 ~ 2 之间. CMAQ 模拟值与实测值季节变化趋势相同，即冬季浓度最高，秋季次之，春夏季浓度较低，分季节的模拟浓度和实测浓度比值大都在 1/5 ~ 5 之间（图 3），且 Pyr 和 BaP 的实测值与 CMAQ 模拟值的相关性分别为 0.72 和 0.7，均方根误差分别为 9.69 和 5.84. 从以往同类研究结果来看，分季节的 CMAQ 模拟值和实测值的比值在 1 ~ 2 个数量级内[27,28,32,33]，相较于本研究得出的比值波动范围偏大. 表明本文改进的 CMAQ 模式和 BETR 模型对 Pyr 和 BaP 的模拟结果处于可接受范围，模拟效果均较好. 此外，个别点位和季节的模拟浓度和实测浓度偏差较大，这可能与排放清单的不确定性、观测点代表性和观测误差、观测与模拟的时间和空间分辨率不同等因素有关.

2.2　CMAQ 和 BETR 模拟结果比较

由于 CMAQ 模型模拟精度较高，为保证两类模型结果的可比性，将 CMAQ 模型 9 km 网格模拟浓度平均至 27 km 网格，与 BETR 稳态模型的模拟浓

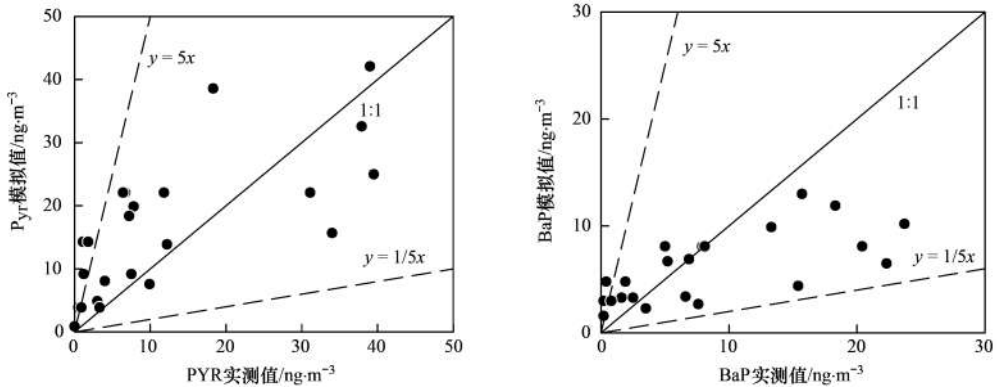


图 3　CMAQ 模型分季节模拟值与实测值散点图

Fig. 3　Scatter plot of simulated and measured values of CMAQ model

表 1 CMAQ 和 BETR 模型 Pyr 和 BaP 模拟值与实测值对比[1)]/ng·m^{-3}

Table 1 Comparison of simulated Pyr and BaP values of CMAQ and BETR models with observed values/ng·m^{-3}

区域	年份	时段	Pyr			BaP			文献
			实测值	CMAQ	BETR	实测值	CMAQ	BETR	
北京	2014	冬季	6.7	22.1	—	5.0	8.1	—	[44]
		夏季	0.5	3.9	—	0.4	3.0	—	
	2014	冬季	39.5	25.0	—	13.3	9.9	—	[45]
	2014	冬季	9.9	7.6	—	7.6	2.7	—	[46]
	2015	年均	8.9	7.4	6.8	6.2	3.5	4.7	[47]
		冬季	34.0	15.7	—	22.3	6.5	—	
		春季	3.0	4.9	—	3.5	2.3	—	
		夏季	0.0	0.9	—	0.2	1.6	—	
		秋季	4.0	8.1	—	6.6	3.4	—	
	2015	冬季	6.4	22.1	—	7.9	8.1	—	[48]
	2015 ~ 2016	年均	10.7	12.4	10.1	2.8	4.8	5.7	[49]
		冬季	31.1	22.1	—	8.1	8.1	—	
		春季	7.5	9.2	—	2.5	3.3	—	
		夏季	3.3	3.9	—	0.2	3.0	—	
		秋季	1.1	14.3	—	0.4	4.8	—	
	2016	年均	5.0	12.4	10.1	8.2	4.8	5.7	[50]
		冬季	11.8	22.1	—	20.4	8.1	—	
		春季	1.2	9.2	—	1.6	3.3	—	
		夏季	0.9	3.9	—	0.8	3.0	—	
		秋季	1.8	14.3	—	1.9	4.8	—	
河北	2013	冬季	39.0	42.1	—	15.7	13.0	—	[51]
		春季	7.8	19.9	—	5.2	6.7	—	
	2015 石家庄	冬季	18.3	38.6	—	18.3	11.9	—	[48]
	2015 衡水	冬季	12.2	13.9	—	15.4	4.4	—	
	2015 ~ 2016	冬季	37.9	32.6	—	23.7	10.2	—	[52]
天津	2015	冬季	7.2	18.4	—	6.87	6.9	—	[48]
平均值			11.91 ± 12.94	15.65 ± 10.66	9.0 ± 1.91	7.89 ± 7.26	5.78 ± 3.10	5.37 ± 0.57	

1)“—”表示无模拟值

度进行比对,评估大气化学输送模型和空间多介质模型的模拟效果. 将研究区域每个网格的 CMAQ 年均模拟值和 BETR 模拟值做线性回归,如图 4 所示. 从回归拟合度来看,两模型模拟的 Pyr 和 BaP 的拟合度 R^2 分别为 0.87 和 0.89,表明 BETR 和 CMAQ 模型的模拟结果具有较好的线性相关性. 从回归系数来看, BETR 模型 Pyr 和 BaP 模拟浓度平均分别约为 CMAQ 年均模拟浓度的 1.59 和 1.38 倍, BETR 模拟值较 CMAQ 模拟值略高. 以上对比结果表明,尽管两类模型在模拟机制、参数复杂度和空间分辨率等方面均有所不同,但从模拟结果来看, BETR 模型和 CMAQ 模型的年均浓度水平相似,且在空间分布方面也较为一致.

