

方知库
Eco-Environmental
Knowledge Web

环境科学

ENVIRONMENTAL SCIENCE

ISSN 0250-3301 CODEN HCKHDV
HUANJING KEXUE

冠状病毒气溶胶传播及环境影响因素

李雪, 蒋靖坤, 王东滨, 邓建国, 贺克斌, 郝吉明



■ 主办 中国科学院生态环境研究中心

■ 出版 科学出版社



2021年7月

第42卷 第7期
Vol.42 No.7

目次

冠状病毒气溶胶传播及环境影响因素	李雪, 蒋靖坤, 王东滨, 邓建国, 贺克斌, 郝吉明 (3091)
新冠肺炎疫情期间气象条件和排放变化对 PM _{2.5} 的影响	逯世泽, 史旭荣, 薛文博, 雷宇, 严刚 (3099)
基于网格的长三角 PM _{2.5} 分布影响因素及交互效应	黄小刚, 赵景波, 辛未冬 (3107)
ARIMA 时间序列分析模型在臭氧浓度中长期预报中的应用	李颖若, 韩婷婷, 汪君霞, 权维俊, 何迪, 焦热光, 吴进, 郭恒, 马志强 (3118)
中国长三角背景点冬季大气棕碳污染特征及来源解析	赵宇, 吴灿, 王益倩, 陈玉宝, 吕少君, 汪芳琳, 杜伟, 刘仕杰, 李志健, 王格慧 (3127)
四川盆地 PM _{2.5} 浓度时空变化特征遥感监测与影响因子分析	李梦真, 张廷斌, 易桂花, 秦岩宾, 李景吉, 刘贤, 蒋杰 (3136)
河网连续动态模型构建及其在典型杀虫剂时空迁移模拟中的应用	邢成, 张芊芊, 蔡雅雅, 烟晓婷, 应光国 (3147)
九龙江流域河流氮输出对土地利用模式和水文状况的响应	黄亚玲, 黄金良 (3156)
滇池近岸水体微塑料污染与富营养化的相关性	袁海英, 侯磊, 梁启斌, 李佳琛, 任甲 (3166)
白洋淀夏季入淀区沉积物间隙水-上覆水水质特征及交换通量分析	张甜娜, 周石磊, 陈召莹, 张紫薇, 孙悦, 姚波, 崔建升, 李再兴, 罗晓 (3176)
镇江市古运河和金山湖河湖上覆水体和沉积物氮及有机质分布特征及污染评价	原璐彬, 邢书语, 刘鑫, 周晓红, Adelaide Angela Dadzie (3186)
洪湖国际重要湿地沉积物磷空间分布特征及释放风险	刘永九, 黄素珍, 张璐, 彭雪, 张心怡, 葛芳杰, 刘碧云, 吴振斌 (3198)
苏州古城区域河道底泥的重金属污染分布及生态风险评价	白冬锐, 张涛, 包峻松, 陈坦, 王洪涛, 金曦, 金军, 杨婷 (3206)
武汉集中式饮用水源地土壤重金属的时空分布特征及生态风险评价	朱静, 侯耀宗, 邹书成, 曹梦华, 涂书新 (3215)
升金湖河湖交汇区地表-地下水水化学特征及成因分析	崔玉环, 王杰, 刘友存, 郝洸, 高祥 (3223)
青岛市农区地下水硝态氮污染来源解析	寇馨月, 丁军军, 李玉中, 毛丽丽, 李巧珍, 徐春英, 郑欠, 庄姗 (3232)
三峡库区支流浮游植物群落稳定性及其驱动因子分析	何书晗, 欧阳添, 赵璐, 纪璐璐, 杨安琪, 施军琼, 吴忠兴 (3242)
哈尔滨城市河网丰水期浮游植物群落分布特征及驱动因子	路枫, 李磊, 齐青松, 陆欣鑫, 刘妍, 范亚文 (3253)
湖泊沉积物中微生物群落对天然有机质输入的响应	居琪, 章奇, 曹驰程, 白雷雷, 张晖 (3263)
补给水质与社会活动对白洋淀湿地微生物的影响特征	赵志瑞, 吴会清, 毕玉方, 展庆周, 吴海森, 袁凯悦, 孟祥源, 李方红 (3272)
蓝藻衰亡过程中上覆水溶解性有机物变化特征	李翔, 李致春, 汪旋, 张思远, 王慧敏, 厉荣强, 王国祥, 李启蒙 (3281)
长江下游快速城市化地区水污染特征及源解析:以秦淮河流域为例	马小雪, 龚畅, 郭加汛, 王腊春, 徐蕴韵, 赵春发 (3291)
长江下游居民区降水地表径流的污染特征	郭文景, 张志勇, 闻学政, 张瀚文, 王岩 (3304)
