孙 鹏,顾晓明,钟 声,等.长三角区域传输通道上挥发性有机物的来源解析、老化演变及污染特征 [J]. 中国环境科学, 2026,46(2):636-645.
Sun P, Gu X M, Zhong S, et al. Sources, aging evolution, and pollution characteristics of volatile organic compounds on regional transport pathways in the Yangtze River Delta [J]. China Environmental Science, 2026,46(2):636-645.

长三角区域传输通道上挥发性有机物的来源解析、老化演变及污染特征

孙 鹏[1*],顾晓明[2],钟 声[1],郁建桥[1],徐 政[1] (1.江苏省环境监测中心,江苏 南京 210019;2.江苏省苏州环境监测中心,江苏 苏州 215000)

摘要：针对现有研究多基于单一站点的挥发性有机物(VOCs)监测,难以捕捉到其传输及老化特征的问题,选取长三角东部典型城市站点(苏州城区)及其主导风下风向区域背景站点(太湖西山传输通道),采用在线气相色谱-质谱联用技术(GC-MS),于夏季同步开展了 45d 的 VOCS 在线观测,并结合正交矩阵因子分解(PMF)模型,研究 VOCs 的来源及传输老化过程.结果表明:苏州城区 φ(TVOCs)平均值为 28.6×10^{-9},高于传输通道站点的 17.5×10^{-9},城市 VOCs 烷烃占比更高,经传输后含氧挥发性有机物(OVOCs)和卤代烃占比升高.PMF 来源解析表明下风向站点的 VOCs 主要受城市污染传输影响,其机动车尾气、汽油挥发、溶剂使用和工业因子的成分谱及时间变化特征与城区吻合,但均呈现显著的老化特征(OVOCs 占比系统性增加).因受到生物源的额外贡献,该站点异戊二烯较城区升高 143.8%.副热带高压控制下的高温、小风及少云条件促进 O_3 生成与累积,而台风外围环流则通过增强扩散和湿沉降显著降低 O_3 污染浓度.区域性的污染过程由城市交通排放(尤其是早晚高峰一次污染物浓度抬升)驱动,本地臭氧(O_3)污染加剧,一次排放的 VOCs 向下风向区域传输的过程中持续老化,主要表现为烷烃向 OVOCs 的转化,氧化产物的生成导致了传输通道站点的 O_3 污染.O_3 与细颗粒物($PM_{2.5}$)呈现协同污染特征,二者污染峰值时间一致,$PM_{2.5}$ 中的 SOA(二次有机气溶胶)占比显著升高.以上结果揭示了交通污染排放的 VOCs 不仅作为前体物直接导致本地 O_3 污染,在下风向传输过程中伴随着老化过程,引起区域性的 O_3 污染,并抬升 $PM_{2.5}$ 的浓度.

关键词：挥发性有机物(VOCs)；老化过程；传输通道；正定矩阵因子分解(PMF)；臭氧(O_3)污染
中图分类号：X511 **文献标识码**：A **文章编号**：1000-6923(2026)02-0636-10

Sources, aging evolution, and pollution characteristics of volatile organic compounds on regional transport pathways in the Yangtze River Delta. SUN Peng[1*], GU Xiao-ming[2], ZHONG Sheng[1], YU Jian-qiao[1], XU Zheng[1] (1.Jiangsu Provincial Environmental Monitoring Center, Nanjing 210019, China；2.Jiangsu Provincial Suzhou Environmental Monitoring Center, Suzhou 215000, China). *China Environmental Science*, 2026,46(2)：636~645

Abstract：Most existing studies of VOCs based on single monitoring sites cannot fully characterize VOC transport and aging. Here, we conducted 45-day synchronous online VOC measurements in summer using GC–MS at an urban site in Suzhou (eastern Yangtze River Delta) and a downwind site on Xishan Island, Taihu Lake. Combined with positive matrix factorization (PMF), we investigated the sources and transport-aging processes of VOCs. The average φ(TVOCs) in urban Suzhou was 28.6×10^{-9}, higher than 17.5×10^{-9} downwind. Urban VOCs were dominated by alkanes, whereas OVOCs and halocarbons showed larger fractions at the transport site. PMF revealed four factors (vehicle exhaust, gasoline evaporation, solvent use, and industrial emissions) with source profiles and temporal patterns consistent between sites, but all exhibited pronounced aging downwind, reflected by systematic increases in OVOC contributions. Biogenic emissions were also important downwind, where isoprene levels were 143.8% higher than urban values. Subtropical high-pressure systems with elevated temperatures and weak winds promoted O_3 formation, whereas typhoon circulation mitigated O_3 pollution via enhanced dispersion and wet deposition. Regional pollution episodes were driven by urban traffic emissions, especially during rush hours when primary pollutants peaked. During transport, primary VOCs underwent continuous aging with alkanes converting to OVOCs, further enhancing downwind O_3 pollution. O_3 and $PM_{2.5}$ exhibited synchronized peaks, and SOA contributions in $PM_{2.5}$ increased markedly. These findings demonstrate that traffic-related NO_x and VOC emissions contribute to local O_3 formation and, through aging during transport, drive regional O_3 pollution, providing critical insights into compound air pollution mechanisms in the Yangtze River Delta.

Key words：volatile organic compounds (VOCs)；aging evolution；transport pathways；positive matrix factorization (PMF)；ozone (O_3) pollution

收稿日期：2025-07-16
基金项目：国家自然科学基金资助项目(42105096);2025 年度江苏省生态环境监测科研基金(25B04);江苏省生态环境科研项目(2025016)
* 责任作者, 高级工程师, sunpeng123ll@163.com

近年来,随着《空气质量持续改善行动计划》等政策的推行,我国在 $PM_{2.5}$ 等一次污染物的治理方面取得了显著成效,但近地面 O_3 污染问题日益凸显,已成为制约我国空气质量持续改善的关键瓶颈[1-5].O_3 作为一种典型的二次污染物,生成机制具有高度非线性化学特征[6-7],主要受前体物——氮氧化物(NO_x)和挥发性有机物(Volatile Organic Compounds, VOCs)的光化学反应的共同调控[8-12].我国当前大多数区域属于 O_3 的 VOCs 控制区[13-14],如鹤壁市的 VOCs 减排 75%和 NO_x 减排 10%的协同管控方案可以达到空气质量二级标准[15];深圳市人为源 VOCs 下降对降低 O_3 有显著效果[14];黄冈市的 O_3 生成对间/对-二甲苯和乙烯等较为敏感[16].此外,VOCs 也是 $PM_{2.5}$ 中二次有机气溶胶(SOA)的重要前体物[17-18],VOCs 的来源解析和演变机理的研究对 O_3 污染及协同管控意义重大.

现有研究主要通过正定矩阵因子分解(PMF)等受体模型[19-22],对 VOCs 的排放特征进行了系统解析,成功识别出各类污染源[23-27].如济南市一项研究发现机动车尾气排放源、燃烧源及工业源为济南市 VOCs 的重点管控源[28].海南区域 VOCs 受到人为源显著影响,机动车尾气贡献高达 37.8%~46.2%[29].晋城市本地燃烧源、机动车排放源和工业源是 VOCs 管控的重点源,尤其要重点加强城市北部工业企业和机动车源管控[30].然而,这些研究大多局限于单一站点的数据分析,未能充分考虑大气边界层内 VOCs 的传输过程及其伴随的化学转化.值得注意的是,VOCs 的区域传输可能导致污染特征的“非本地化”现象,这一效应在城市群区域尤为突出,城市排放高浓度的 VOCs 传输到下风向区域后伴随的老化过程及对本地 O_3 的影响还需深入探究.