与此同时,从 CMAQ 模拟结果来看,受排放和气象因素的影响,不同季节和网格的 CMAQ 模拟浓度仍然差异显著(表 2),而 BETR 模型则无法反映

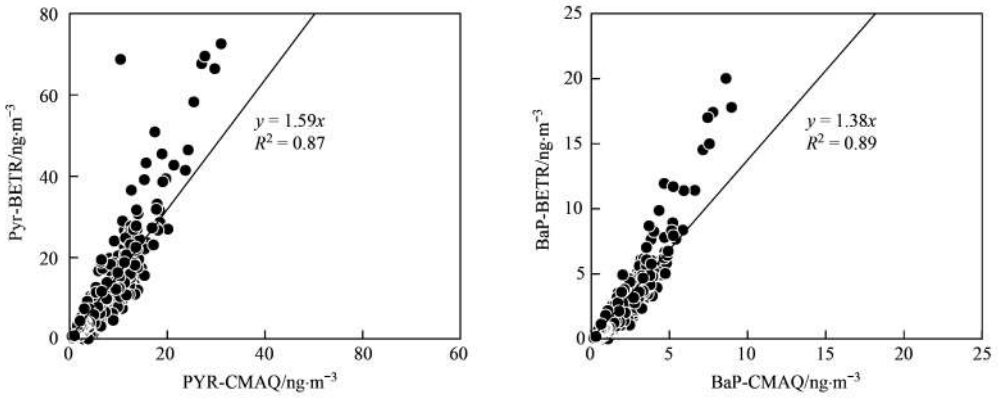


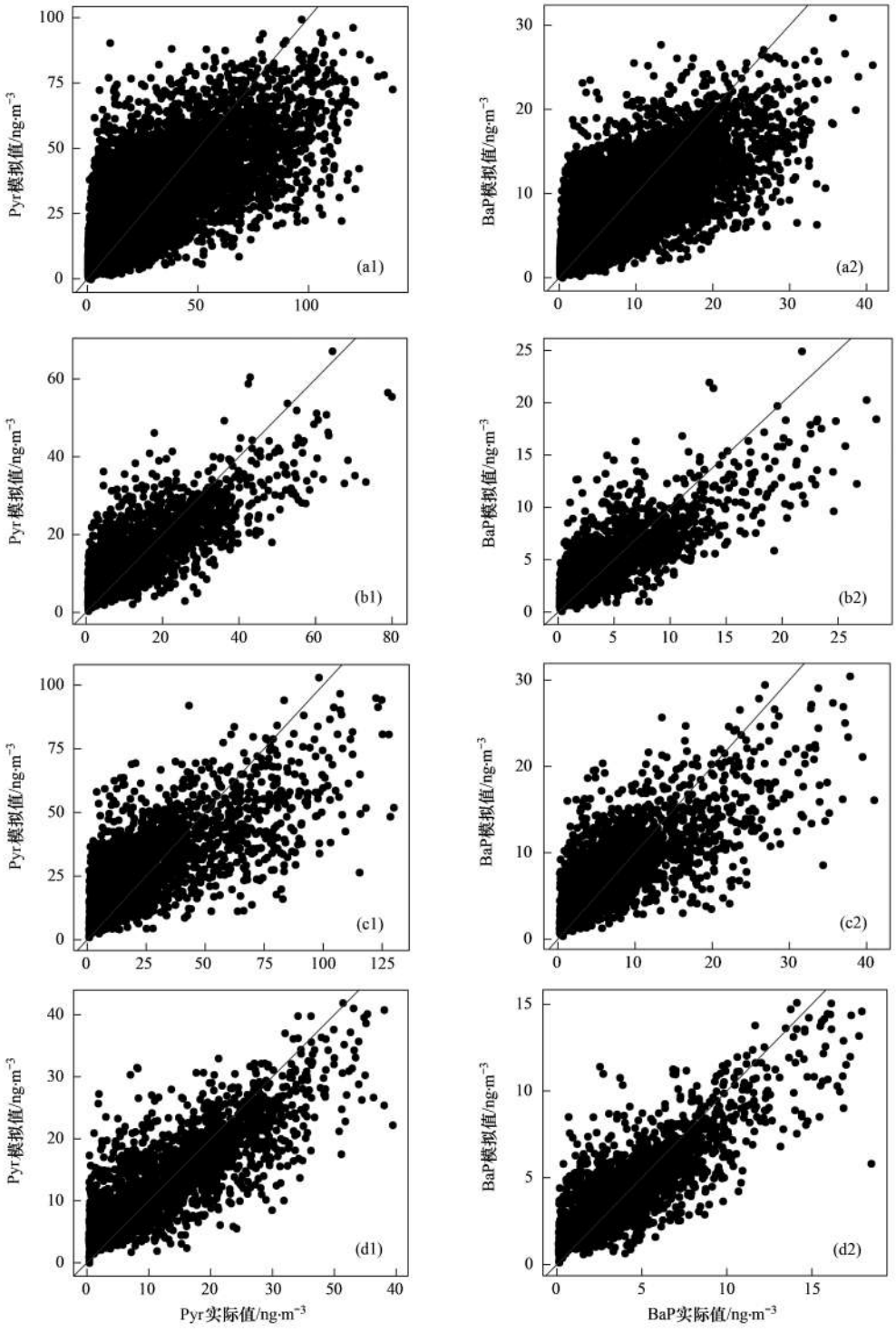
图 4 CMAQ 和 BETR 模型 Pyr、BaP 模拟结果对比

Fig. 4 Comparison of Pyr and BaP simulation results between CMAQ and BETR models

排放和气象导致的时空变化和差异. 因此，需要筛选对模拟结果具有显著影响的关键气象参数并进行动态化处理，模拟污染物在不同季节的波动，从而显著提升 BETR 模型的模拟精度. 此外，当前 BETR 模型中大气垂直方向仅分为 1 ~2 层，且对污染物的垂直传输未做太多考虑，也应在未来模式发展中开展相关研究.

2.3　PAHs 大气迁移转化关键影响因素识别

基于 1.3 节方法，分别对 Pyr 和 BaP 建立 XGBoost 回归模型，图 5 是模型测试集实际值和模拟值的散点图，8 个模型测试集的拟合度 R^2 在 58%~65%，考虑到模型所选取变量较少，仅有 8 个特征，总体而言拟合效果较好. 从不同城市和污染物的拟合效果来看，各个模型拟合效果差别不大.