潮河流域降雨径流事件污染物输出特征	包鑫, 江燕, 胡羽聪 (3316)
不透水地表粗糙度对城市面源颗粒物的累积和冲刷影响	单溪环, 谢文霞, 廖云杰, 房志达, 杨晓晶, 苏静君, 赵洪涛, 李叙勇 (3328)
基于概率方法的中国居民饮水途径暴露健康风险评估	秦宁, 刘运炜, 侯荣, 王彩云, 王贝贝, 段小丽 (3338)
蛋白类有机质在水厂各处理单元中的去除特性	李梦雅, 宋钰莹, 张晓岚, 黄海鸣 (3348)
污水处理厂不同单元工艺水中重金属及其纳米颗粒的分布	王杜珈, 何帅, 周小霞 (3358)
基于宏基因组技术分析 MBR 膜清洗后污泥中抗性基因	杜彩丽, 李中涵, 李晓光, 张列宇, 陈素华, 黎佳茜, 李曹乐 (3366)
石化废水处理厂中耐药菌和耐药基因的分布特征与去除效能解析	唐振平, 肖莎莎, 段毅, 刘迎九, 高媛媛, 吴月, 陈怡雯, 周帅 (3375)
一段式亚硝化厌氧氨氧化 SMBBR 处理中低浓度氨氮废水	吕恺, 邵贤明, 王康舟, 姚雪薇, 彭党聪, 韩芸 (3385)
外加固体缓释碳源的两段反硝化工艺脱氮性能	唐义, 马懿文, 王金泉, 王艳, 叶刚 (3392)
臭氧投量对 SBR 系统污泥沉降性能及脱氮除磷的影响	吕永涛, 朱传首, 张旭阳, 徐超, 潘永宝, 刘爽, 崔双科, 王磊 (3400)
间歇梯度曝气下首段延时厌氧强化好氧颗粒污泥脱氮除磷	张玉君, 李冬, 王歆鑫, 张富国, 张杰 (3405)
提盐速率对序批式生物反应器性能和微生物群落结构的影响	古铂铭, 金春姬, 温淳, 侯金源, 赵阳国, 高孟春 (3413)
低温驯化对自养脱氮颗粒污泥功能活性与菌群结构的影响分析	钱飞跃, 刘雨馨, 王建芳, 刘文如 (3422)
矿渣基改性剂对城市污泥重金属稳定化	张发文, 董明坤, 陈辰慧, 赵长民 (3430)
2000~2018 年长三角土地利用变化对农田生态系统氮排放的影响	王文锦, 王卿, 朱安生, 黄凌, 顾莹, 王杨君, 王敏, 李莉 (3442)
麦秸水热炭及其改良产物对水稻产量和稻田氮挥发排放的影响	韩晨, 侯朋福, 薛利红, 冯彦房, 余姗, 杨林章 (3451)
水肥管理对热带地区双季稻田 CH ₄ 和 N ₂ O 排放的影响	李金秋, 邵晓辉, 缙广林, 邓艺欣, 谭诗敏, 徐文娟, 杨秋, 刘文杰, 伍延正, 孟磊, 汤水荣 (3458)
耐盐碱水稻土壤产甲烷菌群落特征及产甲烷途径	杨雨虹, 贺惠, 米铁柱, 刘玥腾, 刘佳音, 张国栋, 李明月, 甄毓 (3472)
铁碳微电解填料对人工湿地温室气体排放的影响	赵仲婧, 郝庆菊, 涂婷婷, 胡曼利, 张尧钰, 江长胜 (3482)
农地土壤重金属 Pb 和 Cd 有效性测定方法的筛选与评价	陈莹, 刘汉燚, 刘娜, 蒋珍茂, 魏世强 (3494)
亚热带高山森林土壤典型重金属的空间分布格局及其影响因素:以云南哀牢山为例	刘旭, 王训, 王定勇 (3507)
深圳市不同土类的重金属环境背景值与理化性质特征	林挺, 赵述华, 郝秀平, 杨坤, 吴静雅, 朱艳, 罗飞 (3518)
同步钝化土壤 Cd 和 As 材料的筛选	周嗣江, 刘针延, 熊双莲, 马烁, 黄倚豪, 雷寅, 曹梦华, 涂书新 (3527)
两种铁基材料对污染农田土壤砷、铅、镉的钝化修复	袁峰, 唐先进, 吴骥子, 赵科理, 叶正钱 (3535)
青藏高原东缘冻土中有机磷酸酯的污染特征	刘丽娅, 印红玲, 蹇林洁, 徐子文, 熊远明, 罗怡, 刘小雯, 徐维新 (3549)
成都平原氮磷化肥施用强度空间分布及影响因素分析	刘奇鑫, 王昌全, 李冰, 赵海岚, 方红艳, 邓茜, 李启权 (3555)
土壤中溶解性有机质对不同类型堆肥的响应差异	席北斗, 王燕, 檀文炳, 余红, 崔东宇, 程东会, 党秋玲 (3565)
《环境科学》征订启事 (3315)	
《环境科学》征稿简则 (3357)	
信息 (3391, 3441, 3564)	

