

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV
HUANJING KEXUE

■ 主办 中国科学院生态环境研究中心
■ 出版 科学出版社



2020

Vol.41 No.11
第41卷 第11期

目次

中国工业源挥发性有机物排放清单	梁小明, 孙西勃, 徐建铁, 叶代启, 陈来国 (4767)
中国水泥排放清单及分布特征	汤铃, 薛晓达, 伯鑫, 郭静, 王鹏, 翟文慧, 崔维庚, 汪寿阳, 李时蓓, 董广霞 (4776)
环境空气 PM _{2.5} 化学组分监测数据审核指标的建立: 以长三角地区为例	张哲, 乔利平, 周敏, 朱书慧, 郭会琴, 王红丽, 楼晟荣, 陶士康, 陈长虹 (4786)
南京江北新区大气颗粒物化学组分的粒径分布特征	张毓秀, 于兴娜, 刘偲嘉, 安俊琳, 张程 (4803)
郑州市 PM _{2.5} 化学组分的季节变化特征及来源解析	张剑飞, 姜楠, 段时光, 孙有昌, 郝祺, 张瑞芹 (4813)
山西大学城 PM _{2.5} 中元素特征、来源及健康风险评估	李雪梅, 牟玲, 田妹, 郑利荣, 李杨勇 (4825)
2000~2019 年中国 PM _{2.5} 时空演化特征	夏晓圣, 汪军红, 宋伟东, 程先富 (4832)
北京地区偏南风 and 偏东风条件下污染特征差异	尹晓梅, 乔林, 朱晓婉, 郭恒, 刘湘雪, 熊亚军 (4844)
基于天气背景天津大气污染输送特征分析	蔡子颖, 杨旭, 韩素芹, 姚青, 刘敬乐 (4855)
基于天气分型的上甸子大气本底站臭氧污染气象条件	吴进, 李琛, 马志强, 孙兆彬, 朱晓婉, 董璠 (4864)
基于环境空气中 VOCs 在线监测数据精准识别化工园区 VOCs 排放源	孙佳宁, 谢绍东 (4874)
芜湖市大气挥发性有机物污染特征、大气反应活性及源解析	高亢, 章慧, 刘梦迪, 赵晓宇, 吴婷, 贾其娜 (4885)
密云水库上游白河地表水质对不同空间尺度景观格局特征的响应	张微微, 李晓娜, 王超, 赵春桥, 史瑞双 (4895)
北京密云水库流域水体夏季 DOC 和 DIC 质量浓度及同位素组成初探	陈吉吉, 郭婧, 徐苏士, 陶蕾, 荆红卫 (4905)
2009~2018 年太湖湖泛强度变化及其影响因素	辛华荣, 朱广伟, 王雪松, 李骏, 陆隽 (4914)
雷州半岛岭北地区地下水水文地球化学特征	张宏鑫, 吴亚, 罗炜宇, 陈雯, 刘怀庆 (4924)
基于多环境介质氮素和同位素的滦平盆地地下水硝酸盐来源示踪	孙厚云, 卫晓锋, 贾凤超, 李多杰, 李健, 李霞, 殷志强 (4936)
会仙岩溶湿地水体金属元素分布与健康风险评价	李军, 邹胜章, 梁永平, 林永生, 周长松, 赵一 (4948)
太白山自然保护区水体 CDOM 吸收与三维荧光特征	张文浩, 赵铎霖, 王晓毓, 郝强州, 李喜梅, 高鹏程 (4958)
强降雨对平原河网区入湖河道氮、磷影响	连心桥, 朱广伟, 杨文斌, 朱梦圆, 许海 (4970)
长江流域淡水生态系统内分泌干扰物、药物和个人护理品的风险排序	苏超, 崔严 (4981)
嘉兴市城市河网区多环芳烃污染源解析及生态风险评价	杨延梅, 赵航晨, 孟睿, 何连生, 赵昊, 杜士林, 丁婷婷 (4989)
污水处理厂对漓江桂林市城区河段淡水生物中微塑料累积的影响	谢元汕, 张清科, 张滴杉, 钟山, 刘俊勇, 侯晓映, 王华, 冯静培, 梁祖鸿, 陈舞阳 (4999)
村镇生活污水处理设施抗生素浓度分布规律	卢亚楠, 郭雅妮, 王坤, 陆伟东, 王拓, 柴玉峰, 柳蒙蒙, 钟慧, 陈梅雪, 魏源送 (5008)
冬季小流域水体微生物多样性及影响因素	朱金山, 秦海兰, 孙启耀, 王宝珍, 高润霞, 郭锐利, 李武斌 (5016)
水库热分层沉积物中有机物特性及对好氧反硝化细菌脱氮的影响	王彤, 文刚, 黄廷林, 司凡, 王晨旭, 路林超, 林薇 (5027)
长三角地区 MBBR 泥膜复合污水厂低温季节微生物多样性分析	韩文杰, 吴迪, 周家中, 何强, 阚渝姣 (5037)
类群划分方法对南亚热带水库夏季浮游植物群落与环境响应关系的影响	郭芳, 顾继光, 赵剑, 余华章, 肖利娟 (5050)
基于决策树的城市黑臭水体遥感分级	李玲玲, 李云梅, 吕恒, 徐杰, 杨子谦, 毕顺, 许佳峰 (5060)
纳米零价铁强化微生物电催化-厌氧膜生物组合反应器抗膜污染能力及其调控机制	潘阳, 牛承鑫, 支忠祥, 王建辉, 陆雪琴, 戴金鑫, 甄广印, 孙彤彤, 康娜英 (5073)
温度和基质浓度对厌氧氨氧化工艺中 N ₂ O 释放的影响	王丝可, 于恒, 左剑恶 (5082)
以污泥发酵液与尾水混合液为补给碳源的 A ² /O 污染物去除特性	荣懿, 邵劲博, 于优城, 石炬, 金鹏康 (5089)
不同停曝比对连续流亚硝化颗粒污泥运行的影响	张杰, 劳会妹, 李冬, 魏子清 (5097)
中温厌氧消化与高温厌氧消化对污泥重金属风险及稳定性的影响	田中科, 王芬, 闫钊 (5106)
基于 PMF 模型及地统计的土壤重金属健康风险定量评价	韩琳, 徐夕博 (5114)
再开发利用工业场地土壤重金属含量分布及生态风险	沈城, 刘馥雯, 吴健, 黄沈发, 王敏, 黄波涛 (5125)
有机改性蒙脱土对苯的吸附机制和影响因子	侯静雯, 施维林, 高娟 (5133)
硫酸亚铁和硝酸铁施用对根际土壤-水稻系统中镉运移的影响	李义纯, 陈勇, 唐明灯, 李林峰, 林晓扬, 王艳红, 许迪豪, 艾绍英 (5143)
叶用油菜和孔雀草间作对植物生长和镉累积的影响	闫秀秀, 徐应明, 王林, 陶雪莹, 孙约兵, 梁学峰 (5151)
重金属固定细菌调控土壤铁氧化物阻控小麦 Cd 吸收效应	王晓宇, 韩辉 (5160)
油-稻轮作模式下修复材料对土壤铜修复的持续性影响	赵颖颖, 李虹川, 胡宏祥, 薛中俊, 刘娜, 吴孟君 (5168)
氮肥使用对北方夏玉米季氨挥发的影响	张薇, 倪邦, 许秀春, 杨轩, 孟凡乔 (5176)
生物炭影响下土壤呼吸温度敏感性及其细菌群落结构的变化	曹坤坤, 张沙沙, 胡学玉, 黄洋 (5185)
铜尾矿白羊草重金属含量对叶际和根际真菌群落的影响	贾彤, 郭婷艳, 王瑞宏, 柴宝峰 (5193)
典型水环境微生物源异嗅物研究进展	张海涵, 苗雨甜, 黄廷林, 刘凯文, 刘祥, 黄鑫, 杨尚业, 司凡, 李程遥 (5201)
广告: 国家微生物科学数据中心	(前插)
《环境科学》征订启事 (4785) 《环境科学》征稿简则 (4947) 信息 (5015, 5124, 5132)	

2000 ~ 2019 年中国 PM_{2.5} 时空演化特征

夏晓圣^{1,2}, 汪军红³, 宋伟东^{1,2,4}, 程先富^{1,2*}

(1. 安徽师范大学地理与旅游学院, 芜湖 241002; 2. 安徽自然灾害过程与防控研究省级实验室, 芜湖 241002; 3. 霍山县水土保持试验站, 六安 237266; 4. 中海环境科技(上海)股份有限公司, 合肥 230001)

摘要: 本研究利用 PM_{2.5} 实测数据、MERRA-2 AOD 与 PM_{2.5} 再分析数据、气象因子和夜间灯光等数据, 基于极限梯度提升、梯度提升、随机森林模型和 Stacking 模型融合技术提出了 PM_{2.5} 浓度组合估算模型。在此基础上, 从年、季、月尺度综合分析了中国 2000 ~ 2019 年中国 PM_{2.5} 时空变化特征。结果表明: ①组合模型实现了中国 2000 年以来 PM_{2.5} 逐月浓度的可靠估算。②2000 ~ 2019 年中国 PM_{2.5} 年均浓度呈快速增加→保持稳定→显著下降的趋势, 2007 年和 2014 年分别为增加到稳定和稳定到下降的转折点。PM_{2.5} 月均浓度呈先降后升的“U”型趋势, 最小值在 7 月, 最大值在 12 月。③自然地理条件和人类活动奠定了中国 PM_{2.5} 浓度年度空间格局变化的基础, 气象条件的逐月变化决定了 PM_{2.5} 浓度月度空间格局变化的主基调。④2000 ~ 2014 年中国 PM_{2.5} 浓度的标准差椭圆中心向东移动, 2014 ~ 2018 年椭圆中心向西移动。1 ~ 3 月椭圆中心向西移动, 4 ~ 9 月椭圆中心先北移后南移, 9 ~ 12 月椭圆中心向东移动。

关键词: PM_{2.5}; 组合估算模型; 多时间尺度; 时空演化特征; 中国

中图分类号: X513 **文献标识码:** A **文章编号:** 0250-3301(2020)11-4832-12 **DOI:** 10.13227/j.hjxx.202004108

Spatio-temporal Evolution of PM_{2.5} Concentration During 2000-2019 in China

XIA Xiao-sheng^{1,2}, WANG Jun-hong³, SONG Wei-dong^{1,2,4}, CHENG Xian-fu^{1,2*}

(1. College of Geography and Tourism, Anhui Normal University, Wuhu 241002, China; 2. Provincial Key Laboratory of Natural Disaster Process and Prevention, Anhui Province, Wuhu 241002, China; 3. Huoshan Solid and Water Conservation and Experimental Station, Lu'an 237266, China; 4. China Shipping Environment Technology (Shanghai) Co., Ltd., Hefei 230001, China)

Abstract: An ensemble estimation model of PM_{2.5} concentration was proposed on the basis of extreme gradient boosting, gradient boosting, random forest model, and stacking model fusion technology. Measured PM_{2.5} data, MERRA-2 AOD and PM_{2.5} reanalysis data, meteorological parameters, and night light data sets were used. On this basis, the spatiotemporal evolution features of PM_{2.5} concentration in China during 2000-2019 were analyzed at monthly, seasonal, and annual temporal scales. The results showed that: ① Monthly PM_{2.5} concentration in China from 2000-2019 can be estimated reliably by the ensemble model. ② PM_{2.5} annual concentration changed from rapid increase to remaining stable and then changed to significant decline from 2000-2019, with turning points in 2007 and 2014. The monthly variation of PM_{2.5} concentration showed a U shape that first decreased then increased, with the minimum value in July and the maximum value in December. ③ Natural geographic conditions and human activities laid the foundation for the annual spatial pattern change of PM_{2.5} concentration in China, and the main trend of monthly spatial pattern change of PM_{2.5} concentration was determined by meteorological conditions. ④ At an annual scale, the national PM_{2.5} concentration average center of standard deviation ellipse moved eastward from 2000-2014 and westward from 2014-2018. At a monthly scale, the average center shifted to the west from January to March, moved northward then southward from April to September, and shifted to the east from September to December.