夏季长三角地区受海陆风环流影响,盛行偏东风,同时伴随 O_3 污染频发[31-33],长三角东部城市群如(上海、苏州等)排放的 VOCs 对下风向污染的影响尚未明确.本研究选取苏州市西部的太湖西山岛作为典型传输通道站点,该站点具有明显地理优势:一是周围无本地污染源干扰,以湖泊和山地为主;二是位于城市苏州城区主导风向(东南风)的下风向,是研究城区污染物传输影响的理想观测点位.本研究于苏州城市及传输通道站点同步开展 VOCs 在线监测,重点研究:不同区域 VOCs 的组分及来源特征,传输过程中 VOCs 组分的老化规律,阐明区域 VOCs 排放对 O_3 生成污染过程的影响.鉴于此,本研究创新性地构建“城市源-传输通道”双站点观测系统,通过多站点受体模型综合比对分析实现了污染溯源与传输过程的耦合解析,旨在为揭示城市群大气复合污染的形成机制提供技术路径,为解析 VOCs 经城市排放源至下风向区域传输过程中的化学转化规律及特征演变提供参考.

1　材料与方法

1.1　监测时间与点位

2024 年 7 月 15 日~8 月 31 日分别于江苏省苏州市的城市站点及传输通道站点开展基于气相色谱,质谱联用(GC-MS)的 VOCs 在线监测.城市站点位于苏州市中部姑苏区,附近无大型污染源,能较好反映城市污染特征,其布设符合《环境空气质量监测点位布设技术规范(试行)》(HJ 664)中城市评价点位的要求.

传输通道站点位于苏州市西部的太湖西山岛,西山岛上森林面积共计 54.5km^2,其中国家级生态公益林 4533.3hm^2.西山监测站位于 300m 高度的山峰.两站点的相对位置示意见图 1,中间的水平距离约 60km.此外,两站点均同步监测常规污染物($PM_{2.5}$、NO_x、O_3、SO_2 和 CO)及气象参数.其中的紫外辐射为 UVA(Ultraviolet A,315~400nm) 和 UVB (Ultraviolet B 280~315nm)的总和.

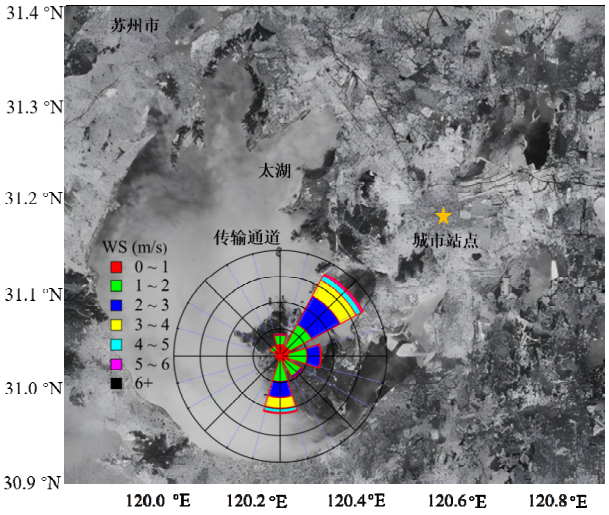


图 1　城市和传输通道站点位置示意

Fig.1　Schematic diagram of the urban and downwind monitoring sites

1.2 基于 GC-MS 的 VOCs 在线监测

两套 VOCs 在线监测系统分别采用不同的预浓缩技术:传输通道站点配置的禾信(AC-GCMS1000)设备采用超低温冷冻捕集技术实现环境大气中 VOCs 的高效富集,并通过热解析技术将样品导入分析模块;城市站点采用的 MARKES (CIA Advantage-xr)设备则基于除水冷阱结合聚焦冷阱(工作温度范围-30~50℃)的技术进行在线样品采集.两套系统的分析模块均采用气相色谱-质谱联用技术(GC-MS),通过氢火焰离子化检测器(FID)和质谱检测器(MS)实现 VOCs 的定性与定量分析,可准确监测烷烃、烯烃、芳香烃、卤代烃及含氧挥发性有机物(OVOCs)等多种组分,并提供时间分辨率为 1h 的监测数据.

在质量控制方面,两套设备遵循《国家环境空气挥发性有机物气相色谱连续监测系统技术要求及检测方法》[HJ 1010-2018]的相关规定.具体质控措施包括:采用 4700 型标准气体稀释仪配制 50×10^{-6} 浓度的内标气体(含溴氯甲烷、1,4-二氟苯、氘代氯苯和 1-溴-4-氟苯);同时使用同型号稀释仪配制 10×10^{-6} 浓度的混合标准气体作为外标.系统每日 00:00 自动执行外标审核程序,确保 FID 检测组分的分析偏差控制在 20%以内,MS 检测组分的分析偏差控制在 30%以内.此外,每半年利用区域质控实验室统一配置的 VOCs 苏玛罐标准盲样对两个站点的设备进行质控,保障数据的一致性、可比性.经质控后,本研究共获取有效 VOCs 组分数据 928 组(城市站点)和 834 组(传输通道站点).

1.3 正定矩阵因子分解(PMF)分析方法

PMF 广泛应用于大气颗粒物及 VOCs 源解析,通过最小二乘法因式分解,减小残差(***E***)的不确定性,最终得到因子贡献矩阵(***F***)与因子源谱矩阵(***G***),见公式(1)和式(2):

$$\boldsymbol{X}=\boldsymbol{G}\cdot\boldsymbol{F}+\boldsymbol{E} \tag{1}$$

$$\boldsymbol{E}=\sum_{i=1}^{m}\cdot\sum_{j=1}^{n}\left(\frac{\theta_{ij}}{u_{ij}}\right)^2 \tag{2}$$

式中:e_{ij} 表示残差矩阵中第 i 个时间序列第 j 个物种的拟合计算残差;u_{ij} 表示对应测量物种的不确定度.

针对城市站点及传输通道站点分别开展 PMF(正矩阵因子分解)源解析.为确保分析结果的可比性,两地采用完全相同的 VOCs 物种组合作为模型输入变量.在物种筛选方面,重点选择具有典型示踪特征且平均体积分数较高的 36 种 VOCs.分析数据时间跨度与监测时间一致.

1.4 O_3 污染天判定

本研究按照《环境空气质量标准》[GB 3095]相关规定,将观测期间 O_3 日最大 8h 滑动(MDA8-O_3)质量浓度平均值超过 160 μg/m^3 的天作为超标天,统计 VOCs 各类 PMF 因子及其它相关参数 O_3 污染天及非污染天的变化特征.