ARIMA 时间序列分析模型在臭氧浓度中长期预报中的应用

李颖若^{1,2,3}, 韩婷婷^{1,2}, 汪君霞⁴, 权维俊³, 何迪³, 焦热光³, 吴进³, 郭恒³, 马志强^{1,2,3*}

(1. 中国气象局北京城市气象研究院, 北京 100089; 2. 中国气象局大气化学重点开放实验室, 北京 100089; 3. 京津冀环境气象预报预警中心, 北京 100089; 4. 北京大学环境科学与工程学院, 北京 100871)

摘要:近年来,京津冀地区近地面臭氧浓度呈现上升趋势,臭氧污染超标情况严重。目前由于前体物源排放清单、臭氧生成和扩散的物理和化学过程机制存在不足等原因,导致了数值模型在预报夏季臭氧浓度时仍然存在较大偏差,而时间序列分析方法由于具有建模简单、计算成本低的特点,在臭氧污染预报中具有很好的应用前景。本研究利用华北区域大气本底站上甸子站点和环境监测总站天津和保定站点的臭氧观测数据,采用 ARIMA 时间序列分析模型开展臭氧浓度中长期预报研究。结果表明,季节性 ARIMA 模型在预报臭氧长期月均值时,预测值和观测值的相关系数 R 可达 0.951,均方根误差 RMSE 仅为 $10.2 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 。加入了日最高气温及二次项作为协变量的动态 ARIMA 模型,对臭氧日最大 8 h 滑动平均值的预报效果得到了很大提升,预测值和观测值的相关系数由 0.296~0.455 提升至 0.670~0.748, RMSE 得到了有效降低。

关键词:臭氧(O_3); 中长期预报; 时间序列分析; ARIMA 模型; 京津冀地区

中图分类号: X515 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2021)07-3118-09 DOI: 10.13227/j.hjxx.202011237

Application of ARIMA Model for Mid- and Long-term Forecasting of Ozone Concentration

LI Ying-ruo^{1,2,3}, HAN Ting-ting^{1,2}, WANG Jun-xia⁴, QUAN Wei-jun³, HE Di³, JIAO Re-guang³, WU Jin³, GUO Heng³, MA Zhi-qiang^{1,2,3*}

(1. Institute of Urban Meteorology, China Meteorological Administration, Beijing 100089, China; 2. Key Laboratory of Atmospheric Chemistry, China Meteorological Administration, Beijing 100089, China; 3. Environmental Meteorology Forecast Center of Beijing-Tianjin-Hebei, China Meteorological Administration, Beijing 100089, China; 4. College of Environmental Science and Engineering, Peking University, Beijing 100871, China)

Abstract: Ozone pollution has recently become a severe air quality issue in the Beijing-Tianjin-Hebei region. Due to the lack of a precursor emission inventory and complexity of physical and chemical mechanism of ozone generation, numerical modeling still exhibits significant deviations in ozone forecasting. Owing to its simplicity and low calculation costs, the time series analysis model can be effectively applied for ozone pollution forecasting. We conducted a time series analysis of ozone concentration at Shangdianzi, Baoding, and Tianjin sites. Both seasonal and dynamic ARIMA models were established to perform mid- and long-term ozone forecasting. The correlation coefficient R between the predicted and observed value can reach 0.951, and the RMSE is only $10.2 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ for the monthly average ozone prediction by the seasonal ARIMA model. The correlation coefficient R between the predicted and observed value increased from 0.296-0.455 to 0.670-0.748, and RMSE was effectively reduced for the 8-hour ozone average predicted by the dynamic ARIMA model.