Key words: PM_{2.5}; ensemble model estimating PM_{2.5} concentration; multiple time scales; spatio-temporal evolution; China

中国是世界上最大的发展中国家,随着工业化和城镇化的快速发展,大气环境面临着人口增长和经济发展的双重压力。据报道,2013 ~ 2017 年 PM_{2.5} 长期暴露造成了中国每年超过 100 万人的超额死亡,占总死亡人数的 10% 以上^[1]。PM_{2.5} 逐渐演变为中国大气污染的重点和难点,引起社会公众和学者的广泛关注^[2]。

就中国而言,2012 年国家大气环境监测系统才将 PM_{2.5} 浓度值纳入监测指标体系,此前全国性 PM_{2.5} 监测处于空白(无公开历史数据)。由于缺乏长期和连续的监测数据,以站点实测数据为主的 PM_{2.5} 时空分布研究一般面临时间序列短、空间范围不连

续的困境,更多地考虑多时间尺度(年、季、月、天和小时等)和一次重污染过程^[3,4]。Ye 等^[5]基于 2016 年全国 338 个城市 PM_{2.5} 浓度小时监测数据,发现 PM_{2.5} 浓度小时变化总体呈双峰分布,逐日变化呈“U”型分布。宓科娜等^[6]探讨了 2013 ~ 2016 年长三角 41 个地级以上城市 PM_{2.5} 时空格局演变特征,发现长三角 PM_{2.5} 污染情况已经得到显著改善,但超过三分之二的地区仍存在不同程度超标现象,呈现

收稿日期: 2020-04-12; 修订日期: 2020-05-22

基金项目: 国家自然科学基金项目(41271516)

作者简介: 夏晓圣(1994 ~),男,硕士研究生,主要研究方向为大气环境遥感,E-mail: xiaoshengxia19@163.com

* 通信作者,E-mail: xianfucheng@sina.com

“西北高、东南低”的污染格局。

目前,遥感数据和机器学习已被广泛应用于 PM_{2.5} 浓度估算和时空变化研究^[7~9]。NASA 通过融合遥感监测、模式模拟和站点实测数据,公布了 1998~2016 年全球 PM_{2.5} 浓度栅格数据集^[10]。基于 NASA 反演的 PM_{2.5} 数据,周亮等^[2]结合 GIS 空间分析、重心模型和空间自相关等方法,系统分析了中国 2000~2011 年 PM_{2.5} 浓度年度时空演化特征;韩婧等^[11]研究了中国 2000~2015 年 PM_{2.5} 浓度的时空分布特征及其城乡差异。但该数据集的最新数据日期为 2016 年,且只提供年均 PM_{2.5} 浓度,时间尺度单一(除美国外)。Chen 等^[12]基于 2014~2016 年 PM_{2.5} 实测数据与 2005~2016 年 AOD、气象因子和土地利用等数据建立随机森林模型,估算中国 2005~2016 年日尺度 PM_{2.5} 浓度,并指出 2008 年为中国 PM_{2.5} 浓度从上升到下降的转折点。时燕等^[13]综合考虑 AOD 与 PM_{2.5} 关系的季节性和区域性差异,构建了基于支持向量回归机与思维进化算法优化后的 BP 神经网络的两阶段 PM_{2.5} 浓度组合估算模型。在此基础上,分析了 2000~2017 年中国 PM_{2.5} 浓度的时空变化过程。但上述研究由于缺乏 2013 年之前的 PM_{2.5} 历史浓度数据,对估算的 PM_{2.5} 历史浓度的验证不足。Xiao 等^[14]基于空间聚类方法将中国划分为 7 个稳定区域,分区构建广义可加(GAM)、XGBoost 和随机森林模型,随后利用 GAM 模型集成上述模型结果,得到 2008~2016 年逐日 PM_{2.5} 浓度估算。Xue 等^[8]以遥感、化学传输模型和地面监测数据作为机器学习模型的输入数据,得到 2000~2016 年中国逐日、月和年的 PM_{2.5} 浓度可靠估算。但上述研究多从年、季尺度分析中国 PM_{2.5} 浓度的时空演化特征,缺乏月尺度的综合分析。

本文以 2014 年 6 月至 2019 年 9 月的 PM_{2.5} 站点实测数据、2000 年 1 月至 2019 年 9 月 MERRA-2 AOD 与 PM_{2.5} 再分析数据、气象因子(气压、边界层高度、相对湿度、气温、径向风、纬向风)和夜间灯光等为基础数据集,构建了基于极限梯度提升(extreme gradient boosting, XGB)、梯度提升(gradient boosting, GB)、随机森林(random forest, RF)模型和 Stacking 集成技术的 PM_{2.5} 浓度组合估算模型。在此基础上,本研究实现了中国 2000 年 1 月至 2019 年 9 月 PM_{2.5} 逐月浓度的可靠估算,并综合分析了中国 PM_{2.5} 浓度的时空演化特征。本研究结果不仅为中国大气污染风险评估和流行病学研究提供数据基础,也有利于辅助验证大气污染治理和环保政策措施的实施效果,以期为大气治理提供科学依据和切实可

行的政策建议。

1 材料与方法

1.1 数据来源

1.1.1 PM_{2.5} 站点数据

本文收集了 2014 年 6 月至 2019 年 9 月 PM_{2.5} 浓度小时监测数据,共计 1465 个空气质量地面监测站。如图 1 所示,PM_{2.5} 地面监测站呈东多西少、南多北少的分布特点。此外,本研究还下载了美国驻华外交机构监测的 PM_{2.5} 逐小时数据用于评估模型估算的 PM_{2.5} 历史浓度的可靠性,分别为沈阳(2013~2017 年)、北京(2008~2017 年)、上海(2011~2017 年)、成都(2012~2017 年)和广州(2011~2017 年),数据来源于美国驻华大使馆。

1.1.2 MERRA-2 PM_{2.5} 再分析数据

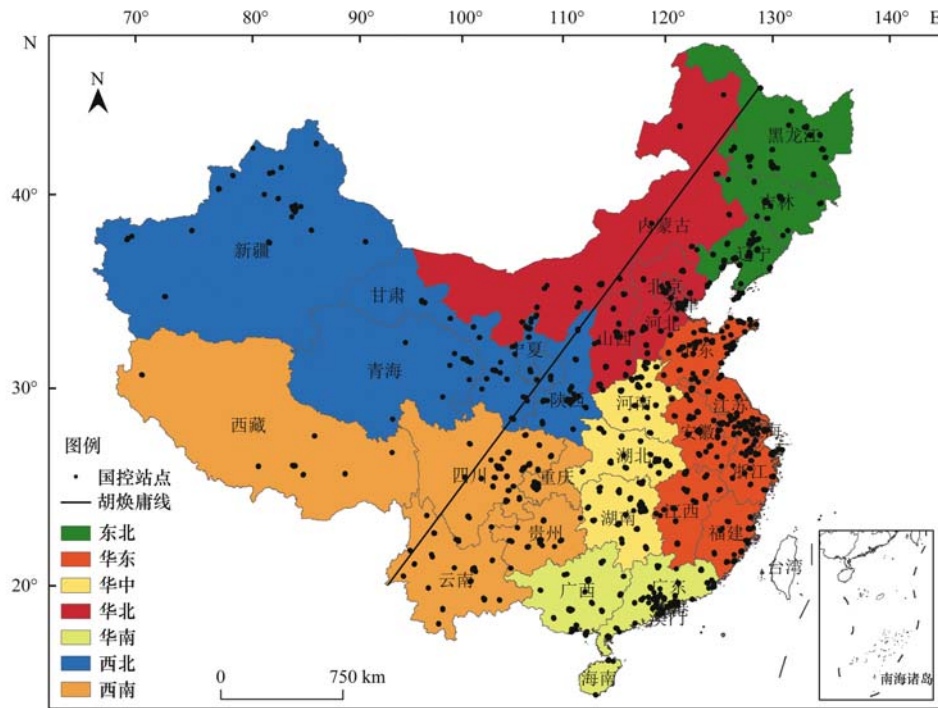
MERRA-2 PM_{2.5} 再分析数据集是 NASA 戈达德地球科学数据和信息服务中心在融合地面实测、遥感监测和模式模拟的基础上生成的 PM_{2.5} 同化数据集,能较好地重现大时空尺度下的 PM_{2.5} 分布^[15]。有研究表明,在大尺度的 PM_{2.5} 估算模型中, MERRA-2 PM_{2.5} 的变量重要性高于 AOD,是 PM_{2.5} 估算模型的重要估算因子^[16]。因此,本文提取 2000 年 1 月至 2019 年 9 月的 MERRA-2 PM_{2.5} 逐月数据,空间分辨率为 $0.5^\circ \times 0.625^\circ$ (纬度 $\times$ 经度,下同)。

1.1.3 MERRA-2 AOD 数据

通过建立 PM_{2.5} 与 AOD 间的统计关系是当前获取地面 PM_{2.5} 浓度的重要研究方法^[10]。得益于连续的时空覆盖, MERRA-2 AOD 可以估算全时空覆盖的 PM_{2.5} 浓度数据^[17]。经验证, MERRA-2 AOD 能提供与 MODIS AOD 相类似的产品数据精度^[18],且月尺度的 MERRA-2 AOD 的空间分辨率高于同类型的 MODIS AOD 数据(MOD08 和 MYD08,空间分辨率为 $1^\circ \times 1^\circ$)。