1.5 $PM_{2.5}$ 组分协同观测

为开展 $PM_{2.5}$ 组分的协同监测,在苏州城市站点利用瑞士的气溶胶与气体在线监测系统(MARGA2080,瑞士万通)、先河公司的元素碳/有机碳在线监测仪(Sunset OCEC)及大气重金属在线分析仪(Xact 625)对 $PM_{2.5}$ 中的水溶性离子、元素碳(EC)、有机碳(OC)和无机元素进行在线监测,时间分辨率均为 1h.根据《大气颗粒物组分自动监测数据审核技术指南(试行)》规范,基于 $PM_{2.5}$ 组分监测结果对其进行组分重构,最终可定量计算 $PM_{2.5}$ 组分中的硝酸盐(NO_3^-)、硫酸盐(SO_4^{2-})、铵盐(NH_4^+)、氯离子(Cl^-)、一次有机气溶胶(POA)、二次有机气溶胶(SOA)、微量元素和地壳物质.

2 结果与讨论

2.1 污染物浓度特征

表 1 城市及传输通道站点污染物统计

Table 1 Statistical analysis of pollutants at the urban and downwind sites

参数	城市站	传输通道站
TVOCs(10^{-9})	26.6	17.5
烷烃(10^{-9})	8.5	4.4
烯烃(10^{-9})	1.6	1.1
芳香烃(10^{-9})	2.3	1.3
卤代烃(10^{-9})	4.8	3.4
OVOCs(10^{-9})	9.4	7.3
O_3(μg/m^3)	82.8	82.9
NO_x (μg/m^3)	16.4	14.0
$PM_{2.5}$ (μg/m^3)	17.6	11.7
辐射 (W/m^2)	32.5	29.7
臭氧超标天(d)	15	3

由表 1 可见,城市地区的 φ(TVOCs)平均值为 26.6×10^{-9},高于传输通道站点的 17.5×10^{-9},NO_x、$PM_{2.5}$ 也都表现为城市高值.这一空间分布与城市地区密集的污染物排放源分布高度一致.但 O_3 的平均

值接近,一是因为城区较高浓度的 NO_x 对 O_3 有一定的滴定作用,二是因为传输通道区域受到地表反射率和大气透明度的影响,拥有相比于城区更高的紫外辐射,从而增加 O_3 的光化学转换.值得注意的是城区的 O_3 超标天共计 15d,远远高于传输通道站点的3d,表明城市地区高污染排放对 O_3 污染的重要影响.

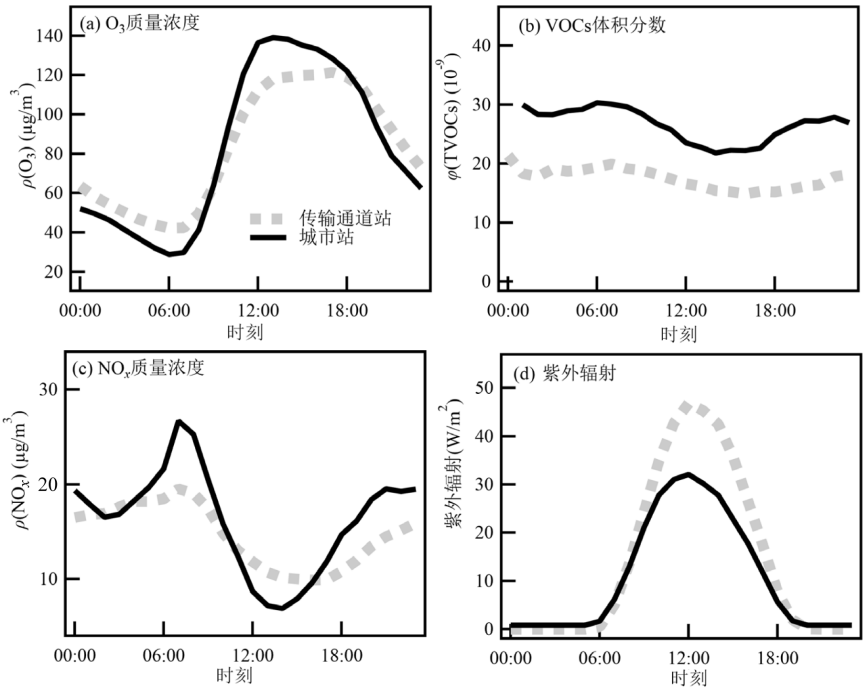


图 2　城市及传输通道站点主要污染物及气象要素日变化

Fig.2　Diurnal variations of major air pollutants and meteorological parameters at the urban and downwind sites

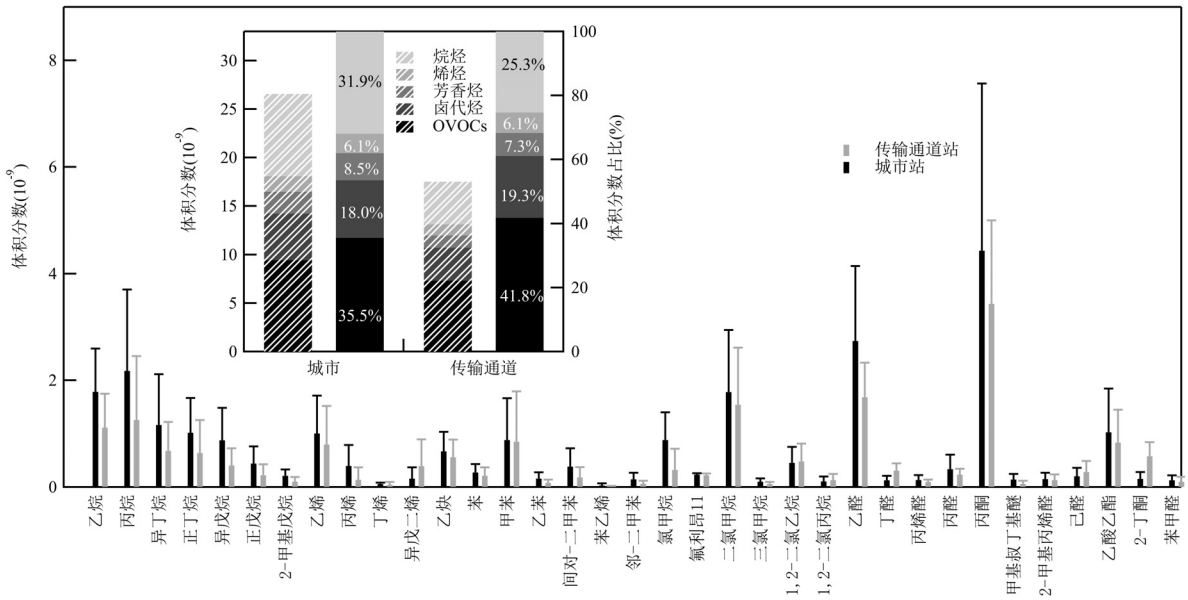


图 3　城市及传输通道站点各 VOCs 物种体积分数及不同 VOCs 种类的体积分数与体积分数占比

Fig.3　Volume mixing ratios of individual VOCs and fractional contributions of VOC groups at the urban and downwind sites

由图 2 可见,城市站点的 O_3 相比于传输通道站点展现出“峰值更高、谷值更低”的日循环特征,日间 O_3 浓度峰的显著抬升主要归因于高浓度的前体物排放,这也是城市区域 O_3 容易频繁超标的重要原因.NO_x 作为典型的交通源,展现出明显的早晚高峰变化趋势,城市地区的尤为突出,具体表现为早晨

07:00~08:00 的早高峰及晚上 18:00 之后的浓度抬升,体现了本地排放源的重要影响.相应地,受 NO_x 滴定作用影响,18:00 后城市 O_3 浓度逐渐低于传输通道站点.此外,传输通道的紫外辐射高于城市,这种差异在日间正午时段表现得较为明显.