(a)所有城市，(b)北京市，(c)石家庄市，(d)邯郸市

图 5　XGBoost 模型预测值与实际值散点图

Fig. 5　Scatter plot of predicted and observed values of XGBoost model

表 2 CMAQ 模型 Pyr 和 BaP 模拟值统计量/ng·m^{-3}

Table 2 Simulation statistics of Pyr and BaP of CMAQ model/ng·m^{-3}

季节	Pyr			BaP		
	均值	中值	范围	均值	中值	范围
冬季	23.3	18.9	0.18 ~ 140.5	7.1	5.8	0.07 ~ 41.9
春季	13.2	9.8	0.01 ~ 120.5	3.6	2.7	0.01 ~ 31.2
夏季	13.7	9.5	0.01 ~ 126.9	3.5	2.4	0.01 ~ 31.1
秋季	19.0	14.9	0.01 ~ 138	5.1	4.0	0.01 ~ 35.7

进一步,由 XGBoost 模型计算每个参数的平均绝对 SHAP 值[mean(|SHAP value|)],该值越大说明该参数对目标变量越重要,以此反映参数对污染物浓度的敏感性,探索 PAHs 大气迁移转化过程的关键影响因素,结果如图 6 所示. 对全部 4 个区域范围和 2 种 PAHs 而言,在所有特征中相对敏感的特征均为排