1.1.4 气象数据

气象数据(如温度、风速、风向、边界层高度和相对湿度)能够有效提高 PM_{2.5}-AOD 关联模型的精度^[19]。高低空环流的配置和形势通过影响大气的稳定性和扩散能力深刻影响 PM_{2.5} 浓度,而以往的研究较少考虑不同高度气象要素及其垂直变化对 PM_{2.5}-AOD 关联模型的影响^[20]。因此,本文从欧洲中期天气预报中心(ECMWF)最新发布的 ERA5 再分析数据集中获取 2000 年 1 月至 2019 年 9 月的 10 种空间分辨率为 $0.25^\circ \times 0.25^\circ$ 的逐月气象数据作为 PM_{2.5} 浓度估算模型的预测因子,包括单层的气象要素,如表面气压(PS)和边界层高度(BLH),以及



中国香港、澳门和中国台湾站点资料暂缺,下同

图1 中国 PM_{2.5} 监测站点分布示意

Fig. 1 Distribution of PM_{2.5} monitoring stations in China

1 000 hPa 和 500 hPa 的相对湿度 (RH_1 、 RH_5)、温度 (T_1 、 T_5)、径向风 (U_1 、 U_5) 和纬向风 (V_1 、 V_5)。

1.1.5 DEM 和夜间灯光数据

地形对 PM_{2.5} 浓度的影响机制主要表现在以下 2 个方面:一是通过影响大气水平扩散能力来影响 PM_{2.5} 浓度,二是通过影响人口分布和人类活动强度来间接影响 PM_{2.5} 空间分布^[21]。DEM 数据来自于中国科学院资源环境科学数据中心 (<http://www.resdc.cn/>),空间分辨率为 1 km × 1 km。

夜间灯光(LN)能较好地表征人类活动强度和能源消费状况,是影响 PM_{2.5} 浓度的重要指标因子^[22]。2013 年 DMSP/OLS 夜间灯光(LN)数据来源于 NASA,网址为 <https://ngdc.noaa.gov/eog/dmsp/downloadV4Composites.html>,空间分辨率为 1 km。

1.1.6 数据处理

(1)严格按照《环境空气质量标准》(GB 3095-2012)的标准,将 PM_{2.5} 小时实测数据合并为月尺度数据。在剔除 PM_{2.5} 小时实测数据的缺失值、异常值的基础上,计算日均 PM_{2.5} 浓度(每日多于 20 h)和月均 PM_{2.5} 浓度(2 月多于 25 d,其余月份多于 27 d)。

(2)将所有栅格数据统一投影至 China-Lambert 投影,并重采样至 20 km 分辨率。

(3)将全国划分为 20 km × 20 km 网格。

(4)以网格中心点的坐标逐月批量提取 AOD、

气象因子和夜间灯光等估算因子。

(5)利用 ArcGIS 的空间连接工具将 PM_{2.5} 监测站点匹配至对应位置的网格,将坐落于同一网格的所有监测站点的 PM_{2.5} 浓度均值合并,称之为网格 PM_{2.5} 浓度。

(6)依次合并各月的网格 PM_{2.5} 浓度与估算因子,完成估算因子与 PM_{2.5} 数据的时空匹配,得到模型训练集。

1.2 研究方法

1.2.1 组合模型构建

在 PM_{2.5} 浓度估算研究中,XGB 和 RF 等模型的精度较高,组合模型通过集成多个相互独立的模型,能显著提升模型的精度和稳健性能^[7,13,14]。因此,本研究利用 Stacking 模型融合技术^[23]集成 XGB^[24]、GB^[25] 和 RF^[26] 模型,提出 PM_{2.5} 浓度组合估算模型。组合模型的框架如图 2 所示,具体步骤如下:①在数据预处理与时空匹配的基础上,选取合适的估算因子。②将全部数据按 8:2 的比例划分为训练集和测试集。③在训练集上以 5 折交叉验证的方式,依次训练 XGB、GB 和 RF 模型作为基模型。④以线性回归作为元模型,组合 XGB、GB 和 RF 模型的预测结果。

1.2.2 模型验证

PM_{2.5} 历史浓度估算的实质在于利用当前社会发展背景下有限的数据和经验去估算历史社会发展背景下的 PM_{2.5} 浓度,因此,如何衡量模型估算 PM_{2.5}

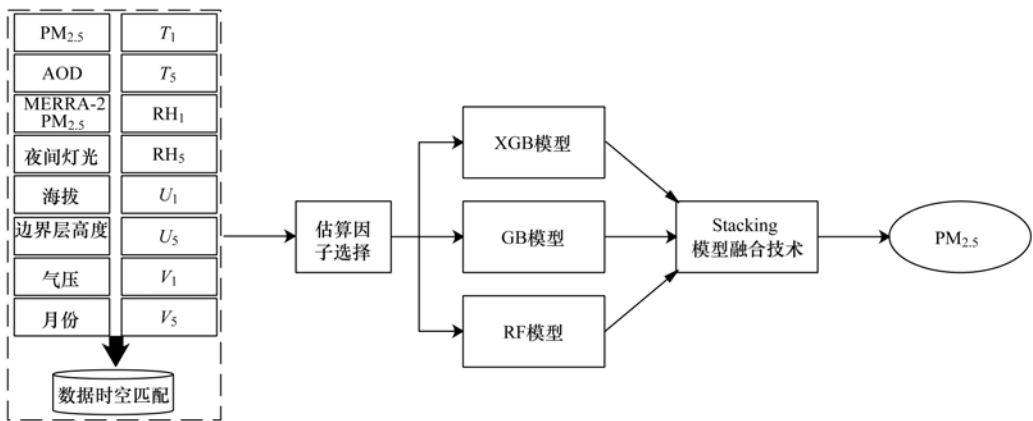


图 2 PM_{2.5} 组合估算模型框架示意

Fig. 2 Illustration of ensemble model for estimating PM_{2.5} concentration

历史浓度的可靠性十分重要,而普通交叉验证显然无法胜任.

本研究采用年际交叉验证的方法评估模型估算的 PM_{2.5} 历史浓度的可靠性,其基本原理为随机选择某一年份的数据作为测试集(如 2014 年),其他年份的数据作为训练集(2015 ~ 2019 年),测试基于 2015 ~ 2019 年数据训练的模型在 2014 年的表现,以此评估模型估算非建模时段的 PM_{2.5} 浓度的可靠性.随后逐一将其他年份的数据作为测试集(2015 ~ 2019 年),重复以上过程^[8].模型精度的评估指标为决定系数(R^2)和均方误差(RMSE).

1.2.3 标准差椭圆分析

标准差椭圆(standard deviation ellipse, SDE)是一种通过计算离散点集的平均中心与其他点之间的标准距离来同时测量一组离散点的方向和分布的经典算法^[27].能够得到包含大部分元素的椭圆,以及主/次轴、中心点和方位角等其他特征,可以表达地理空间分布的总体特征.因此,绘制中国 PM_{2.5} 年均

浓度的标准差椭圆,通过比较这些椭圆随时间推移的变化,可以形象地跟踪中国 PM_{2.5} 污染的年际变化和揭示 PM_{2.5} 污染空间动态过程的总体特征.

2 PM_{2.5} 历史浓度估算

2.1 模型估算因子的选择

在 PM_{2.5} 估算模型中,选择合适的估算因子是模型成功的重要前提条件.本文估算因子的选择遵循以下条件:①估算因子有明确的物理和化学意义,在其它研究中至少有两次引用.②控制模型估算因子的数量,尽可能避免因子间的变量共线性,降低模型的过拟合风险.参考已有研究,本研究初步选取 MERRA-2 PM_{2.5}、AOD、BLH、PS、RH₁、RH₅、 T_1 、 T_5 、 U_1 、 U_5 、 V_1 、 V_5 、DEM、LN 和月份作为 PM_{2.5} 浓度估算模型的潜在估算因子.

训练数据集的描述性统计如表 1 所示:2014 年 6 月至 2019 年 9 月 PM_{2.5} 月均浓度的平均值为 $44.78 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,最小值为 $3.30 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,最大值为

表 1 描述性统计

Table 1 Descriptive statistics

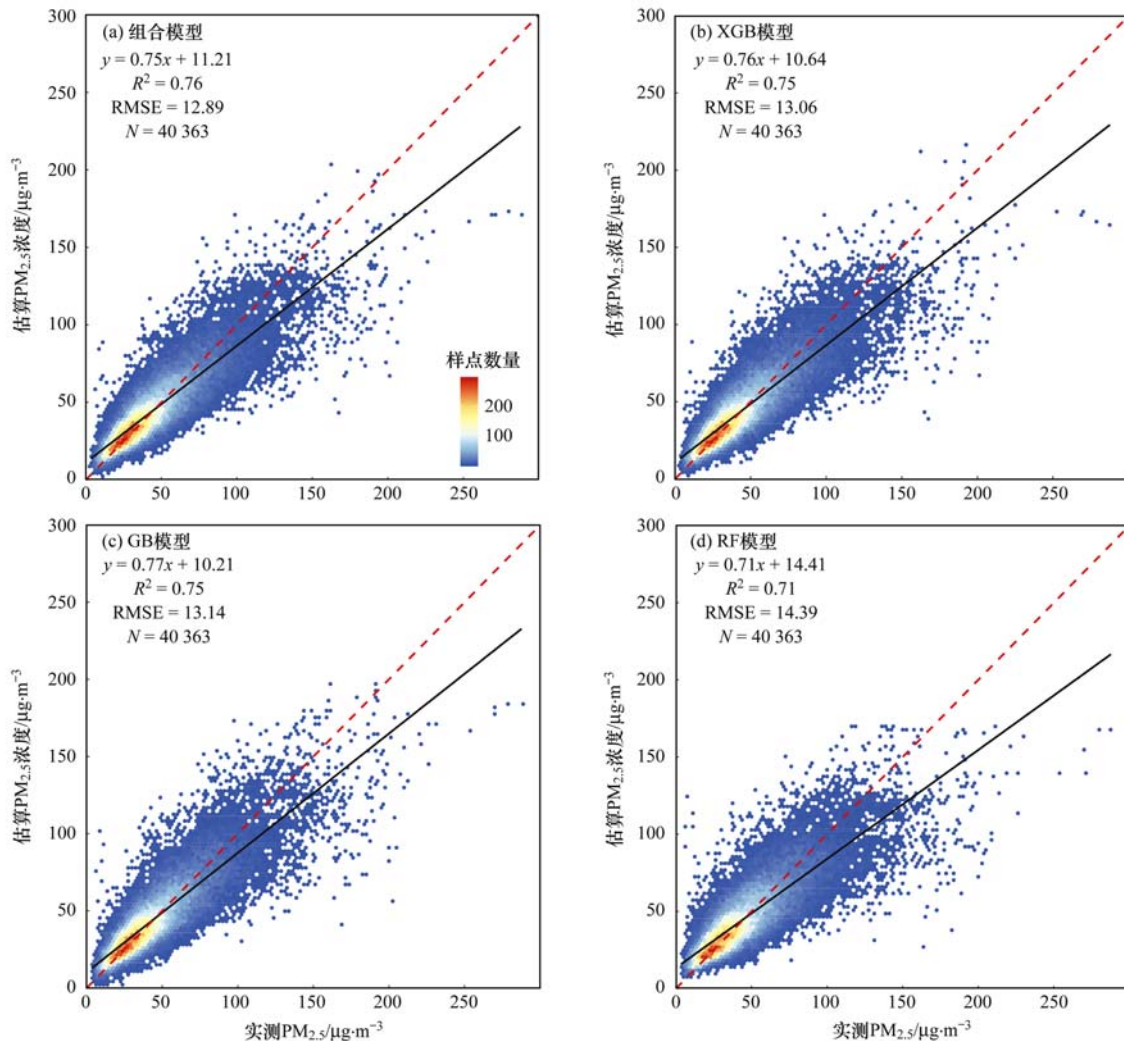
变量	缩写	最小值	平均值	最大值	相关系数	偏相关系数	VIF
PM _{2.5} /μg·m ⁻³	—	3.30	44.78	287.71	—	—	—
MERRA-2 PM _{2.5} /μg·m ⁻³	PM	1.34	38.67	193.14	0.60	0.44	4.41
气溶胶光学厚度	AOD	0.01	0.45	1.31	0.29	-0.08	4.80
气压/Pa	PS	57 321	95 811	103 206	0.27	-0.07	40.33
边界层高度/m	BLH	25.45	483.39	1 901.08	-0.27	-0.15	2.26
1 000 hPa 相对湿度/%	RH ₁	15.41	65.48	95.10	-0.30	-0.17	5.35
500 hPa 相对湿度/%	RH ₅	6.89	45.03	90.59	-0.26	-0.06	1.60
1 000 hPa 温度/K	T_1	252.70	291.10	313.80	-0.57	-0.23	20.37
500 hPa 温度/K	T_5	230.70	261.00	274.00	-0.50	0.08	20.14
1 000 hPa 径向风/m·s ⁻¹	U_1	-6.87	-0.30	4.57	0.07	-0.03	1.89
500 hPa 径向风/m·s ⁻¹	U_5	-5.18	12.86	32.57	0.46	-0.12	3.49
1 000 hPa 纬向风/m·s ⁻¹	V_1	-7.50	-0.19	7.79	-0.19	0.07	1.66
500 hPa 纬向风/m·s ⁻¹	V_5	-13.74	-0.78	8.37	-0.31	-0.02	2.84
海拔/m	DEM	0.00	452.40	4 529.00	-0.22	-0.04	37.20
夜间灯光	LN	0.00	53.94	63.00	0.13	0.14	1.07
月份	—	1	—	12	-0.11	-0.02	1.37