通过对比两地 VOCs 物种组成及大类分布(图 3)发现:除异戊二烯及少数 OVOCs 外,城市地区各 VOCs 物种体积分数普遍高于传输通道站点.城市体积分数前 3 的 VOCs 物种依次是丙酮(4.4×10^{-9})、乙醛(2.7×10^{-9})和丙烷(2.2×10^{-9}),而传输通道则为丙酮(3.4×10^{-9})、乙醛(1.7×10^{-9})和二氯甲烷(1.5×10^{-9}),由于含氯原子的稳定效应,以二氯甲烷为代表的卤代烃 O_3 生成潜势较低,故氟利昂 12、氟利昂 11 等卤代烃经常被看做大气背景组分.二氯甲烷在传输过程中损耗相对较少,故其在传输通道站点的体积分数排名提升,而整体卤代烃的占比也更高(19.3%).城市地区受一次交通源排放的影响较多,VOCs 组成以烷烃为主导,φ(烷烃)平均值为 8.5×10^{-9},较传输通道站点高出 93%,占 TVOCs 体积分数的 31.9%.相比之下,传输通道站点的 TVOCs 组成呈现二次转换特征,其中 OVOCs 占比达 41.8%,明显高出城市站点的 35.5%.这种组成差异主要源于 VOCs 在传输过程中发生的化学转化——烷烃类物质通过大气氧化过程逐步转化为 OVOCs.

2.2 VOCs 来源解析及老化演变

通过对两个站点进行 4~7 个因子及不同 F-PEAK(旋转不确定性)值的 PMF 模型运算,综合考虑运行结果的 Q_{true}/Q_{robust}(诊断参数)值的稳定性、因子物理意义及站点间数据相关性,最终确定 5 个因子作为最优解(图 4).

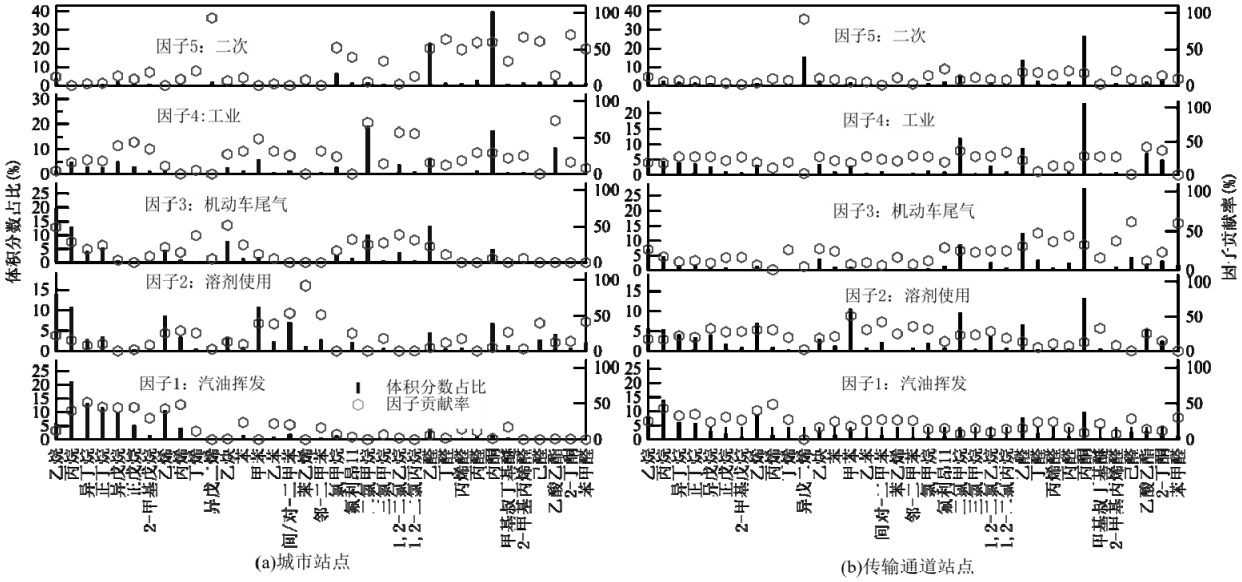


图 4 基于观测的 VOCs 来源解析结果

Fig.4 Observation-based source apportionment of the VOCs

城市站点的因子 1 以正/异戊烷、正/异丁烷和乙烯为主要特征物种,其组成特征与汽油挥发源高度吻合,特别是乙烯的高贡献率进一步印证了汽油车尾气排放的贡献[21,34-35].因子 2 则表现为典型的苯系物主导,对甲苯、间/对-二甲苯和邻-二甲苯等有较高的贡献率,反映了溶剂使用的排放特征[36]. 因子 3 中短链烷烃尤其是乙烷的因子贡献显著,可能来源于液化石油气(LPG)和压缩天然气(CNG)车辆的排放[16,37],此外,多项研究都强调了机动车尾气是乙醛的重要来源[15,38],与本研究相吻合.因子 4 呈现出独特的卤代烃-OVOCs 混合特征,二氯甲烷、乙酸乙酯是典型的工业园区排放产物[39],部分 OVOCs 与电子制造的相关过程有关[40].因子 5 主要以 OVOCs 为主,体现了二次转换的特征,具有最高的乙醛和丙酮因子贡献率[38].

传输通道站点的 5 个因子与城市站点高度一致,各因子的特征物种均吻合较好,如汽油挥发中的正异戊烷、机动车尾气中的短链烷烃,工业中的卤代烃,

但二次源表现出一定差异;传输通道站点的二次源不仅有最高的异戊二烯因子贡献率,也有较高的异戊二烯体积分数占比(城市站点占比极低).传输通道站点的 φ(异戊二烯)平均值为 0.4×10^{-9},高出城市站点 143.8%,异戊二烯是生物排放典型示踪物,而传输通道站点周围以自然生态为主,易受生物排放影响.

表 2　城市及传输通道站点 PMF 解析出各类因子的时间序列相关系数

Table 2　Correlations between the PMF time series derived from the city and downwind sites

传输通道	城市				
	汽油挥发	溶剂使用	机动车尾气	工业	二次
汽油挥发	**0.63**	0.01	0.05	0.20	0.29
溶剂使用	0.17	**0.57**	0.02	0.04	0.13
机动车尾气	0.22	0.26	**0.36**	0.12	0.11
工业	0.11	0.21	0.00	**0.48**	0.12
二次	0.31	0.26	0.06	0.13	**0.34**

从解析因子的时间变化特征考虑,统计城市与传输通道站点各因子的体积分数时间变化序列的两两相关性见表 2.被解析为相似源的因子均具有最高的时间序列相关性,这不仅验证了解析结果的可靠性,更证实了城市排放对下风向区域的传输影响.