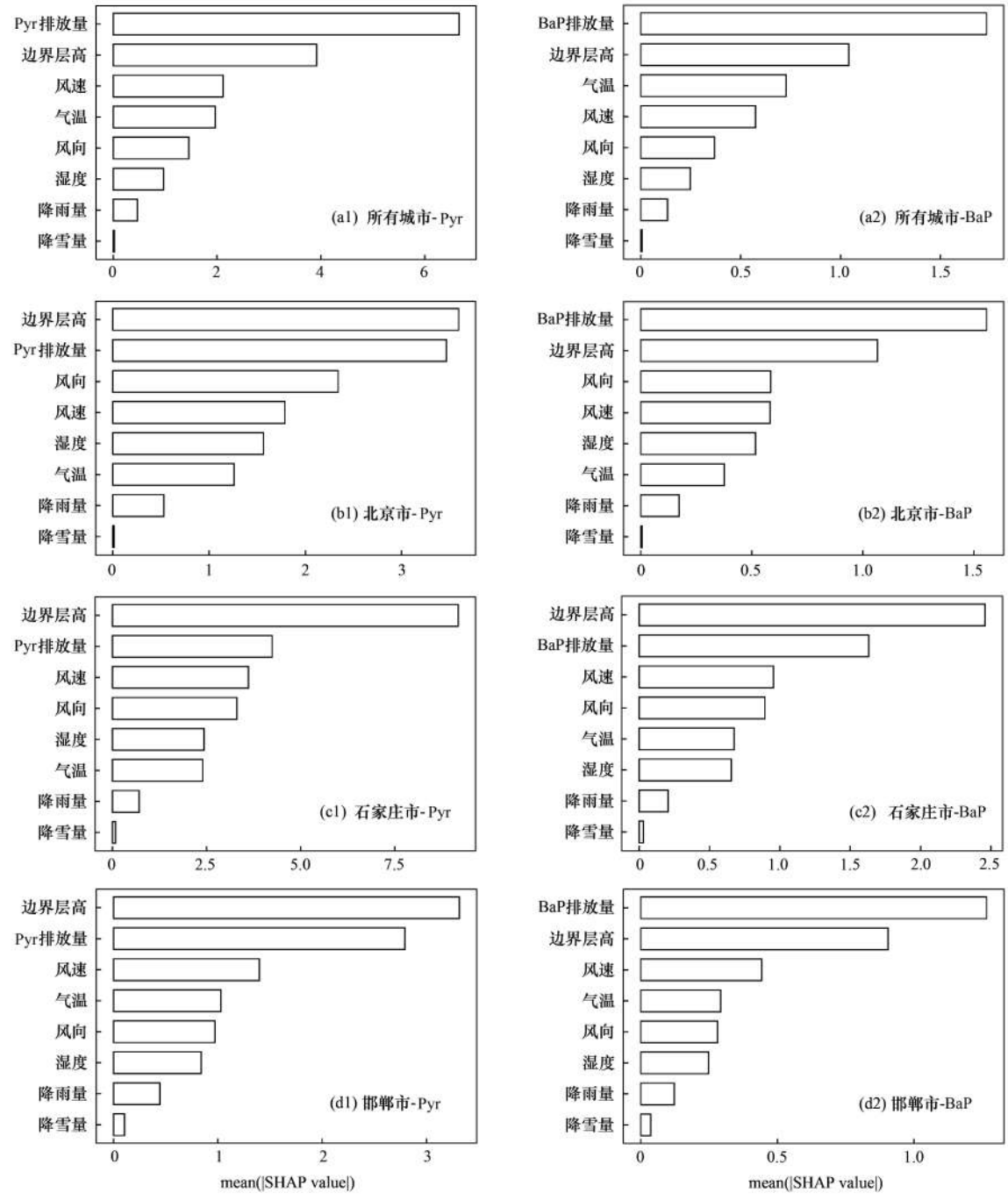


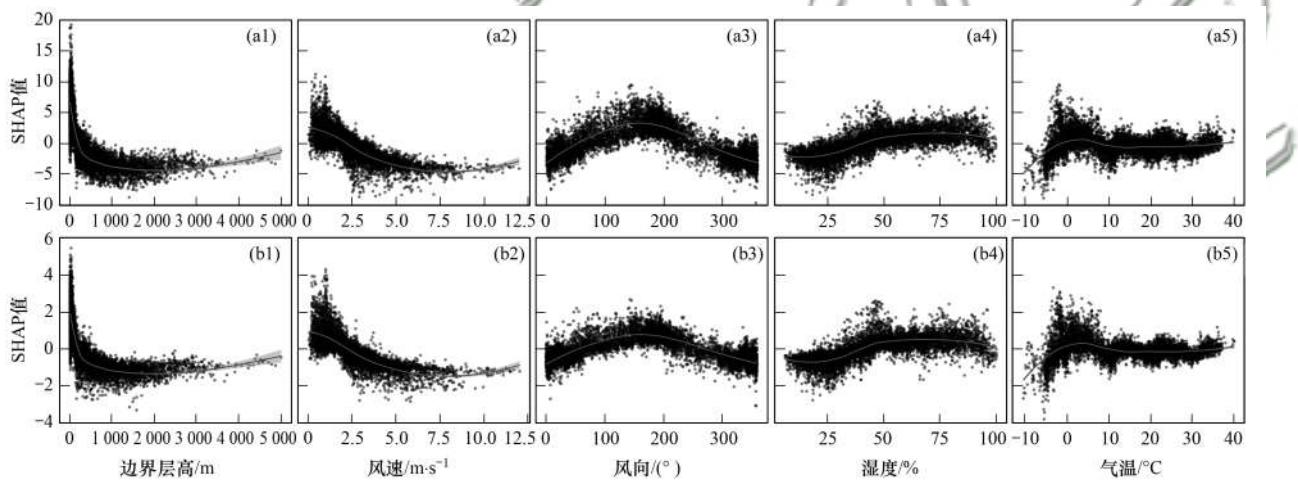
图 6 SHAP 特征重要性排序

Fig. 6 SHAP feature importance ranking

放量、边界层高、风速和风向，但对不同区域和不同污染物，各个特征敏感性排序有所不同. 对整个区域而言，2 种污染物的敏感性参数较为相似，由于区域相对较大，排放对污染物浓度的重要性明显高于其他特征，其 mean(|SHAP value|)大约是边界层高的 1.7 倍，风速和气温在区域内的重要程度较为相似；北京市 BaP 受排放的影响最大，其次为边界层高度，而排放和边界层高度对 Pyr 的重要程度相当；石家庄市边界层高度对 2 种 PAHs 浓度的重要性明显高于其他因素，其 mean(|SHAP value|)是排放的 1.7 ~ 2.2 倍，气象因素中风速和风向的重要性较为突出；邯郸市 Pyr 受边界层高度的影响最大，其次是排放，BaP 则相反，其他气象因素对 2 种 PAHs 的重要性一致且以风速最突出，其对污染物浓度的重要性在除边界层高的 6 个气象要素中达 30%.

总的来看，各城市 Pyr 浓度受边界层高的影响高于排放量，BaP 受排放的影响相对更为突出；气象因素中，边界层高是对 Pyr 和 BaP 迁移转化影响最大的因素，在所有影响因素中其重要性占比高达 22%~35%，在部分城市和污染物中甚至超过排放量；风速是影响 2 种 PAHs 浓度水平的另一突出因素，这与李军等[53]的研究结论一致.

近年来，针对 PAHs 浓度和气象的相关性研究颇多，现有研究结果表明风速和环境温度与 PAHs 浓度呈负相关，因为这些参数与大气弥散能力有关[54~56]. 相对湿度与 PAHs 浓度的相关性研究结果则不尽相同，Chetwittayachan 等[57]和 Hien 等[58]的研究发现 PAHs 与相对湿度呈负相关；Gu 等[54]的研究表明二者呈正相关；He 等[56]的研究则指示二者无明显的相关性. 通常，气象要素间存在不同强度的相关性，这会干扰单一气象要素对 PAHs 浓度的影响分析，SHAP 方法可以较好地排除其他变量的干扰，剥离出 PAHs 浓度随单一气象要素的变化趋势. 为此，本文选取北京市、石家庄市和邯郸市，基于 Shapley 值，分析气象因素对 Pyr 和 BaP 模拟浓度的影响，结果如图 7 ~ 9 所示.



(a) Pyr, (b) BaP, 下同

图 7　北京市主要气象参数对 Pyr 和 BaP 浓度 SHAP 值分布

Fig. 7　SHAP value distribution of main meteorological parameters to Pyr and BaP in Beijing

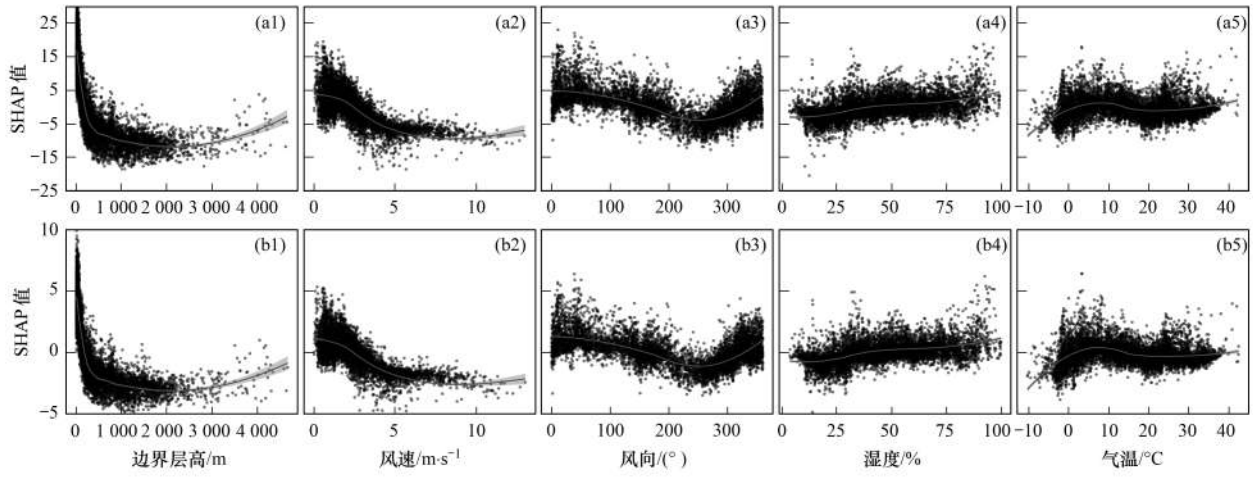


图 8　石家庄市主要气象参数对 Pyr 和 BaP 浓度 SHAP 值分布

Fig. 8　SHAP value distribution of main meteorological parameters to Pyr and BaP in Shijiazhuang