$287.71 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. $\text{PM}_{2.5}$ 与 PM 、 U_5 、 AOD 、 PS 、 LN 和 U_1 呈正相关,与 T_1 、 T_5 、 V_5 、 RH_1 、 RH_5 、 BLH 、 DEM 和 V_1 呈负相关. $\text{PM}_{2.5}$ 与 PM 、 T_1 、 T_5 和 U_5 等因子的相关性较强,与 U_1 、 LN 和 V_1 等因子的相关性较弱. 结合偏相关系数和逐步回归结果,发现剔除 DEM 和 T_5 后,其他因子的 VIF 值均小于 5,故除 DEM 和 T_5

外,其它因子均入选 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度组合估算模型.

2.2 模型精度验证

年际交叉验证结果表明,与单个模型相比,组合模型的精度最高,XGB 和 GB 模型次之,RF 模型精度最低(图 3). 这表明组合模型估算的 $\text{PM}_{2.5}$ 历史浓度的可信度最高.



红色虚线是斜率为 1 的参考线,黑色实线为拟合直线

图 3 年际交叉验证散点图

Fig. 3 Scatter plots of annually-iterated cross-validation

此外,本研究利用美国外交设施监测的 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度数据集作为测试集(2008 ~ 2017 年),测试模型的历史精度,称之为直接验证. 如图 4 所示,模型直接验证的精度与模型的年际交叉验证精度基本相当. 与单个模型相比,组合模型的表现最佳,其次为 XGB 和 GB 模型,RF 模型的精度最低.

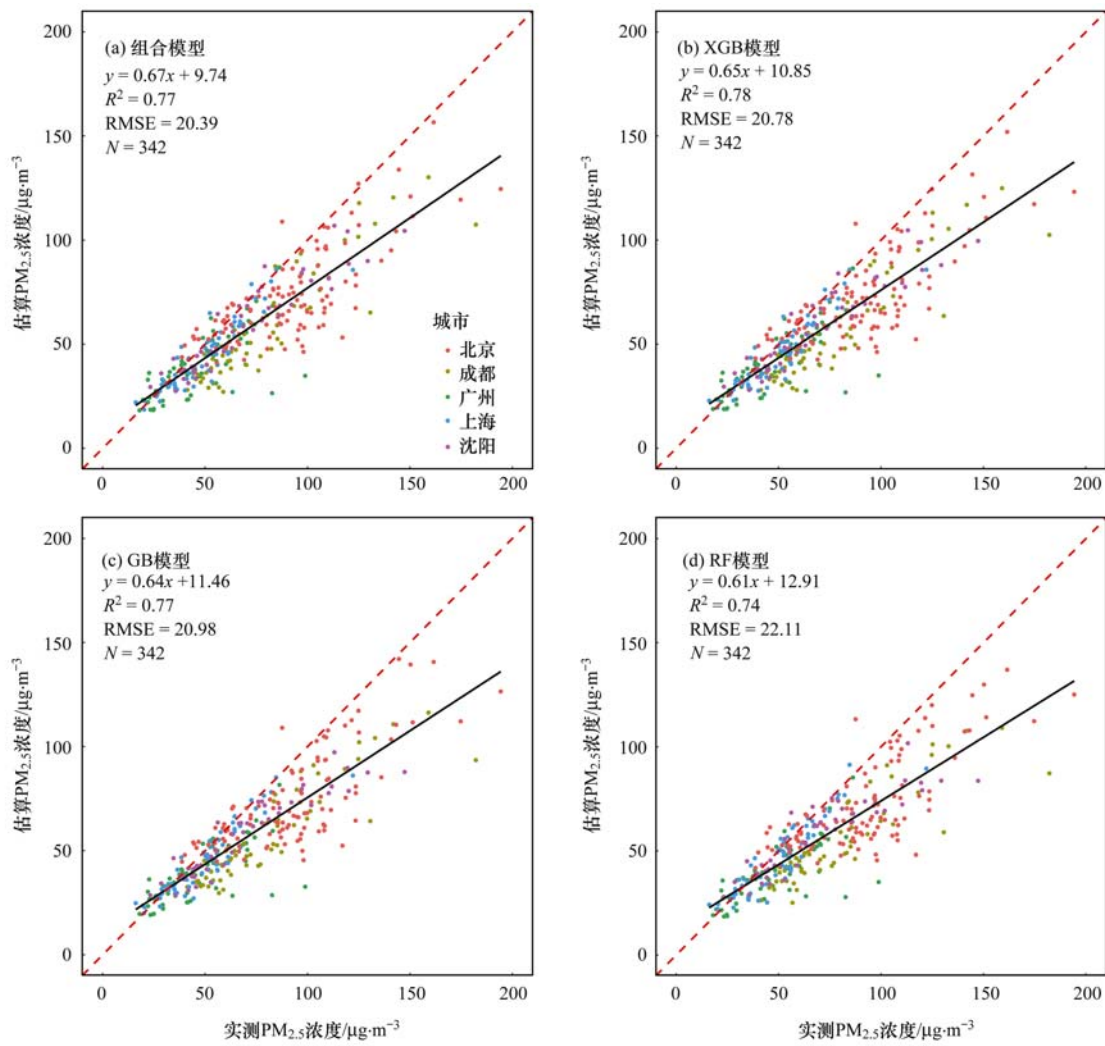
3 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度时间变化特征

在完成模型的精度验证之后,将 2000 年 1 月至 2019 年 9 月的估算因子代入组合模型,用以估算中国 2000 年 1 月至 2019 年 9 月的 $\text{PM}_{2.5}$ 逐月浓度. 其

中,当计算 2019 年 $\text{PM}_{2.5}$ 年均浓度时,选用 2018 年 10 ~ 12 月的数据进行填补.

3.1 年度变化

2000 年以来中国 $\text{PM}_{2.5}$ 年均浓度呈倒“U”型分布,先后于 2007 年和 2014 年达至峰值(图 5). 2000 ~ 2007 年 $\text{PM}_{2.5}$ 年均浓度以 $0.77 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{a})^{-1}$ 的速率显著增长,处于增长阶段. 2008 ~ 2013 年 $\text{PM}_{2.5}$ 年均浓度普遍较高且波动较小,变化速率为 $-0.16 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{a})^{-1}$,处于高值平稳阶段. 2014 年之后, $\text{PM}_{2.5}$ 年均浓度以 $-0.95 \mu\text{g}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{a})^{-1}$ 的速率呈显著下降趋势,与 $\text{PM}_{2.5}$ 实测数据的观测趋势一致,处



红色虚线是斜率为1的参考线,黑色实线为拟合直线

图 4 直接验证散点图

Fig. 4 Scatter plots of direct validation

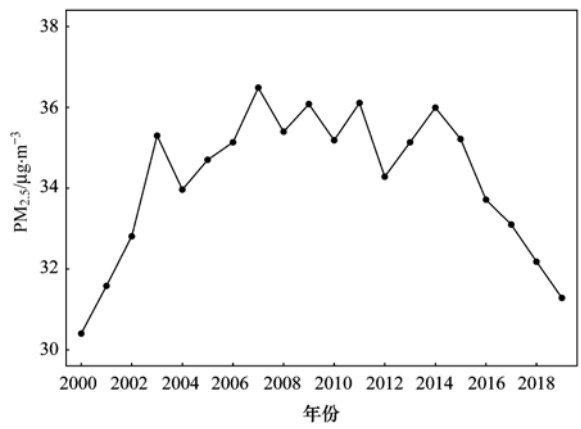


图 5 2000 ~ 2019 年中国年均 PM_{2.5} 浓度变化曲线

Fig. 5 Trend of PM_{2.5} concentration changes over China during 2000-2019

于快速下降阶段. 2007 年为 PM_{2.5} 年均浓度从上升到平稳的转折点, 与全国生态文明建设、产业结构升级调整、能源利用效率提升等一定程度抑制了颗粒物排放有关^[2]. 2013 年中国发布了《大气污染防

治行动计划》, 开始实施严格的污染控制措施, PM_{2.5} 浓度随之迅速降低^[1].