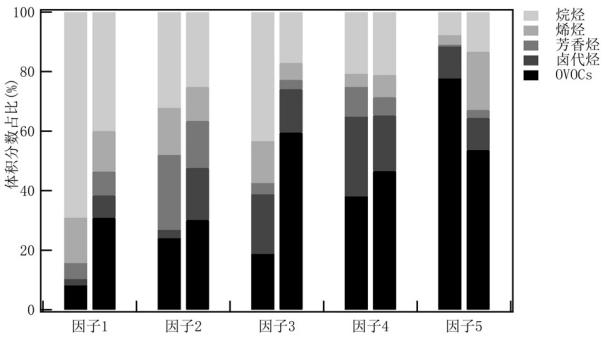


图 5　城市及传输通道站点 PMF 解析出各因子的 VOCs 种类体积分数占比

Fig.5　Volume fraction percentages of VOCs species in each factor resolved by PMF at the urban and downwind sites

左边柱形为城市站点,右边为传输通道站点

城市及传输通道站点各 PMF 因子的 VOCs 种类分析(图 5)揭示了 VOCs 传输过程中的化学演变.具体表现为 OVOCs 占比的系统性升高:汽油挥发源的 OVOCs 的占比由城市站的 8.2%上升到传输通道站的 30.9%,溶剂使用源的 OVOCs 由 24.0%上升到 30.2%,机动车尾气源的 OVOCs 由 18.8%上升到 59.5%,工业源的 OVOCs 由 38.1%上升到 46.6%,相应地,烷烃、烯烃、芳香烃等占比普遍下降,其中,烷烃的占比变化最大,特别是在汽油挥发及机动车尾气中的排放,其占比的下降与 OVOCs 占比的大幅上升,突出了交通相关排放源在区域性大气污染过程中的重要作用.二次源因受到生物排放的异戊二烯影响,OVOCs 占比反而下降.

2.3　O_3 污染过程分析

2.3.1　气象要素对污染过程的影响　传输通道站点共计出现 3 次 O_3 超标事件(8 月 5 日、8 月 8 日和 8 月 9 日见图 6).同期城市站点超标天数更为频繁,其中 8 月 5~10 日形成了最为严重的 O_3 污染过程.为探究气象要素及天气过程对区域 O_3 污染的影响,本研究根据 O_3 浓度变化特征,选取以下 3 个典型时段进行对比分析:(1)污染前的清洁时段(7 月 24~30 日);(2)污染集中爆发阶段(8 月 5~9 日);(3)污染后清洁时段(8 月 15~20 日).

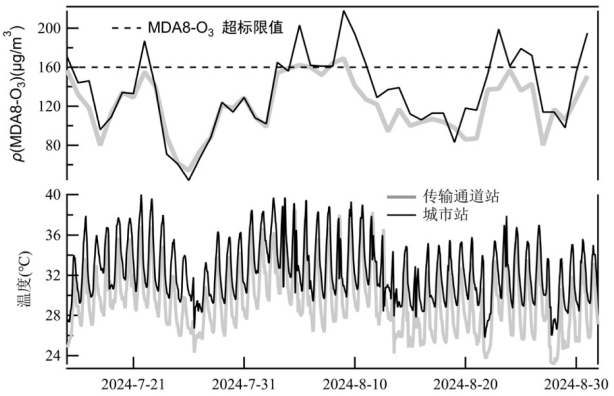


图 6　城市和传输通道站点 O_3 浓度及温度变化特征

Fig.6　Variations in the O_3 concentrations and the temperature at the urban and downwind sites

污染前:受台风“格美”外围环流影响,苏州地区近地面风场以东南风及偏东风为主(风速 5~10m/s),并伴随强降水(24h 累积降水量>10mm).较强的水平输送和湿沉降作用显著降低了 O_3 前体物的局地积累及污染.

污染时段:500hPa 位势高度场显示苏州地区持续受副热带高压系统控制,天气表现为高温(日最高气温接近 40℃)、小风(风速<2m/s)及少云.这种气象条件(1)增强光化学反应速率;(2)抑制污染物扩散,导致 O_3 及其前体物在近地面持续累积,形成典型的光化学污染过程.

污染后:受台风“云雀”外围环流及热低压共同影响,苏州地区近地面以偏南风及东南风为主(风速~5m/s),并伴随局地降水.台风外围的系统性气流增强污染物的区域输送和扩散,湿沉降进一步清除大气污染物,使 O_3 浓度迅速恢复至清洁水平.

2.3.2 O_3 及前体物污染特征 由图 7(城市站点)和图 8(传输通道)可见,O_3 污染天期间前体物 NO_x 和 VOCs 浓度升高,且早晚交通高峰时段的峰值抬升幅度更大,而太阳紫外辐射强度未见明显差异.这一结果表明,研究区域的 O_3 污染主要受前体物排放量增加的驱动,与宿迁市研究中发现的高紫外辐射主导 O_3 污染存在差异[39].值得注意的是,O_3 污染天 $PM_{2.5}$ 浓度也呈现显著上升趋势.城市站点 $PM_{2.5}$ 浓度在全天均维持较高水平,并在正午时段出现单峰特征;而传输通道站点则表现为早、午、晚三峰分布模式,其峰值时间与 NO_x/VOCs 的早晚高峰及 O_3 的日间峰值高度吻合.

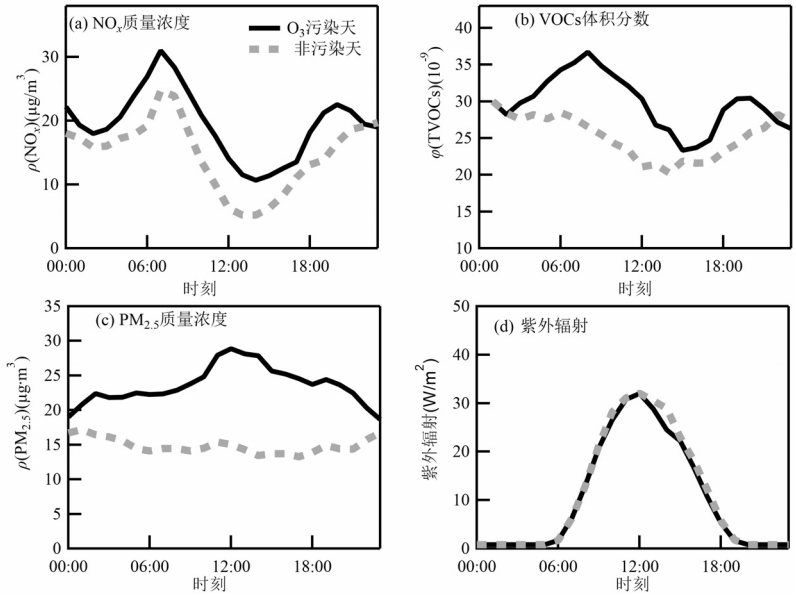


图 7 城市站点 O_3 污染天与非污染天常规污染物与气象要素日变化特征

Fig.7 Diurnal variations of the air pollutants and the meteorological parameters between ozone-polluted and non-polluted days at the urban site