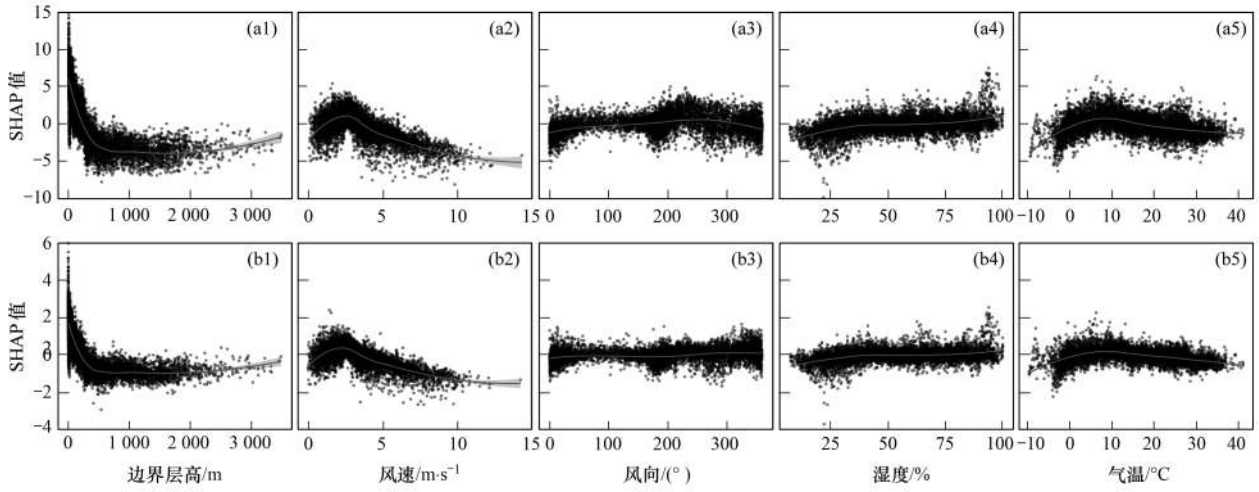


图 9 邯郸市主要气象参数对 Pyr 和 BaP 浓度 SHAP 值分布

Fig. 9 SHAP value distribution of main meteorological parameters to Pyr and BaP in Handan

总体来看,除风向以外, 3 个城市 PAHs 浓度随每个气象要素的变化趋势基本一致. PAHs 浓度与边界层高总体呈显著的负相关,特别是边界层高度在 150 m 以内时,边界层高的降低对 PAHs 浓度升高的贡献骤增; 边界层高大于 150 m 后,其对排放始终为负贡献. 风速也与 PAHs 浓度呈显著负相关,风速在 3 m·s^{-1}以内时,风速的减小对 PAHs 浓度升高的贡献明显增大. 三城市 PAHs 浓度随风向的变化各不相同,北京市偏南风向下更易导致 PAHs 浓度升高; 石家庄市除偏西风外,其他风向都容易导致 PAHs 浓度升高; 邯郸市 PAHs 浓度总体随风向的变化趋势则不明显. 由前述 SHAP 特征重要性可知,相对湿度、气温对不同城市 2 种 PAHs 的总体影响均较小,且由 SHAP 值分布可以看到,不同城市的 PAHs 浓度与湿度呈弱正相关,湿度大于 40% 后对浓度总体为较小的正贡献; 与气温的相关性则不显著,这可能要进一步优化模式模拟的季节差异.

3 结论

(1)CMAQ 模式的年均模拟值和 BETR 稳态模型模拟值与实测值比值基本在 1/2 ~ 2 之间,且 CMAQ 模拟值和实测值的相关性高达 0.7,季节变化趋势相同,表明 CMAQ 和 BETR 模式模拟结果较为可靠. 同时,将 CMAQ 模型 9 km 网格模拟浓度平均至 27 km 网格与 BETR 模拟浓度进行对比,结果表明两类模型的年均浓度水平相似,且在空间分布方面也具有较好的可比性.

(2)基于 XGBoost 模型的 SHAP 变量重要性分析可知,Pyr 浓度受边界层高的影响高于排放量,而 BaP 受排放的影响相对更为突出; 边界层高是对 Pyr 和 BaP 迁移转化影响最大的气象因素,其重要性在所有因素中占比高达 22% ~ 35%,在部分城市和污染物中甚至超过排放量.

(3)不同城市和污染物随气象条件的变化不尽相同,边界层高度和风速对 3 个城市 2 种污染物浓度的影响较为相似,而 3 个城市 2 种 PAHs 浓度随风向的变化各不相同. PAHs 浓度与边界层高、风速总体呈负相关,边界层高度在 150 m 以内时,边界层高的降低对 PAHs 浓度升高的贡献骤增,而风速在 3 m·s^{-1}以内时,风速的减小对 PAHs 浓度升高的贡献明显增大.

参考文献:

[1] Kanaly R A, Harayama S. Biodegradation of high-molecular-weight polycyclic aromatic hydrocarbons by bacteria[J]. Journal of Bacteriology, 2000, **182**(8): 2059-2067.

[2] Cao H Y, Tao S, Xu F L, *et al*. Multimedia fate model for hexachlorocyclohexane in Tianjin, China [J]. Environmental Science & Technology, 2004, **38**(7): 2126-2132.

[3] Liu S J, Lu Y L, Wang T Y, *et al*. Using gridded multimedia model to simulate spatial fate of Benzo[α]pyrene on regional scale[J]. Environment International, 2014, **63**: 53-63.

[4] Xu F L, Qin N, Zhu Y, *et al*. Multimedia fate modeling of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in Lake Small Baiyangdian, northern China[J]. Ecological Modelling, 2013, **252**: 246-257.

[5] Jin G Z, Cong L L, Fang Y Y, *et al*. Polycyclic aromatic hydrocarbons in air particulates and its effect on the Tumen river area, Northeast China [J]. Atmospheric Environment, 2012, **60**: 298-304.

[6] Li W F, Peng Y, Shi J W, *et al*. Particulate polycyclic aromatic hydrocarbons in the urban northeast region of China: profiles, distributions and sources[J]. Atmospheric Environment, 2011, **45**(40): 7664-7671.

[7] Chen Y J, Feng Y L, Xiong S C, *et al*. Polycyclic aromatic hydrocarbons in the atmosphere of Shanghai, China [J]. Environmental Monitoring and Assessment, 2011, **172**(1-4): 235-247.

[8] Gao B, Guo H, Wang X M, *et al*. Polycyclic aromatic hydrocarbons in $PM_{2.5}$ in Guangzhou, southern China:

spatiotemporal patterns and emission sources [J]. Journal of Hazardous Materials, 2012, **239-240**: 78-87.

[9] Wei Y L, Bao L J, Wu C C, *et al*. Association of soil polycyclic aromatic hydrocarbon levels and anthropogenic impacts in a rapidly urbanizing region: spatial distribution, soil-air exchange and ecological risk[J]. Science of the Total Environment, 2014, **473-474**: 676-684.