3.2 月度变化

由图 6 可知, 中国 PM_{2.5} 浓度总体呈冬春高夏秋低的季节性规律, 具体表现为冬季 > 春季 > 秋季 >

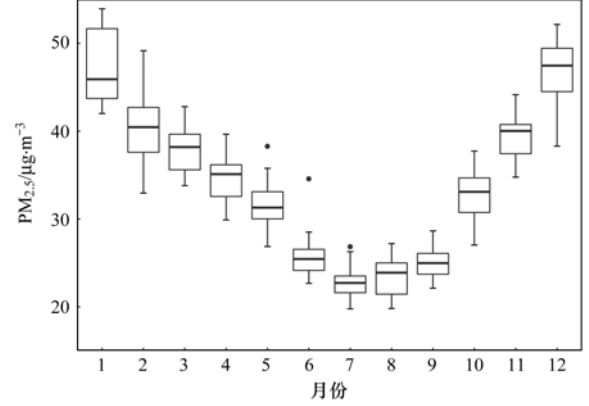


图 6 2000 年 1 月至 2019 年 9 月中国 PM_{2.5} 月均浓度变化特征

Fig. 6 PM_{2.5} monthly concentration change in China from 2000-01 to 2019-09

夏季, $\text{PM}_{2.5}$ 浓度平均值从大到小依次为 44.37、34.81、32.44 和 24.07 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 这与 Chen 等^[12] 的估算结果基本一致(其估算的 2005~2016 年中国 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度四季均值依次为 31.0、21.6、29.1 和 40.6 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)。月尺度上, $\text{PM}_{2.5}$ 浓度值呈“U”型分布, 1 月和 12 月为峰值, 7 月为谷值。从 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度值波动来看, 12 月的波动幅度最大, 7 月的波动幅度最小。

4 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度空间变化特征

4.1 年度变化

2000~2018 年中国 $\text{PM}_{2.5}$ 多年平均浓度的冷热点分析如图 7 所示: ① $\text{PM}_{2.5}$ 年均浓度在胡焕庸线两侧存在显著差异, 胡焕庸线以东地区为 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度高

值区, 主要分布在华北平原、汾渭盆地、长江中下游平原和四川盆地。胡焕庸线以西地区主要为 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度低值区, 主要分布在内蒙古高原、新疆北部、青藏高原和云贵高原等地。南疆盆地地处中国最大的沙漠塔克拉玛干沙漠, 植被稀少、气候干旱, 多风沙天气, 导致该区的 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度极高^[11]。② $\text{PM}_{2.5}$ 浓度热点集中分布在胡焕庸线以东地区, 该区域人口密集、经济发达, 工农业生产、交通运输、能源燃烧等排放大量的人为气溶胶^[2]。胡焕庸线以西的南疆盆地和内蒙古高原西部等地区, 由于戈壁沙漠分布密集, 沙尘气溶胶排放量大, 形成 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度热点^[13]。③ $\text{PM}_{2.5}$ 浓度冷点主要分布在胡焕庸线以西地区, 该区域地形以山地、高原为主, 人口稀疏, 经济发展相对滞后, 人为气溶胶排放较少。

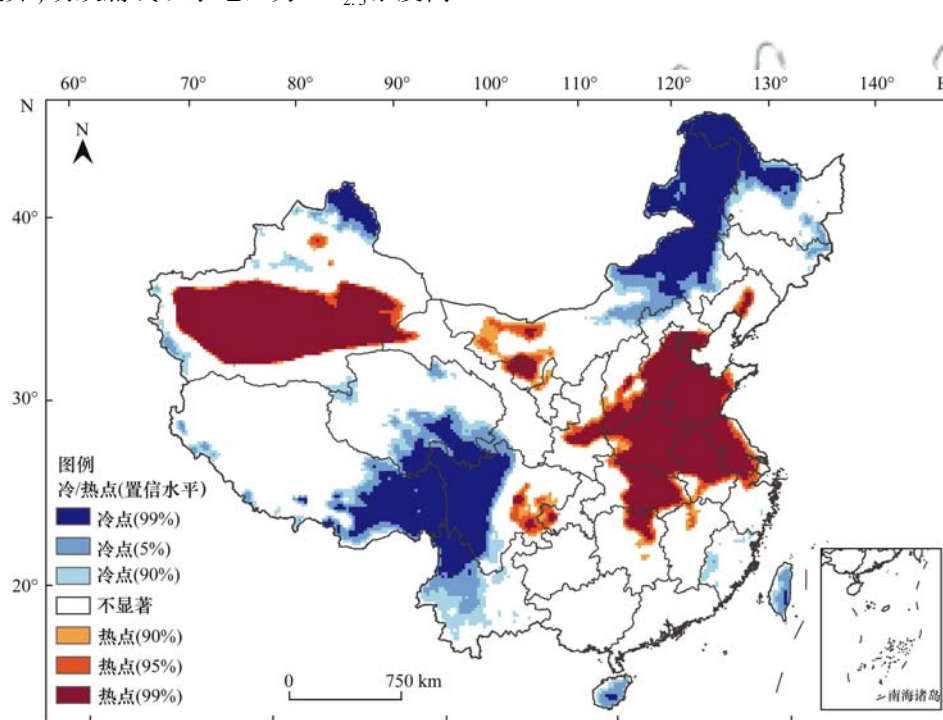


图 7 2000~2018 年中国 $\text{PM}_{2.5}$ 多年均值冷热点分析

Fig. 7 Analysis of cold hot spot of $\text{PM}_{2.5}$ annual means during 2000-2018

基于标准差椭圆分析, 图 8 揭示了中国 $\text{PM}_{2.5}$ 年均浓度的时空格局演变趋势。全国 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度的标准差椭圆中心分布在青海省和甘肃省交界地区, 椭圆中心格局变动明显。2003 年椭圆中心变动异常, 椭圆中心先快速向东北方向移动 80 km, 随后又突然向西南方向移动 84 km。这可能与 2003 年东北大兴安岭森林大火排放大量烟雾和灰尘有关, 致使大兴安岭及其周边地区 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度先急剧上升后急剧下降, 从而导致了 2002~2004 年椭圆中心的异常移动^[28]。除 2003 年外, 2000~2014 年椭圆中心呈东移态势。其中, 2000~2002 年椭圆

中心集中分布在西北一侧, 2004~2014 年椭圆中心主要分布在东南一侧。2014~2018 年椭圆中心快速西移, 年均移动距离为 39 km。这主要与东部地区产业结构升级、环保政策力度加大和产业转移(东部向中西部)等密切相关, 且与周亮等^[2] 的研究结果一致。

标准差椭圆的主轴长大致随时间呈增加趋势, 从 2000 年的 1 702 km 增长到 2018 年的 1 722 km。除 2003 年外, 标准差椭圆的次轴长大致呈倒“U”型分布, 2014 年最大为 1 049 km, 2001 年最小为 1 002 km。结合主、次轴长的年际变化, 发现 2003 年中国

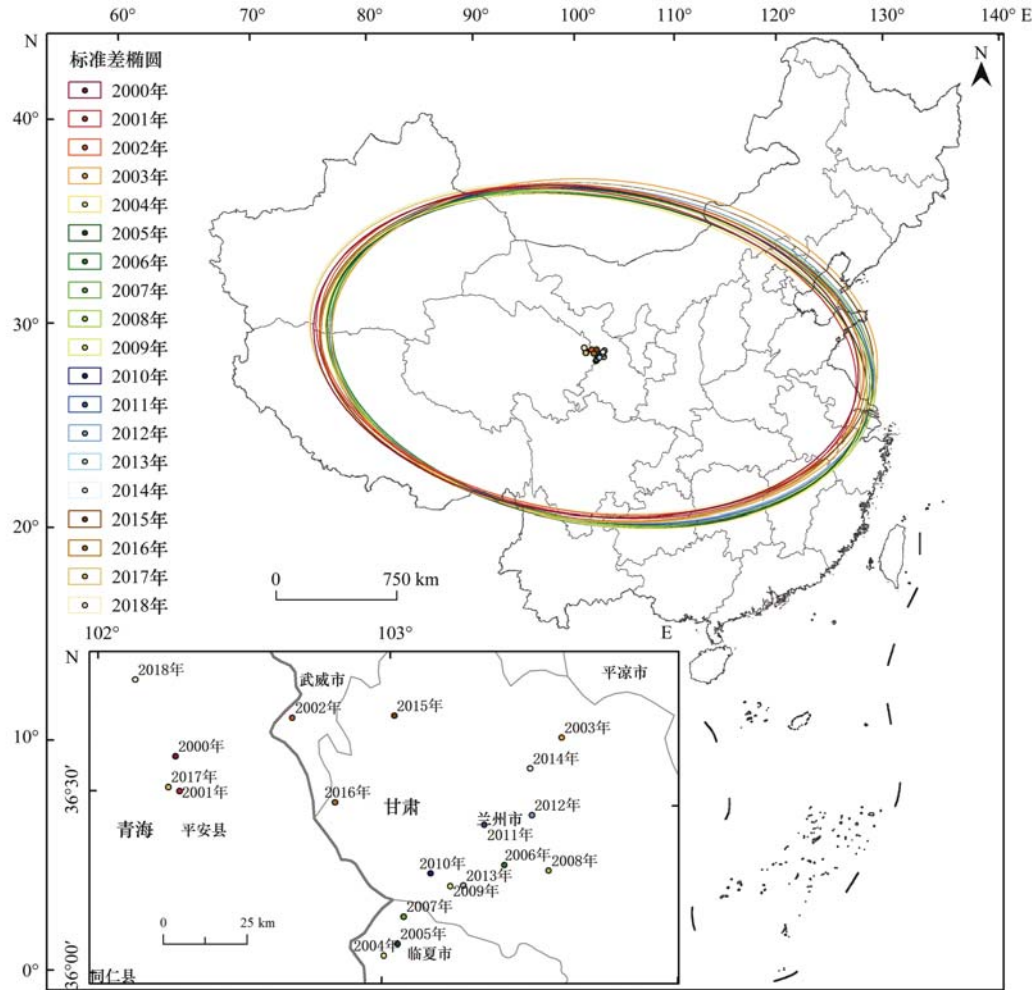


图 8 2000 ~ 2018 年中国 PM_{2.5} 年均浓度的标准差椭圆分析

Fig. 8 Standard deviation ellipse analysis of PM_{2.5} annual concentrations in China during 2000-2018

PM_{2.5} 污染的方向性最弱, 2018 年 PM_{2.5} 污染的方向性最强. 标准差椭圆的方位角可识别出 PM_{2.5} 污染空间格局变化的方向. 2004 ~ 2015 年方位角呈明显的下降趋势, 表明东北方向对中国 PM_{2.5} 污染格局变化的影响增大.