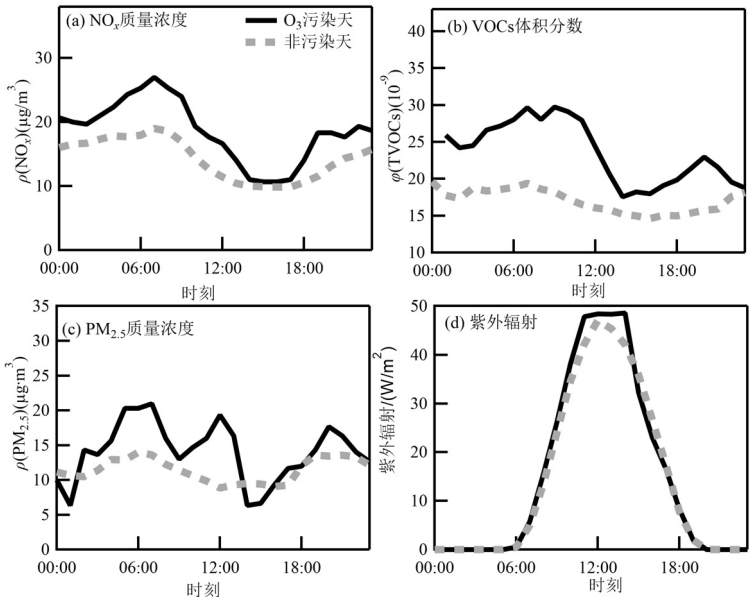


图 8 传输通道站点 O_3 污染天与非污染天常规污染物与气象要素日变化特征

Fig.8 Diurnal variations of the air pollutants and the meteorological parameters between ozone-polluted and non-polluted days at the downwind site

由图 9 可见,城市站点污染期间汽油挥发源和机动车尾气源贡献升高,分别从污染前的 12%和17%上升到污染过程中的 23%和 21%.其余几类源呈下降趋势,传输通道站点的污染源变化情况与之吻合.其中尤为值得注意的是经传输氧化后的机动车尾气源 OVOCs 的占比高达 59.5%(图 5),且在污染过程中的贡献率从 23%攀升到 36%,升幅最大,以上结果揭示了传输中的老化效应在 O_3 污染形成中的重要作用.城市站点因交通源排放增加,O_3 污染发生,这些排放的 VOCs 在向下风向传输过程中发生了二次转换,尤其是烷烃向 OVOCs 的转换,而这些氧化后的 VOCs 又导致了下风向区域的 O_3 污染.

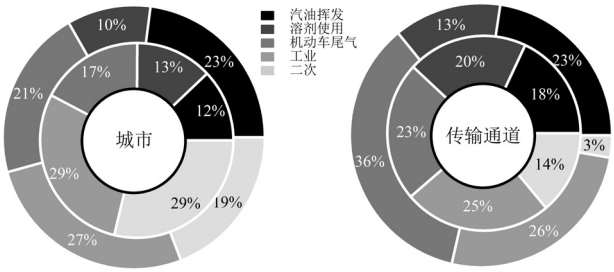


图 9　城市及传输通道站点 O_3 污染天及非污染天 PMF 解析出各因子的贡献率

Fig.9　Contributions of resolved factors from PMF analysis at the urban and downwind sites during the ozone-polluted and the non-polluted days

内环为非污染天,外环为 O_3 污染天的统计结果

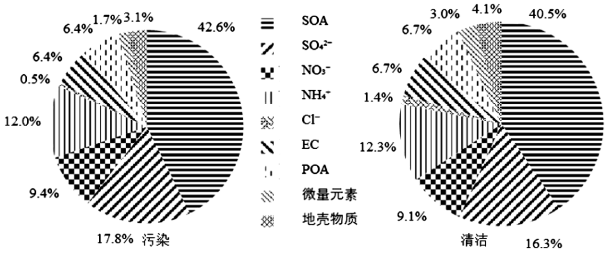


图 10　城市站点 O_3 污染天与非污染天 $PM_{2.5}$ 组分特征

Fig.10　Characteristics of the $PM_{2.5}$ chemical components during the O_3-polluted and non-polluted days at the urban site

2.3.3　$PM_{2.5}$ 协同污染特征　观测数据显示,O_3 污染期间 $PM_{2.5}$ 浓度显著升高(图 7).为进一步探究其成因,对比分析污染天与非污染天城市站点的 $PM_{2.5}$ 化学组分(图 10).夏季 $PM_{2.5}$ 以二次组分(SOA+SO_4^{2-}+NO_3^-+NH_4^+)为主,占总质量的 78.2%,在 O_3 污染期间该比例进一步升高到 81.8%,表明了 O_3 污染对 $PM_{2.5}$ 二次转换的促进作用[41].从具体的组分看,污染期间 $PM_{2.5}$ 中的 SOA、SO_4^{2-}质量占比从清洁天的 40.5%、16.3%上升至 42.6%和 17.8%,尤其是 SOA 成为夏季 $PM_{2.5}$ 最重要的组分.SOA 主要由空气中的 VOCs 及 POA 二次转换生成[42],值得注意的是 VOCs 既是 O_3 也是 $PM_{2.5}$ 中 SOA 的关键前体物,实施协同控制策略意义重大.

3　结论

3.1　苏州城区 φ(TVOCs)平均值为 28.6×10^{-9},受一次排放影响,烷烃占比相对较高(31.9%),传输通道站点的 φ(TVOCs)降至 17.5×10^{-9},传输过程中的二次转换导致 OVOCs 占比上升,同时卤代烃因损耗较少,其占比也相对升高.

3.2　PMF 结果表明城市及传输通道站点的 VOCs 主要来源于机动车尾气、汽油挥发、溶剂使用、工业和二次转换.双站点的因子成分谱及时间变化均较为吻合,证实了传输通道站点的 VOCs 主要受城市排放影响;传输通道站点 VOCs 各污染源呈现明显老化特征,表现为 OVOCs 占比系统性升高.传输通道站点 VOCs 有明显的生物源贡献,其异戊二烯体积分数较城区高 143.8%.

3.3　O_3 污染受到大型天气系统的影响:副热带高压控制下的高温、小风及少云条件促进 O_3 生成与累积,而台风外围环流则通过增强扩散和湿沉降显著降低 O_3 污染.

3.4　O_3 污染过程中,城市及传输通道站点的 TVOCs 及 NO_x 早晚高峰抬升明显,且机动车尾气源和汽油挥发源占比显著升高,但太阳紫外辐射相较非污染时段变化不大,表明交通源排放是 O_3 污染的驱动因素.交通排放的 VOCs 向下风向传输,烷烃大量转换为 OVOCs,氧化产物又导致了传输通道区域的 O_3 污染.

3.5　O_3 与 $PM_{2.5}$ 呈现协同污染特征,二者污染峰值时间一致,$PM_{2.5}$ 的化学组分由 SOA 主导,且在污染过程中显著升高.以上结果揭示了交通污染排放的 VOCs 不仅作为前体物直接导致本地 O_3 污染,在下风向传输过程中伴随着老化过程,引起区域性的 O_3 污染,同时抬升 $PM_{2.5}$ 的浓度.

参考文献:

[1]　张恺乐,褚旸晰,储王辉,等.我国城市地区 $PM_{2.5}$ 和 O_3 污染相关性:2017~2022 年时空演变特征与协同防控启示 [J]. 中国环境科学,

2024,44(6):3004−3011.
Zhang K L, Chu Y X, Chu W H, et al. The correlation between $PM_{2.5}$ and O_3 pollution in urban areas of China: spatiotemporal variation from 2017 to 2022 and implication for synergistic prevention and control [J]. China Environmental Science, 2024,44(6):3004−3011.