[10] 易志刚, 黄幸然, 毕峻奇, 等. 福州城市及郊区冬、夏两季大气中多环芳烃特征研究[J]. 环境科学, 2013, **34**(4): 1252-1257.
Yi Z G, Huang X R, Bi J Q, *et al*. Characteristics of PAHs in the atmosphere in winter and summer in the urban and suburban of Fuzhou[J]. Environmental Science, 2013, **34**(4): 1252-1257.

[11] 周变红, 张承中, 王格慧. 西安城区大气中多环芳烃的季节变化特征及健康风险评价[J]. 环境科学学报, 2012, **32**(9): 2324-2331.
Zhou B H, Zhang C Z, Wang G H. Seasonal variation and health risk assessment of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in the urban area of Xi'an [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2012, **32**(9): 2324-2331.

[12] Hu J, Liu C Q, Zhang G P, *et al*. Seasonal variation and source apportionment of PAHs in TSP in the atmosphere of Guiyang, Southwest China[J]. Atmospheric Research, 2012, **118**: 271-279.

[13] Chen P F, Li C L, Kang S C, *et al*. Characteristics of particulate-phase polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in the atmosphere over the central himalayas[J]. Aerosol and Air Quality Research, 2017, **17**(12): 2942-2954.

[14] Cao X H, Huo S L, Zhang H X, *et al*. Source emissions and climate change impacts on the multimedia transport and fate of persistent organic pollutants, Chaohu watershed, eastern China [J]. Journal of Environmental Sciences, 2021, **109**: 15-25.

[15] Hollander A, Schoorl M, Van De Meent D. SimpleBox 4.0: improving the model while keeping it simple … [J]. Chemosphere, 2016, **148**: 99-107.

[16] Vizcaino P, Pistocchi A. Use of a simple GIS-based model in mapping the atmospheric concentration of γ-HCH in Europe[J]. Atmosphere, 2014, **5**(4): 720-736.

[17] Csiszar S A, Daggupaty S M, Verkoeyen S, *et al*. SO-MUM: a coupled atmospheric transport and multimedia model used to predict intraurban-scale PCB and PBDE emissions and fate[J]. Environmental Science & Technology, 2013, **47**(1): 436-445.

[18] Zhu Y, Price O R, Tao S, *et al*. A new multimedia contaminant fate model for China: how important are environmental parameters in influencing chemical persistence and long-range transport potential? [J]. Environment International, 2014, **69**: 18-27.

[19] Zhu Y, Tao S, Price O R, *et al*. Environmental distributions of benzo[a]pyrene in China: current and future emission reduction scenarios explored using a spatially explicit multimedia fate model [J]. Environmental Science & Technology, 2015, **49**(23): 13868-13877.

[20] Lu Q, Johnson A C, Jürgens M D, *et al*. The distribution of polychlorinated biphenyls (PCBs) in the River Thames Catchment under the scenarios of climate change[J]. Science of the Total Environment, 2015, **533**: 187-195.

[21] Liu S J, Lu Y L, Xie S W, *et al*. Exploring the fate, transport and risk of perfluorooctane sulfonate (PFOS) in a coastal region of China using a multimedia model [J]. Environment International, 2015, **85**: 15-26.

[22] Earnshaw M R, Jones K C, Sweetman A J. A first European scale multimedia fate modelling of BDE-209 from 1970 to 2020 [J]. Environment International, 2015, **74**: 71-81.

[23] Paul A G, Hammen V C, Hickler T, *et al*. Potential implications of future climate and land - cover changes for the fate and distribution of persistent organic pollutants in Europe[J]. Global Ecology and Biogeography, 2012, **21**(1): 64-74.

[24] Breivik K, Armitage J M, Wania F, *et al*. Tracking the global distribution of persistent organic pollutants accounting for e-waste exports to developing regions [J]. Environmental Science & Technology, 2016, **50**(2): 798-805.

[25] Su C, Lu Y L, Wang T Y, *et al*. Dynamic multimedia fate simulation of perfluorooctane sulfonate (PFOS) from 1981 to 2050 in the urbanizing Bohai Rim of China[J]. Environmental Pollution, 2018, **235**: 235-244.

[26] 张毅, 马艳飞, 宋帅, 等. 环渤海地区2,4,4′-三氯联苯的多介质归趋模拟[J]. 环境科学, 2020, **41**(6): 2625-2634.
Zhang Y, Ma Y F, Song S, *et al*. Fate simulation of 2,4,4′-Trichlorobiphenyl in the Bohai rim using the multimedia model [J]. Environmental Science, 2020, **41**(6): 2625-2634.

[27] Aulinger A, Matthias V, Quante M. Introducing a partitioning mechanism for PAHs into the community multiscale air quality modeling system and its application to simulating the transport of benzo(a)pyrene over Europe[J]. Journal of Applied Meteorology and Climatology, 2007, **46**(11): 1718-1730.

[28] Matthias V, Aulinger A, Quante M. CMAQ simulations of the benzo(a)pyrene distribution over Europe for 2000 and 2001[J]. Atmospheric Environment, 2009, **43**(26): 4078-4086.

[29] Matthias V, Aulinger A, Quante M. Adapting CMAQ to investigate air pollution in North Sea coastal regions [J]. Environmental Modelling & Software, 2008, **23**(3): 356-368.

[30] Zhang J, Wang P, Li J Y, *et al*. Estimating population exposure to ambient polycyclic aromatic hydrocarbon in the United States - Part II: source apportionment and cancer risk assessment[J]. Environment International, 2016, **97**: 163-170.

[31] Zhang J, Li J Y, Wang P, *et al*. Estimating population exposure to ambient polycyclic aromatic hydrocarbon in the United States - Part I: model development and evaluation [J]. Environment International, 2017, **99**: 263-274.

[32] 韩美丽, 刘世杰, 刘敏, 等. 京津冀民用燃煤减排对大气中BaP污染影响评估[J]. 中国环境科学, 2018, **38**(9): 3262-3272.
Han M L, Liu S J, Liu M, *et al*. Assessment of the effect of the reduction of the residential coal combustion on the atmospheric BaP pollution in Beijing-Tianjin-Hebei region [J]. China Environmental Science, 2018, **38**(9): 3262-3272.