4.2 月度变化

2000 年 1 月至 2019 年 9 月中国 PM_{2.5} 月度空间分布格局如图 9 所示: 春季 PM_{2.5} 浓度高值区主要分布在南疆盆地、内蒙古东部、华北平原、江汉平原、四川盆地和辽中南地区. 由于春季气温回暖, 降水稀少, 植被覆盖率低, 加之盛行西北风, 风沙作用强烈, 导致中国北方大部分地区的 PM_{2.5} 浓度升高^[29]. 夏季全国 PM_{2.5} 浓度大幅下降, 南疆盆地和华北平原为仅有的两处污染热点区域. 这主要因为夏季盛行东南风, 来自海洋的暖湿、清洁气团带来大量降水, 有利于大气颗粒物的湿沉降和稀释^[30]; 气温升高, 大气垂直运动能力较强, 利于 PM_{2.5} 扩散^[31]; 植被覆盖率最高, 植被对大气污染

物质的净化作用最强^[32]. 随着雨带的南移, 秋季 PM_{2.5} 污染中心呈南移趋势, 从华北平原南下扩张至长江中下游地区、四川盆地和华南地区. 冬季气温偏低, 冷空气下沉, 降水偏少, 加之北方大规模的燃煤取暖, 导致污染物大量堆积且不易扩散^[33], 故全国 PM_{2.5} 污染达至顶峰. 结合中国 PM_{2.5} 浓度月度变化趋势发现(图 6): 1 ~ 7 月胡焕庸线以东地区 PM_{2.5} 浓度高值区的范围持续收缩, 浓度值持续下降; 8 ~ 12 月胡焕庸线以东地区 PM_{2.5} 浓度高值区的范围持续扩张, 浓度值持续上升. 胡焕庸线以西地区 PM_{2.5} 浓度随月份的变化较小. 气象条件和植被活动等自然因素的逐月变化决定了 PM_{2.5} 浓度月度空间格局变化的主基调, 人类活动的逐月变化则强化了 PM_{2.5} 浓度月度空间格局变化的局部差异, 如中国北方的冬季集中供暖^[34].

与年尺度分析类似, 图 10 揭示了中国 PM_{2.5} 浓度月度空间分布格局变化趋势. 1 ~ 3 月, 椭圆中心呈快速西移趋势, 月均移动距离为 97 km, 表明该时

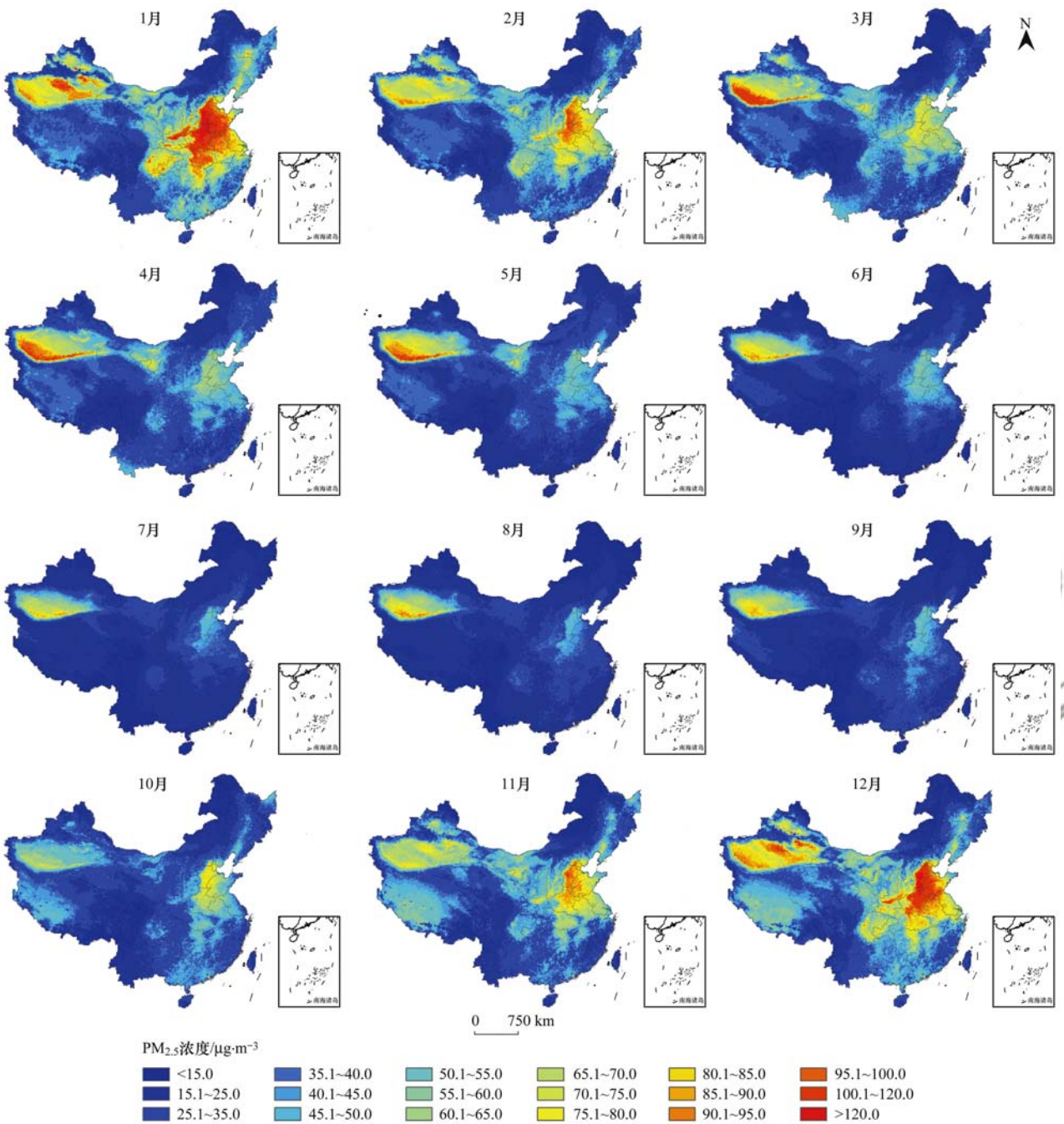


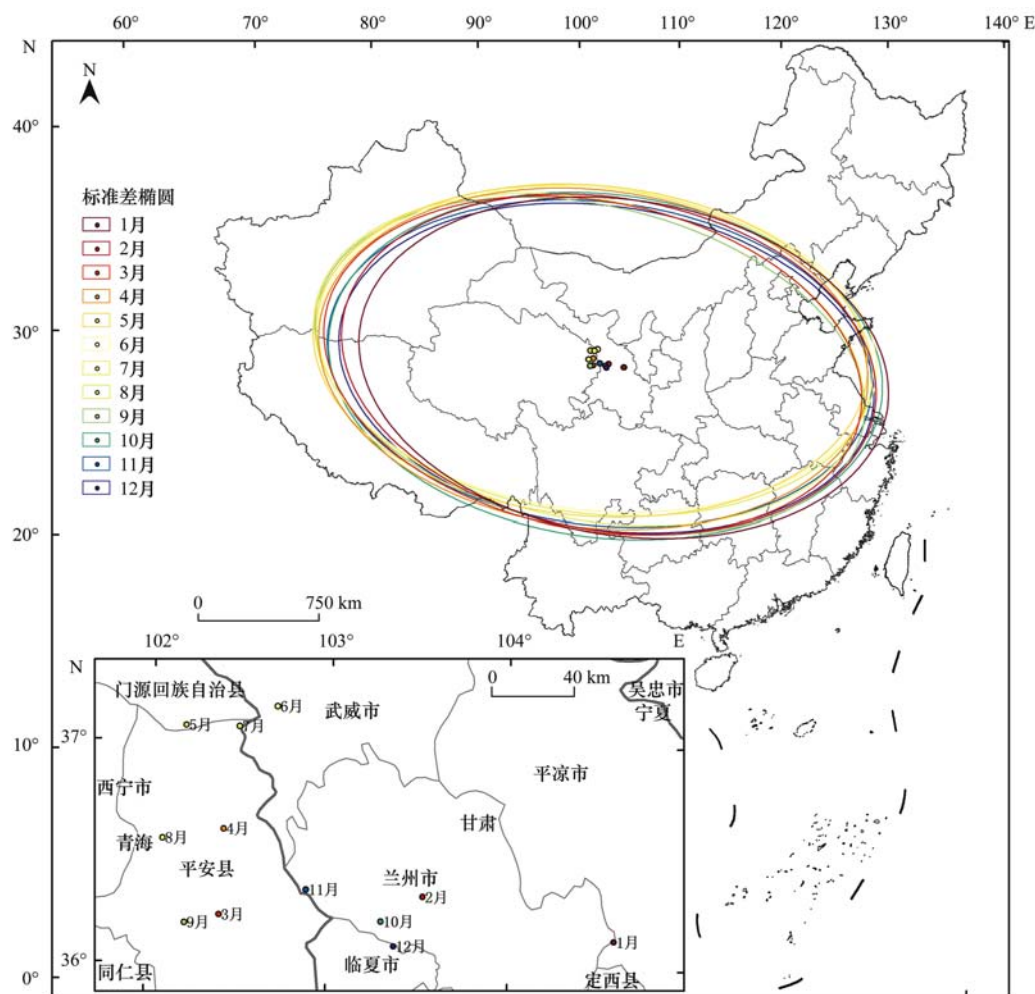
图9 2000年1月至2019年9月中国PM_{2.5}月度空间格局

Fig. 9 Spatial patterns of PM_{2.5} monthly concentration in China from 2000-01 to 2019-09

段东部地区PM_{2.5}浓度明显下降,这可能与气温回暖、风沙作用减弱和冬季燃煤减少有关^[35]. 4~9月椭圆中心先北移后南移,主要分布在西北一侧,月均移动距离约为45 km. 这表明中国PM_{2.5}浓度的东西差异减小,南北差异增大,与夏季风和雨带的移动方向基本一致. 9~12月椭圆中心呈明显东移趋势,表明该时段东部地区PM_{2.5}浓度明显增加.

标准差椭圆主轴长的年内逐月变化整体呈先增后减的“单峰型”趋势,1月最小(1 659 km),6

月最大(1 740 km). 次轴长呈下降→增加→下降趋势,8月最小(994 km),10月最大(1 067 km),这表明5~9月中国PM_{2.5}污染的方向性更加明显. 标准差椭圆的方位角可识别出PM_{2.5}污染空间格局变化的方向,其年内逐月变化大致呈“双峰型”趋势,5月的方位角最小(95.42°),9月最大(103.11°). 5~9月方位角呈明显增加趋势,表明南方PM_{2.5}变化对全国PM_{2.5}污染格局变化的影响增大.