[2] 夏 楠,李安澜,全伟琳,等.基于 GTWR 的中国近地面臭氧污染及驱动因素分析 [J]. 农业工程学报, doi:10.11975/j.issn.1002−6819.202405206.
Xia N, Li A L, Quan W L, et al. Analysis of ground−level ozone pollution and its driving factors based on GTWR in China [J]. Transactions of the Chinese Society of Agricultural Engineering, doi:10.11975/j.issn.1002−6819.202405206.

[3] 魏 彤,李政蕾,陈 昱,等.长三角居民 $PM_{2.5}$ 暴露水平下降的健康效益评估 [J]. 中国环境科学, 2023,43(6):3211−3219.
Wei T, Li Z L, Chen Y, et al. Assessment of the health benefits of declining $PM_{2.5}$ levels in the Yangtze River Delta [J]. China Environmental Science, 2023,43(6):3211−3219.

[4] Li K, Jacob D J, Liao H, et al. A two−pollutant strategy for improving ozone and particulate air quality in China [J]. Nature Geoscience, 2019, 12(11):906−910.

[5] 黄沛荣,朱 波,张 月,等.$PM_{2.5}$ 与 O_3 协同控制视角下深圳市工业 VOCs 源谱特征 [J]. 中国环境科学, 2022,42(8):3473−3482.
Huang P R, Zhu B, Zhang Y, et al. Source profile characteristics of industrial VOCs in Shenzhen from the perspective of $PM_{2.5}$ and O_3 synergistic control [J]. China Environmental Science, 2022,42(8): 3473−3482.

[6] 钟博闻,周 俊,王 燕,等.我国臭氧生成敏感性研究进展 [J]. 中国环境科学, 2024,44(12):6522−6537.
Zhong B W, Zhou J, Wang Y, et al. Review of ozone formation sensitivity in Chin [J]. China Environmental Science, 2024,44(12): 6522−6537.

[7] 蒋小梅,孙雷涛,王玲玲,等.商丘市夏秋季臭氧光化学反应特征及减排策略 [J]. 环境科学, 2024,45(10):5706−5714.
Jiang X M, Sun L T, Wang L L, et al. Characteristics of ozone photochemical reaction and emission reduction strategies in summer and autumn in Shangqiu [J]. Environmental Science, 2024,45(10): 5706−5714.

[8] 邵 敏,董 东.我国大气挥发性有机物污染与控制 [J]. 环境保护, 2013,41(5):25−28.

[9] Kim, S J, Lee, S J, Lee, H Y, et al. Characteristics of volatile organic compounds in the metropolitan city of Seoul, South Korea: Diurnal variation, source identification, secondary formation of organic aerosol, and health risk [J]. Science of the Total Environment, 2022,838(P3): 156344−156344.

[10] 尉晴晴,杨威强,裴成磊,等.珠三角夏秋转换季臭氧污染成因及前体物减排策略分析 [J]. 环境科学, 2024,45(10):5695−5705.
Wei Q Q, Yang W Q, Pei C L, et al. Analysis of ozone pollution and precursor control strategies in the Pearl River Delta during summer and autumn transition season [J]. Environmental Science, 2024,45 (10):5695−5705.

[11] 方小珍,刘 诚,邓力琛,等.江西省近地面臭氧污染特征及成因分析 [J] 东华理工大学学报(自然科学版), 2024,47(4):381−390.
Fang X Z, Liu C, Deng L, et al. Analysis on characteristics and causes of ground−level ozone pollution in Jiangxi Province [J]. Journal of East China University of Technology (Natural Science), 2024,47(4): 381−390.

[12] Rickly P S, Coggon M M, Aikin K C, et al. Influence of wildfire on urban ozone: An observationally constrained box modeling study at a site in the Colorado front range [J]. Environmental science & technology, 2023,doi:10.1021/acs.est.2c06157.

[13] Hui L, Liu X, Tan Q, et al. VOC characteristics, chemical reactivity and sources in urban Wuhan, central China [J]. Atmospheric Environment, 2020,224,doi:org/10.1016/j.atmosenv.2020.117340.

[14] 张明棣,云 龙,李成柳,等.基于观测模型量化 VOCs 对深圳市城区臭氧生成的影响 [J]. 环境科学研究, 2021,34(11):2599−2608.
Zhang M L, Yun L, Li C L, et al. Quantifying impacts of VOCs on ozone formation in urban area of Shenzhen based on observation−based model [J]. Research of Environmental Sciences, 2021,34(11): 2599−2608.

[15] 刘雨婷,杜展霞,张新民,等.鹤壁市臭氧及 VOCs 污染特征、来源与减排控制策略分析 [J]. 环境科学, 2024,45(7):3839−3848.
Liu Y T, Du Z X, Zhang X M, et al. Analysis of ozone and VOCs pollution characteristics, sources, and abatement control strategies in Hebi [J]. Environmental Science, 2024,45(7):3839−3848.

[16] 连世泽,邓萌杰,陈 楠,等.黄冈市大气挥发性有机物污染特征、来源及对臭氧生成的影响 [J]. 环境科学, 2023,44(10):5410−5417.
Lian S Z, Deng M J, Chen N, et al. Characteristics, sources, and contrioutions to ozone formation of ambient volatile organic compounds in Huanggang, China [J]. Environmental Science, 2023, 44(10):5410−5417.

[17] Zhou L, Liang Z, Qin Y, et al. Evaporation−induced transformations in volatile chemical product−derived secondary organic aerosols: browning effects and alterations in oxidative reactivity [J]. Environmental Science & Technology, 2024,58(25):11105–11117.

[18] 钱思瑶,关净文,关 璐,等.杭州市大气 VOCs 组成特征及二次污染生成贡献 [J]. 中国环境科学, 2024,44(4):1921−1928.
Qian S Y, Guan J W, Guan L, et al. Composition characteristics of volatile organic compounds and contribution to secondary pollution formation in Hangzhou [J]. China Environmental Science, 2024,44(4): 1921−1928.

[19] Paatero P, Tapper U. Positive matrix factorization−a nonnegative factor model with optimal utilization of error−estimates of data values [J]. Environmetrics, 1994,5(2):111−126.

[20] Zhang Q, Jimenez J L, Canagaratna M R, et al. Understanding atmospheric organic aerosols via factor analysis of aerosol mass spectrometry: a review [J]. Anal Bioanal Chem, 2011,401(10):3045−67.

[21] Yang Y, Baoshuang L, Jing H, et al. Global review of source apportionment of volatile organic compounds based on highly time−resolved data from 2015 to 2021 [J]. Environment international, 2022,165:107330−107330.

[22] 张力元,张亚楠,钟佳浩,等.铜川市新区大气挥发性有机物季节性来源解析 [J]. 中国环境科学, 2025,45(1):93−102.
Zhang L Y, Zhang Y N, Zhong J H, et al. Seasonal source analysis of atmospheric volatile organic compounds (VOCs) in Tongchuan high−tech industrial development zone [J]. China Environmental Science, 2025,45(1):93−102.

[23] 赖梦洁,张　栋,于世杰,等.郑州市冬夏季污染过程中大气 VOCs 污染特征、来源解析及活性分析 [J]. 环境科学, 2024,45(2):689−699.
Lai M J, Zhang D, Yu S J, et al. Pollution characteristics, source analysis, and activity analysis of atmospheric VOCs during winter and summer pollution in Zhengzho [J]. Environmental Science, 2024,45(2):689−699.