[33] 闫文君, 刘敏, 刘世杰, 等. 基于CMAQ模式的中国大气BaP迁移转化模拟研究[J]. 中国环境科学, 2016, **36**(6): 1681-1689.
Yan W J, Liu M, Liu S J, *et al*. Simulations of the atmospheric benzo[a] pyrene in China using CMAQ model [J]. China Environmental Science, 2016, **36**(6): 1681-1689.

[34] Zhang H L, Ying Q. Secondary organic aerosol from polycyclic aromatic hydrocarbons in Southeast Texas [J]. Atmospheric Environment, 2012, **55**: 279-287.

[35] Pye H O T, Pouliot G A. Modeling the role of alkanes, polycyclic aromatic hydrocarbons, and their oligomers in secondary organic aerosol formation[J]. Environmental Science & Technology, 2012, **46**(11): 6041-6047.

[36] Halsall C J, Barrie L A, Fellin P, *et al*. Spatial and temporal variation of polycyclic aromatic hydrocarbons in the arctic atmosphere[J]. Environmental Science & Technology, 1997, **31**

(12): 3593-3599.

[37] Shen H Z, Huang Y, Wang R, *et al*. Global atmospheric emissions of polycyclic aromatic hydrocarbons from 1960 to 2008 and future predictions [J]. Environmental Science & Technology, 2013, **47**(12): 6415-6424.

[38] Los S O, Pollack N H, Parris M T, *et al*. A global 9-yr biophysical land surface dataset from NOAA AVHRR data[J]. Journal of Hydrometeorology, 2000, **1**(2): 183-199.

[39] Hu J L, Li X, Huang L, *et al*. Ensemble prediction of air quality using the WRF/CMAQ model system for health effect studies in China[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2017, **17**(21): 13103-13118.

[40] Baek S O, Goldstone M E, Kirk P W W, *et al*. Phase distribution and particle size dependency of polycyclic aromatic hydrocarbons in the urban atmosphere[J]. Chemosphere, 1991, **22**(5-6): 503-520.

[41] José R S, Pérez J L, Callén M S, *et al*. BaP (PAH) air quality modelling exercise over Zaragoza (Spain) using an adapted version of WRF-CMAQ model [J]. Environmental Pollution, 2013, **183**: 151-158.

[42] Chen T Q, Guestrin C. XGBoost: a scalable tree boosting system [A]. In: Proceedings of the 22nd ACM SIGKDD International Conference on Knowledge Discovery and Data Mining[C]. San Francisco, USA: ACM, 2016. 785-794.

[43] Lundberg S M, Lee S I. A unified approach to interpreting model predictions [A]. In: Proceedings of the 31st International Conference on Neural Information Processing Systems[C]. Long Beach, USA: ACM, 2017.

[44] Zhang Y P, Chen J, Yang H N, *et al*. Seasonal variation and potential source regions of $PM_{2.5}$-bound PAHs in the megacity Beijing, China: impact of regional transport[J]. Environmental Pollution, 2017, **231**: 329-338.

[45] Li Y, Liu X R, Liu M, *et al*. Investigation into atmospheric $PM_{2.5}$-borne PAHs in eastern cities of China: concentration, source diagnosis and health risk assessment[J]. Environmental Science: Processes & Impacts, 2016, **18**(5): 529-537.

[46] Yu Q Q, Yang W Q, Zhu M, *et al*. Ambient $PM_{2.5}$-bound polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in rural Beijing: Unabated with enhanced temporary emission control during the 2014 APEC summit and largely aggravated after the start of wintertime heating[J]. Environmental Pollution, 2018, **238**: 532-542.

[47] 王焕新, 张续, 马琳, 等. 北京市昌平区大气颗粒物中多环芳烃暴露及人群健康风险评价[J]. 环境与健康杂志, 2016, **33**(11): 999-1002.
Wang H X, Zhang X, Ma L, *et al*. Health risk assessment of inhabitants exposed to polycyclic aromatic hydrocarbons and particulate matter in air in Changping district of Beijing[J]. Journal of Environment and Health, 2016, **33**(11): 999-1002.

[48] Niu X Y, Ho S S H, Ho K F, *et al*. Atmospheric levels and cytotoxicity of polycyclic aromatic hydrocarbons and oxygenated-PAHs in $PM_{2.5}$ in the Beijing-Tianjin-Hebei region [J]. Environmental Pollution, 2017, **231**: 1075-1084.

[49] Gao Y, Ji H B. Characteristics of polycyclic aromatic hydrocarbons components in fine particle during heavy polluting phase of each season in urban Beijing[J]. Chemosphere, 2018, **212**: 346-357.

[50] Chao S H, Liu J W, Chen Y J, *et al*. Implications of seasonal control of $PM_{2.5}$-bound PAHs: an integrated approach for source apportionment, source region identification and health risk assessment[J]. Environmental Pollution, 2019, **247**: 685-695.

[51] 赵鑫. 石家庄冬春两季大气颗粒物中多环芳烃的变化特征[D]. 石家庄: 河北科技大学, 2014.
Zhao X. Variation characteristics of PAHs which collected in atmospheric particulates of Shijiazhuang in winter and spring [D]. Shijiazhuang: Hebei University of Science & Technology, 2014.

[52] 段二红, 张微微, 李璇, 等. 石家庄市采暖期大气细颗粒物中 PAHs 污染特征[J]. 环境科学研究, 2017, **30**(2): 193-201.
Duan E H, Zhang W W, Li X, *et al*. Characteristics of PAHs in fine atmospheric particulate matter in Shijiazhuang city in heating season[J]. Research of Environmental Sciences, 2017, **30**(2): 193-201.

[53] 李军, 张干, 祁士华. 广州市大气中多环芳烃分布特征、季节变化及其影响因素[J]. 环境科学, 2004, **25**(3): 7-13.
Li J, Zhang G, Qi S H. Characteristics and seasonal variations and influence factors on polycyclic aromatic hydrocarbons in Guangzhou city[J]. Environmental Science, 2004, **25**(3): 7-13.

[54] Gu Z P, Feng J L, Han W L, *et al*. Diurnal variations of polycyclic aromatic hydrocarbons associated with $PM_{2.5}$ in Shanghai, China[J]. Journal of Environmental Sciences, 2010, **22**(3): 389-396.

[55] Amodio M, Caselli M, de Gennaro G, *et al*. Particulate PAHs in two urban areas of Southern Italy: Impact of the sources, meteorological and background conditions on air quality [J]. Environmental Research, 2009, **109**(7): 812-820.