图 10 月尺度中国 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度的标准差椭圆分析Fig. 10 Standard deviation ellipse of $\text{PM}_{2.5}$ monthly concentrations in China

5 结论

(1) 本研究提出的组合估算模型实现了中国 2000 ~ 2019 年 $\text{PM}_{2.5}$ 逐月浓度的可靠估算, 模型的年际交叉验证和直接验证精度较高。

(2) 2000 ~ 2019 年中国 $\text{PM}_{2.5}$ 年均浓度呈快速增加→保持稳定→显著下降的趋势, 2007 年和 2014 年分别为增加到稳定和稳定到下降的转折点。 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度总体呈冬春高夏秋低的季节性规律, 不同季节的 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度大小为: 冬季 > 春季 > 秋季 > 夏季。 $\text{PM}_{2.5}$ 月均浓度呈先降后升的“U”型趋势, 最小值在 7 月, 最大值在 12 月。

(3) 自然地理条件和人类活动奠定了中国 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度年度空间格局变化的基础, 气象条件的逐月变化决定了 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度月度空间格局变化的主基调。

(4) 全国 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度的标准差椭圆中心分布在青海省和甘肃省交界地区, 椭圆中心格局变动明显。 年尺度上, 2000 ~ 2014 年椭圆中心呈东移趋势,

2014 ~ 2018 年椭圆中心快速西移。 月尺度上, 1 ~ 3 月椭圆中心快速向西移动, 4 ~ 9 月椭圆中心先北移后南移, 9 ~ 12 月椭圆中心呈东移态势。

参考文献:

- [1] Xue T, Liu J, Zhang Q, *et al.* Rapid improvement of $\text{PM}_{2.5}$ pollution and associated health benefits in China during 2013-2017[J]. *Science China Earth Sciences*, 2019, **62**(12): 1847-1856.
- [2] 周亮, 周成虎, 杨帆, 等. 2000-2011 年中国 $\text{PM}_{2.5}$ 时空演化特征及驱动因素解析[J]. *地理学报*, 2017, **72**(11): 2079-2092.
Zhou L, Zhou C H, Yang F, *et al.* Spatio-temporal evolution and the influencing factors of $\text{PM}_{2.5}$ in China between 2000 and 2011 [J]. *Acta Geographica Sinica*, 2017, **72**(11): 2079-2092.
- [3] 张海霞, 程先富, 陈冉慧. 安徽省 $\text{PM}_{2.5}$ 时空分布特征及关键影响因素识别研究[J]. *环境科学学报*, 2018, **38**(3): 1080-1089.
Zhang H X, Cheng X F, Chen R H. Analysis on the spatial-temporal distribution characteristics and key influencing factors of $\text{PM}_{2.5}$ in Anhui Province [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2018, **38**(3): 1080-1089.
- [4] Wen X, Zhang P Y, Liu D Q. Spatiotemporal variations and influencing factors analysis of $\text{PM}_{2.5}$ concentrations in Jilin Province, Northeast China [J]. *Chinese Geographical Science*,

- 2018, **28**(5): 810-822.
- [5] Ye W F, Ma Z Y, Ha X Z. Spatial-temporal patterns of PM_{2.5} concentrations for 338 Chinese cities [J]. *Science of the Total Environment*, 2018, **631-632**: 524-533.
- [6] 宓科娜, 庄汝龙, 梁龙武, 等. 长三角 PM_{2.5}时空格局演变与特征——基于 2013-2016 年实时监测数据 [J]. *地理研究*, 2018, **37**(8): 1641-1654.
- Mi K N, Zhuang R L, Liang L W, *et al.* Spatio-temporal evolution and characteristics of PM_{2.5} in the Yangtze River Delta based on real-time monitoring data during 2013-2016 [J]. *Geographical Research*, 2018, **37**(8): 1641-1654.
- [7] Xu Y M, Ho H C, Wong M S, *et al.* Evaluation of machine learning techniques with multiple remote sensing datasets in estimating monthly concentrations of ground-level PM_{2.5} [J]. *Environmental Pollution*, 2018, **242**: 1417-1426.
- [8] Xue T, Zheng Y X, Tong D, *et al.* Spatiotemporal continuous estimates of PM_{2.5} concentrations in China, 2000-2016: a machine learning method with inputs from satellites, chemical transport model, and ground observations [J]. *Environment International*, 2019, **123**: 345-357.
- [9] 罗毅, 邓琼飞, 杨昆, 等. 近 20 年来中国典型区域 PM_{2.5} 时空演变过程 [J]. *环境科学*, 2018, **39**(7): 3003-3013.
- Luo Y, Deng Q F, Yang K, *et al.* Spatial-temporal change evolution of PM_{2.5} in typical regions of China in recent 20 years [J]. *Environmental Science*, 2018, **39**(7): 3003-3013.
- [10] Donkelaar A V, Martin R V, Brauer M, *et al.* Global estimates of fine particulate matter using a combined geophysical-statistical method with information from satellites, models, and monitors [J]. *Environmental Science & Technology*, 2016, **50**(7): 3762-3772.
- [11] 韩婧, 李元征, 李锋. 2000—2015 年中国 PM_{2.5} 浓度时空分布特征及其城乡差异 [J]. *生态学报*, 2019, **39**(8): 2954-2962.
- Han J, Li Y Z, Li F. Spatio-temporal distribution characteristic of PM_{2.5} concentration and the difference of PM_{2.5} concentration between urban areas and rural areas in China from 2000 to 2015 [J]. *Acta Ecologica Sinica*, 2019, **39**(8): 2954-2962.
- [12] Chen G B, Li S S, Knibbs L D, *et al.* A machine learning method to estimate PM_{2.5} concentrations across China with remote sensing, meteorological and land use information [J]. *Science of the Total Environment*, 2018, **636**: 52-60.
- [13] 时燕, 刘瑞梅, 罗毅, 等. 近 20 年来中国 PM_{2.5} 污染演变的时空过程 [J]. *环境科学*, 2020, **41**(1): 1-13.
- Shi Y, Liu R M, Luo Y, *et al.* Spatiotemporal variations of PM_{2.5} pollution evolution in China in recent 20 years [J]. *Environmental Science*, 2020, **41**(1): 1-13.
- [14] Xiao Q Y, Chang H H, Geng G N, *et al.* An ensemble machine-learning model to predict historical PM_{2.5} concentrations in China from satellite data [J]. *Environmental Science & Technology*, 2018, **52**(22): 13260-13269.
- [15] Song Z J, Fu D S, Zhang X L, *et al.* Diurnal and seasonal variability of PM_{2.5} and AOD in North China plain: comparison of MERRA-2 products and ground measurements [J]. *Atmospheric Environment*, 2018, **191**: 70-78.
- [16] Huang K Y, Xiao Q Y, Meng X, *et al.* Predicting monthly high-resolution PM_{2.5} concentrations with random forest model in the North China Plain [J]. *Environmental Pollution*, 2018, **242**: 675-683.
- [17] Zhang R X, Di B F, Luo Y Z, *et al.* A nonparametric approach to filling gaps in satellite-retrieved aerosol optical depth for estimating ambient PM_{2.5} levels [J]. *Environmental Pollution*, 2018, **243**: 998-1007.
- [18] Shi H Y, Xiao Z Q, Zhan X C, *et al.* Evaluation of MODIS and two reanalysis aerosol optical depth products over AERONET sites [J]. *Atmospheric Research*, 2019, **220**: 75-80.
- [19] Alvarez H A O, Myers O B, Weigel M, *et al.* The value of using seasonality and meteorological variables to model intra-urban PM_{2.5} variation [J]. *Atmospheric Environment*, 2018, **182**: 1-8.
- [20] 周云云, 张德英, 施润和. 多种气象要素及其变化对 AOD 与 PM_{2.5} 关联模型的影响研究 [J]. *环境科学学报*, 2019, **39**(1): 206-211.
- Zhou Y Y, Zhang D Y, Shi R H. Influence of multiple meteorological parameters and their variations on the association model of AOD and PM_{2.5} [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2019, **39**(1): 206-211.
- [21] 刘状, 孙曦亮, 刘丹, 等. 2001-2017 年中国北方省份气溶胶光学厚度的时空特征 [J]. *环境科学学报*, 2018, **38**(8): 3177-3184.
- Liu Z, Sun X L, Liu D, *et al.* Spatio-temporal characteristics of aerosol optical depth over Beijing-Tianjin-Hebei-Shandong-Henan-Shanxi-Shaanxi region during 2001-2017 [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2018, **38**(8): 3177-3184.
- [22] 夏晓圣, 陈菁菁, 王佳佳, 等. 基于随机森林模型的中国 PM_{2.5} 浓度影响因素分析 [J]. *环境科学*, 2020, **41**(5): 2057-2065.
- Xia X S, Chen J J, Wang J J, *et al.* PM_{2.5} concentration influencing factors in China based on the random forest model [J]. *Environmental Science*, 2020, **41**(5): 2057-2065.
- [23] Nordhausen K. Ensemble methods: foundations and algorithms by Zhi-Hua Zhou [J]. *International Statistical Review*, 2013, **81**(3): 470.
- [24] Chen T Q, He T, Benesty M, *et al.* Xgboost: extreme gradient boosting. R package version 1.0.0.2 [EB/OL]. <https://CRAN.R-project.org/package=xgboost>, 2020-04-13.
- [25] Friedman J H. Greedy function approximation: a gradient boosting machine [J]. *The Annals of Statistics*, 2001, **29**(5): 1189-1232.
- [26] Breiman L. Random forests [J]. *Machine Learning*, 2001, **45**(1): 5-32.
- [27] Wang B, Shi W Z, Miao Z L. Confidence analysis of standard deviational ellipse and its extension into higher dimensional Euclidean space [J]. *PLoS One*, 2015, **10**(3), doi: 10.1371/journal.pone.0118537.
- [28] 胡海清, 魏书精, 孙龙. 大兴安岭呼中区 2010 年森林火灾碳排放的计量估算 [J]. *林业科学*, 2012, **48**(10): 109-119.
- Hu H Q, Wei S J, Sun L. Estimation of carbon emissions from forest fires in 2010 in Huzhong of Daxing'anling Mountain [J]. *Scientia Silvae Sinicae*, 2012, **48**(10): 109-119.
- [29] 陈辉, 厉青, 李营, 等. 京津冀及周边地区 PM_{2.5} 时空变化特征遥感监测分析 [J]. *环境科学*, 2019, **40**(1): 33-43.
- Chen H, Li Q, Li Y, *et al.* Monitoring and analysis of the spatio-temporal change characteristics of the PM_{2.5} concentration over Beijing-Tianjin-Hebei and its surrounding regions based on remote sensing [J]. *Environmental Science*, 2019, **40**(1): 33-43.
- [30] 于彩霞, 邓学良, 石春娥, 等. 降水和风对大气 PM_{2.5}、PM₁₀ 的清除作用分析 [J]. *环境科学学报*, 2018, **38**(12): 4620-4629.
- Yu C X, Deng X L, Shi C E, *et al.* The scavenging effect of precipitation and wind on PM_{2.5} and PM₁₀ [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2018, **38**(12): 4620-4629.
- [31] 孙兆彬, 李梓铭, 廖晓农, 等. 北京大气热力和动力结构对

- 污染物输送和扩散条件的影响[J]. 中国环境科学, 2017, **37**(5): 1693-1705.
- Sun Z B, Li Z M, Liao X N, *et al.* Influence of Beijing atmospheric thermal and dynamics structure on pollutants transport and diffusion conditions [J]. China Environmental Science, 2017, **37**(5): 1693-1705.
- [32] Wang S J, Liu X P, Yang X, *et al.* Spatial variations of $\text{PM}_{2.5}$ in Chinese cities for the joint impacts of human activities and natural conditions: a global and local regression perspective[J]. Journal of Cleaner Production, 2018, **203**: 143-152.
- [33] 杨晔, 王银. 长江经济带 $\text{PM}_{2.5}$ 时空特征及影响因素研究[J]. 中国人口·资源与环境, 2017, **27**(1): 91-100.
- Yang M, Wang Y. Spatial-temporal characteristics of $\text{PM}_{2.5}$ and its influencing factors in the Yangtze River Economic Belt [J]. China Population, Resources and Environment, 2017, **27**(1): 91-100.
- [34] Zhang X Y, Xu X D, Ding Y H, *et al.* The impact of meteorological changes from 2013 to 2017 on $\text{PM}_{2.5}$ mass reduction in key regions in China [J]. Science China Earth Sciences, 2019, **62**(12): 1885-1902.
- [35] 戴昭鑫, 张云芝, 胡云锋, 等. 基于地面监测数据的 2013 ~ 2015 年长三角地区 $\text{PM}_{2.5}$ 时空特征[J]. 长江流域资源与环境, 2016, **25**(5): 813-821.
- Dai Z X, Zhang Y Z, Hu Y F, *et al.* Spatial-temporal characteristics of $\text{PM}_{2.5}$ in Yangtze River Delta (YRD) region based on the ground monitoring data from 2013- 2015 [J]. Resources and Environment in the Yangtze Basin, 2016, **25**(5): 813-821.