[24] 张博韬,景　宽,王　琴,等.北京城区夏季 VOCs 初始体积分数特征及来源解析 [J]. 环境科学, 2024,45(1):81−92.
Zhang B T, Jing K, Wang Q, et al. Characteristics and source apportionment of VOCs initial mixing ratio in Beling during summer [J]. Environmental Science, 2024,45(1):81−92.

[25] 张　珊.2020 年春节前后上海市典型石化园区大气 VOCs 特征及来源分析 [J]. 环境监控与预警, 2024,16(2):7−13.
Zhang S. Impact on characteristics and sources of VOCs in a typical petrochemical industrial area in Shanghai around the spring festival in 2020 [J]. Environmental Monitoring and Forewarning, 2024,16(2):7−13.

[26] Bing L X, Bin Y, Sihang W, et al. Variations and sources of volatile organic compounds (VOCs) in urban region: insights from measurements on a tall tower [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2022,22(16):10567−10587.

[27] 孙　鹏,钟　声,徐　政,等.大气中部分新污染物浓度特征、来源解析及健康风险评估 [J]. 环境监控与预警, 2023,15(5):156−162.
Sun P, Zhong S, Xu Z, et al. Mass concentrations, source analysis and health risk assessment of some emerging air pollutants [J]. Environmental Monitoring and Forewarning, 2023,15(5):156−162.

[28] 张厚勇,隋浩新,王在峰,等.济南市城区大气挥发性有机物污染特征及来源 [J]. 中国环境科学, 2024,44(9):4765−4777.
Zhang H Y, Sui H X, Wang Z F, et al. Characteristics and sources of Volatile Organic Compounds in urban Jinan, China [J]. China Environmental Science, 2024,44(9):4765−4777.

[29] 林尤静,颜为军,徐文帅,等.海南区域背景点光化学污染特征及 VOCs 来源解析 [J]. 中国环境科学, 2024,44(5):2418−2430.
Lin Y J, Yan W J, Xu W S, et al. Characteristics of photochemical pollution and sources analysis of atmospheric volatile organic compounds in the regional background station of Hainan [J]. China Environmental Science, 2024,44(5):2418−2430.

[30] 张鹏辉,胡冬梅,彭　林,等.晋城市大气 VOCs 污染特征及来源解析 [J]. 中国环境科学, 2023,43(9):4525−4533.
Zhang P H, Hu D M, Peng L, et al. Characteristics and sources of atmospheric VOCs pollution in Jincheng [J]. China Environmental Science, 2023,43(9):4525−4533.

[31] 牟显金赞,侯雪伟,朱小东.长三角地区近地层臭氧高值特征及其成因分析 [J]. 环境化学, 2025,44(3):876−889.
Mou X J Z, Hou X W, Zhu X D. Characteristics and cause analysis of surface high ozone inthe Yangtze River Delta [J]. Environmental Chemistry, 2025,44(3):876−889.

[32] 王　振,李春玉,余益军,等.2019 年夏季常州市挥发性有机物污染特征分析 [J]. 环境监控与预警, 2021,13(2):55−59,65.
Wang Z, Li C Y, Yu Y J, et al. Analysis on pollution characteristics of volatile organic compounds in the Summer of 2019 in Changzhou city [J]. Environmental Monitoring and Forewarning, 2021,13(2):55−59,65.

[33] 崔　静,陆　玮,张嘉伟.南通市臭氧污染特征及一次连续臭氧污染过程分析 [J]. 环境监控与预警, 2025,17(1):43−50.
Cui J, Lu W, Zhang J W. Characteristics of ozone pollution and analysis of a continuous ozone pollution process in Nantong [J]. Environmental Monitoring and Forewarning, 2025,17(1):43−50.

[34] 张良瑜,丁　峰,王　鸣,等.2022 年春季南京臭氧污染特征及成因分析 [J]. 中国环境监测, 2024,40(2):53−62.
Zhang L Y, Ding F, Wang M, et al. Analysis on the characteristics and causes of ozone pollution in Nanjing in the spring of 2022 [J]. Environmental Monitoring in China, 2024,40(2):53−62.

[35] 叶　露,郤菁菁,俞华明.汽车工业区大气挥发性有机物(VOCs)变化特征及来源解析 [J]. 环境科学, 2021,42(2):624−633.
Ye L, Ye J J, Yu H M. Characteristics and source apportionment of volatile organic compounds (VOCs) in the automobile industrial park of Shanghai [J]. Environmental Science, 2021,42(2):624−633.

[36] 孙　鹏,徐　韬,钟　声,等.基于 VOCs 来源解析的臭氧污染控制策略 [J]. 环境科学, https://doi.org/10.13227/j.hjkx.202501061.
Sun P, Xu T, Zhong S, et al. Ozone pollution control strategies based on VOCs source apportionment [J]. Environmental Science, https://doi.org/10.13227/j.hjkx.202501061.

[37] 邢怡然,牛月圆,闫雨龙,等.典型工业城市长治市夏季大气挥发性有机物来源及对臭氧生成贡献 [J]. 中国环境科学, 2024,44(8):4202−4210.
Xing Y R, Niu Y Y, Yan Y L, et al. The sources of volatile organic compounds in the summer atmosphere and the contribution to ozone generation in Changzhi, a typical industrial city [J]. China Environmental Science, 2024,44(8):4202−4210.

[38] 丁萌萌,周健楠,常　淼,等.北京大气中醛酮化合物污染特征与来源分析 [J]. 环境科学研究, 2023,36(6):1095−1106.
Ding M M, Zhou J N, Chang M, et al. Pollution characterization and source analysis of carbonyls in ambient air in Beijing [J]. Research of Environmental Sciences, 2023,36(6):1095−1106.

[39] 孙　鹏,李媛媛,钟　声,等.基于工业源成分谱的宿迁市 VOCs 来源解析及污染特征分析 [J]. 环境科学, 2025,46(7):4032−4041.
Sun P, Li Y Y, Zhong S, et al. Source apportionment and pollution characteristics of VOCs in Suqian based on industrial source spectrum [J]. Environmental Science, 2025,46(7):4032−4041.

[40] 董　静,李顺姬,党小庆,等.关中地区典型行业 VOCs 排放源成分谱及环境影响 [J]. 中国环境科学, 2025,45(2):619−628.
Dong J, Li S J, Dang X Q, et al. Source composition spectrum and environmental impact of VOCs emission from typical industries in Guanzhong Region [J]. China Environmental Science, 2025,45(2):619−628.

[41] Sun P, Wang J, Liu Y, et al. Enhanced particulate nitrate formation in residual layer exacerbates near-surface pollution: insights from tethered airship and long-term ground measurements [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2025,130(4),doi:10.1029/2024JD042672.

[42] 李　红,彭　良,毕　方,等.我国 $PM_{2.5}$ 与臭氧污染协同控制策略研究 [J]. 环境科学研究, 2019,32(10):1763−1778.
Li H, Peng L, Bi F, et al. Strategy of coordinated control of $PM_{2.5}$ and ozone in China [J]. Research of Environmental Science, 2019, 32(10):1763−1778.

作者简介：孙　鹏(1992−),男,江苏南京人,高级工程师,博士,主要从事大气环境外场监测、光化学反应及污染物来源解析研究.发表论文 20 余篇.sunpeng123ll@163.com.