[56] He J B, Fan S X, Meng Q Z, *et al*. Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) associated with fine particulate matters in Nanjing, China: distributions, sources and meteorological influences[J]. Atmospheric Environment, 2014, **89**: 207-215.

[57] Chetwittayachan T, Shimazaki D, Yamamoto K. A comparison of temporal variation of particle-bound polycyclic aromatic hydrocarbons (pPAHs) concentration in different urban environments: Tokyo, Japan, and Bangkok, Thailand [J]. Atmospheric Environment, 2002, **36**(12): 2027-2037.

[58] Hien T T, Nam P P, Yasuhiro S, *et al*. Comparison of particle-phase polycyclic aromatic hydrocarbons and their variability causes in the ambient air in Ho Chi Minh City, Vietnam and in Osaka, Japan, during 2005-2006 [J]. Science of the Total Environment, 2007, **382**(1): 70-81.

HUANJING KEXUE

Environmental Science (monthly)

Vol. 43 No. 6

Jun. 15, 2022

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, *et al.* (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, *et al.* (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, *et al.* (2851)

Changes in Carbonaceous Aerosol in the Northern Suburbs of Nanjing from 2015 to 2019 ····· XIE Tian, CAO Fang, ZHANG Yan-lin, *et al.* (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, *et al.* (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, *et al.* (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, *et al.* (2888)

Organic Aerosols and Source Analysis of Fine Particles in the Background of Shiwanda Mountain, Guangxi ····· XING Jia-li, CAO Fang, WANG Qian, *et al.* (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, *et al.* (2906)

Exploring Formation of Ozone in Typical Cities in Beijing-Tianjin-Hebei Region Using Process Analysis ····· TANG Ying-xiao, YAO Qing, CAI Zi-ying, *et al.* (2917)

Characteristics and Meteorological Factors of $PM_{2.5}$-O_3 Compound Pollution in Tianjin ····· XIAO Zhi-mei, LI Yuan, KONG Jun, *et al.* (2928)

Spatio-temporal Characteristics of Air Quality and Influencing Factors in Shandong Province from 2016 to 2020 ····· ZHOU Meng-ge, YANG Yi, SUN Yuan, *et al.* (2937)

Trend Changes in Ozone Pollution and Sensitivity Analysis of Ozone in Henan Province ····· YAN Yang-yang, YIN Sha-sha, HE Qin, *et al.* (2947)

Effects of Tropical Cyclones on Ozone Pollution in the Pearl River Delta in Autumn ····· ZHAO Wei, LÜ Meng-yao, LU Qing, *et al.* (2957)

Real-time Composition and Sources of VOCs in Summer in Wuhan ····· SU Wei-feng, KONG Shao-fei, ZHENG Huang, *et al.* (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, *et al.* (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, *et al.* (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, *et al.* (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, *et al.* (3016)

Shallow Groundwater Around Plateau Lakes: Spatiotemporal Distribution of Nitrogen and Its Driving Factors ····· LI Gui-fang, YANG Heng, YE Yuan-hang, *et al.* (3027)

Distribution and Potential Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in Sediments of Lake Qinghai ····· ZHANG Ya-ran, CHE Fei-fei, FU Zheng-hui, *et al.* (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, *et al.* (3048)

Kinetic Release Characteristics of Organic Phosphorus of Sediment-water and Water Quality Risks ····· LIU Zhe-zhe, NI Zhao-kui, LIU Si-ru, *et al.* (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, *et al.* (3066)

Distribution Characteristics of Microplastics and Their Migration Patterns in Xiangxi River Basin ····· CHEN Sheng-sheng, LI Wei-ming, ZHANG Kun, *et al.* (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, *et al.* (3088)

Community Structure of Phytoplankton and Environmental Impact Factors in Lake Hongze from 2015 to 2020 ····· QU Ning, DENG Jian-ming, ZHANG Zhen, *et al.* (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, *et al.* (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, *et al.* (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, *et al.* (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, *et al.* (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, *et al.* (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, *et al.* (3177)

Inter-annual Changes in Runoff Quality from Green Roofs with Different Vegetation ····· ZHANG Sun-xun, ZHANG Shou-hong, GE De, *et al.* (3187)

Effectivity of Multiphase Fenton-like System of Iron Reduction Induced by Bisphenol A Authigenic Photoelectron ····· CAO Si-yu, XU Lu, FU Quan-chao, *et al.* (3195)

Removal Characteristics of Four Typical Antibiotics in Denitrification System ····· TANG Jia, CHEN Xi, QIN Mu-chuan, *et al.* (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, *et al.* (3211)

Effect of HumicAcid-Heavy Metals on the Nitrogen Removal Performance of ANAMMOX Bacteria and Its Kinetic Analysis ····· LI Yun, CUI Nan, XIONG Xing-xing, *et al.* (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, *et al.* (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, *et al.* (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, *et al.* (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, *et al.* (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, *et al.* (3278)

Heavy Metal Pollution Characteristics and Risk Assessment of Golden Snub-nosed Monkey (*Rhinopithecus roxellana*) Habitat in Shennongjia Mountains ····· YAN Jia-li, YU Zi-ling, YU Hui-liang, *et al.* (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, *et al.* (3299)

Effects of Phosphorus Sufficiency and Deficiency on Cadmium Uptake and Transportation by Rice ····· TAN Wen-tao, HUO Yang, ZHOU Hang, *et al.* (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, *et al.* (3315)

Responses of Soil Fungal Communities to Subalpine Meadow Degradation in Mount Wutai ····· LUO Zheng-ming, HE Lei, LIU Jin-xian, *et al.* (3328)

Response of Soil Fungal Communities in Diversified Rotations of Wheat and Different Crops ····· JIN Hai-yang, YUE Jun-qin, YAN Ya-qian, *et al.* (3338)

Spatial Characterization of Stable Isotope Composition of Organic Carbon from Farmland Soils in Chongqing ····· LIAO Yu-qin, LONG Juan, MU Zhi-jian, *et al.* (3348)

Characteristics of Soil NO Emissions in the Yangtze River Delta Region for Year 2018 ····· LIAO Jia-qiang, XUE Jin, WANG Wen-jin, *et al.* (3357)

Thermal Environment Evolution and Response Mechanism of Urban Sprawl Based on Multi-source Data ····· LIANG Jian-she, BAI Yong-ping, YANG Xue-di, *et al.* (3365)