环境科学

CONTENTS

Industrial Volatile Organic Compounds (VOCs) Emission Inventory in China	LIANG Xiao-ming, SUN Xi-bo, XU Jian-tie, <i>et al.</i> (4767)
Contribution of Emissions from Cement to Air Quality in China	TANG Ling, XUE Xiao-da, BO Xin, <i>et al.</i> (4776)
Audit Indicators and Suggested Ranges for Data Validation of Chemical Components in Ambient PM _{2.5} : A Case Study of the Yangtze River Delta	 ZHANG Zhe, QIAO Li-ping, ZHOU Min, <i>et al.</i> (4786)
Size Distribution of Particulate Chemical Components in Nanjing Jiangbei New Area	ZHANG Yu-xiu, YU Xing-na, LIU Si-jia, <i>et al.</i> (4803)
Seasonal Chemical Composition Characteristics and Source Apportionment of PM _{2.5} in Zhengzhou	ZHANG Jian-fei, JIANG Nan, DUAN Shi-guang, <i>et al.</i> (4813)
Characteristics, Sources, and Health Risks of Elements in PM _{2.5} in Shanxi University Town	LI Xue-mei, MU Ling, TIAN Mei, <i>et al.</i> (4825)
Spatio-temporal Evolution of PM _{2.5} Concentration During 2000-2019 in China	XIA Xiao-sheng, WANG Jun-hong, SONG Wei-dong, <i>et al.</i> (4832)
Differences in Pollution Characteristics Under the Southerly and Easterly Wind in Beijing	YIN Xiao-mei, QIAO Lin, ZHU Xiao-wan, <i>et al.</i> (4844)
Transport Characteristics of Air Pollution in Tianjin Based on Weather Background	CAI Zi-ying, YAN Xu, HAN Su-qin, <i>et al.</i> (4855)
Influence of Meteorological Conditions on Ozone Pollution at Shangdianzi Station Based on Weather Classification	WU Jin, LI Chen, MA Zhi-qiang, <i>et al.</i> (4864)
Accurate Identification of Ambient VOCs Emission Sources in an Industrial Park Using On-Line Monitoring Data	SUN Jia-ning, XIE Shao-dong (4874)
Characteristics, Atmospheric Reactivity, and Source Apportionment of Ambient Volatile Organic Compounds in Wuhu	GAO Kang, ZHANG Hui, LIU Meng-di, <i>et al.</i> (4885)
Water Quality Response to Landscape Pattern at Different Spatial Scales in Baihe River in the Upper Reaches of the Miyun Reservoir ...	ZHANG Wei-wei, LI Xiao-na, WANG Chao, <i>et al.</i> (4895)
Concentration and Carbon Isotope Composition of DOC and DIC in the Miyun Reservoir Watershed in Summer	CHEN Ji-ji, GUO Jing, XU Su-shi, <i>et al.</i> (4905)
Variation and Driving Factors of Black Water Event Intensity in Lake Taihu During 2009 to 2018	XIN Hua-rong, ZHU Guang-wei, WANG Xue-song, <i>et al.</i> (4914)
Hydrogeochemical Investigations of Groundwater in the Lingbei Area, Leizhou Peninsula	ZHANG Hong-xin, WU Ya, LUO Wei-yu, <i>et al.</i> (4924)
Source of Groundwater Nitrate in Luanping Basin Based on Multi-environment Media Nitrogen Cycle and Isotopes	SUN Hou-yun, WEI Xiao-feng, JIA Feng-chao, <i>et al.</i> (4936)
Metal Distributions and Human Health Risk Assessments on Waters in the Huixian Karst Wetland, China	LI Jun, ZOU Sheng-zhang, LIANG Yong-ping, <i>et al.</i> (4948)
Absorption and Three Dimensional Fluorescence Spectra of CDOM in the Water of the Taibaishan Nature Reserve	ZHANG Wen-hao, ZHAO Duo-lin, WANG Xiao-yu, <i>et al.</i> (4958)
Effect of Heavy Rainfall on Nitrogen and Phosphorus Concentrations in Rivers at River-net Plain	LIAN Xin-qiao, ZHU Guang-wei, YANG Wen-bin, <i>et al.</i> (4970)
Risk Ranking of Endocrine Disrupting Compounds, Pharmaceuticals, and Personal Care Products in the Aquatic Environment of the Yangtze River Basin	SU Chao, CUI Yan (4981)
Sources and Ecological Risk Assessment of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in the Jiaxing River Network	YANG Yan-mei, ZHAO Hang-chen, MENG Rui, <i>et al.</i> (4989)
Impact of a Sewage Treatment Plant on the Accumulation of Microplastics in Freshwater Organisms in the Lijiang River of the Guilin Urban Section	 XIE Yuan-shan, ZHANG Qing-ke, ZHANG Li-shan, <i>et al.</i> (4999)
Distribution of Antibiotic Concentration in Domestic Wastewater Treatment Facilities in Villages and Towns	LU Ya-nan, GUO Ya-ni, WANG Kun, <i>et al.</i> (5008)
Microbial Diversity and Influencing Factors in a Small Watershed in Winter	ZHU Jin-shan, QIN Hai-lan, SUN Qi-yao, <i>et al.</i> (5016)
Characteristics of Organic Matter in Sediments During the Thermal Stratification of a Reservoir and Effects on an Aerobic Denitrifier	WANG Tong, WEN Gang, HUANG Ting-lin, <i>et al.</i> (5027)
Microbial Diversity Analysis of WWTPs Based on Hybrid-MBBR Process in a Low Temperature Season in the Yangtze River Delta	HAN Wen-jie, WU Di, ZHOU Jia-zhong, <i>et al.</i> (5037)
Effects of Phytoplankton Classifications on the Relationship Between Phytoplankton Community and Environment in Summer Subtropical Reservoirs, Southern China	 GUO Fang, GU Ji-Guang, ZHAO Jian, <i>et al.</i> (5050)
Remote Sensing Classification of Urban Black-odor Water Based on Decision Tree	LI Ling-ling, LI Yun-mei, LÜ Heng, <i>et al.</i> (5060)
Enhanced Membrane Anti-fouling Ability of Anaerobic Membrane Bioreactor Equipped with Bio-electrochemical System Using Nano-zero-valent Iron and Its Regulation Mechanism	 PAN Yang, NIU Cheng-xin, ZHI Zhong-xiang, <i>et al.</i> (5073)
Effects of Temperature and Substrate Concentration on N ₂ O Release of ANAMMOX Process	WANG Si-ke, YU Heng, ZUO Jian-e (5082)
Characteristics of Nutrient Removal in a Pilot-scale A ² /O with Mixture of Sludge Fermentation Liquor and Tail Water as External Carbon Source	 RONG Yi, SHAO Jin-bo, YU You-cheng, <i>et al.</i> (5089)
Effect of Different Ratios of Anaerobic Time and Aeration Time on the Operation of a Continuous-Flow Reactor with Partial Nitrification Granules	 ZHANG Jie, LAO Hui-mei, LI Dong, <i>et al.</i> (5097)
Effects of Mesophilic Anaerobic Digestion and Thermophilic Anaerobic Digestion on the Risk and Stability of Heavy Metals in Sludge	TIAN Zhong-ke, WANG Fen, YAN Zhao (5106)
Quantitative Evaluation of Human Health Risk of Heavy Metals in Soils Based on Positive Matrix Factorization Model and Geo-statistics	HAN Lin, XU Xi-bo (5114)
Distribution and Ecological Risk of Heavy Metals in the Soil of Redevelopment Industrial Sites	SHEN Cheng, LIU Fu-wen, WU Jian, <i>et al.</i> (5125)
Investigating Adsorption of Naphthalene to Organo-Modified Montmorillonites and Influencing Factors	HOU Jing-wen, SHI Wei-lin, GAO Juan (5133)
Effects of Ferrous Sulfate and Ferric Nitrate on Cadmium Transportation in the Rhizosphere Soil-Rice System	LI Yi-chun, CHEN Yong, TANG Ming-deng, <i>et al.</i> (5143)
Effects of Intercropping of <i>Brassica chinensis</i> L. and <i>Tagetes patula</i> L. on the Growth and Cadmium Accumulation of Plants	YAN Xiu-xiu, XU Ying-ming, WANG Lin, <i>et al.</i> (5151)
Effects of Heavy Metal-immobilizing Bacteria on Reducing Wheat Uptake Cd by Regulation Soil Iron Oxides	WANG Xiao-yu, HAN Hui (5160)
Sustained Effects of Remediation Materials on Soil Copper Remediation Under Oil-Rice Rotation	ZHAO Ying-ying, LI Hong-chuan, HU Hong-xiang, <i>et al.</i> (5168)
Impacts of Nitrogen Application on Ammonia Volatilization During Maize Season in Northern China	ZHANG Wei, NI Bang, XU Xiu-chun, <i>et al.</i> (5176)
Effect of Biochar on Changes of the Temperature Sensitivity of Soil Respiration and Bacterial Community Structure	CAO Kun-kun, ZHANG Sha-sha, HU Xue-yu, <i>et al.</i> (5185)
Effects of Heavy Metal Contents on Phyllosphere and Rhizosphere Fungal Communities for <i>Bathriochloa ischaemum</i> in Copper Tailings Area	 JIA Tong, GUO Ting-yan, WANG Rui-hong, <i>et al.</i> (5193)
Advances in Microbe-Derived Taste and Odor Compounds in Typical Aquatic Ecosystems	ZHANG Hai-han, MIAO Yu-tian, HUANG Ting-lin, <i>et al.</i> (5201)