Key words: ozone(O_3); mid- and long-term forecast; time series analysis; ARIMA model; Beijing-Tianjin-Hebei region

臭氧(ozone, O_3)是地球大气中重要的痕量气体,对大气化学循环、农作物和人类健康及生活有着重要影响^[1~4]。对流层臭氧是大气环境中重要的二次污染物,其作为一种强氧化剂,是大气中 $\cdot\text{OH}$ 的主要来源^[5,6],可通过氧化作用影响大气中一些痕量气体的大气寿命,对对流层的光化学循环起着至关重要的作用^[7];作为第三大温室气体,估算其全球辐射强迫约为 $(0.40 \pm 0.20) \text{W}\cdot\text{m}^{-2}$,对全球气候有重要影响;地表臭氧还会影响人体健康和农作物的生长^[8~10]。

中国超大城市及周边地区日益严重的地表和边界层臭氧污染受到研究者的广泛关注^[11~19]。在京津

冀、长三角和珠三角等主要城市区域,已观测到臭氧浓度超过环境空气质量标准的 100%~200%,而京津冀地区又是上述几个地区中臭氧污染最严重的区域^[4,14~19]。2005 年夏季 Wang 等^[18]在北京西北郊区的山区站点进行了 6 周的外场观测,观测到地表臭氧的小时体积分数最高值高达 286×10^{-9} 。Ma

收稿日期: 2020-11-28; 修订日期: 2020-12-28

基金项目: 国家自然科学基金项目(41905119); 中国气象局大气化学重点开放实验室开放课题项目(2019B03); 北京市气象局科技项目(BMBKJ201901005); 上甸子国家大气本底站开放研究课题项目(SDZ2020616); 中国气象局预报员专项(CMAYBY2019-002)

作者简介: 李颖若(1984~),女,博士,高级工程师,主要研究方向为超大城市及区域空气污染, E-mail: lyr@pku.edu.cn

* 通信作者, E-mail: zqma@ium.cn

等^[19]利用上甸子本底站的地表臭氧观测数据研究表明,北京地区地表臭氧浓度自 2003 年以来呈现逐年上升的趋势.面对京津冀地区日益严重的臭氧超标污染情况,十分有必要提高对臭氧浓度的观测监控能力及公众的预警防范能力,开展相关大气臭氧浓度的预报工作,以有效保护民众的身体健康.

目前国内外臭氧浓度预报采用的方法主要可分为统计预报方法和数值预报方法两大类^[20~23].北京市气象局已有 BREMPS 空气质量模式对 PM_{2.5} 以及臭氧进行业务化的预报服务,但是该模型对于夏季臭氧高浓度存在明显的低估问题^[23].相比于数值预报方法,统计预报方法在模型建立时,输入数据较少,计算成本较低,可推广性较强,是本研究拟采用的研究方法.时间序列分析方法包括频域分析方法和时域分析方法,在统计预报中有着广泛的应用^[24~27].时域分析方法最早可以追溯到 1927 年,有研究者提出了自回归(autoregressive, AR)模型,随后 Walker 在分析印度大气规律时使用了移动平均(moving average, MA)模型和自回归移动(autoregressive moving average, ARMA)模型^[25].Box 等^[27]在总结前人研究的基础上提出了差分自回归移动平均(autoregressive integrated moving average, ARIMA)模型,其研究极大推动了时间序列分析研究的发展,在社会和自然科学的多个领域有着广泛应用. ARIMA 时间序列分析模型可以利用差分方法简单高效提取非平稳时间序列中的确定性信息,因此在非平稳时间序列的研究和预测中有重要的应用价值.近地表臭氧作为一种大气二次污染物,决定其浓度的物理和化学过程相对复杂,其浓度时间序列为非平稳时间序列,因此 ARIMA 时间序列模型应用于臭氧中长期预报具有理论可行性和实际可操作性.

1 材料与方法

1.1 观测数据

用于臭氧长期预报和动态 ARIMA 模型构建及有效预报时长分析的臭氧浓度观测数据来自华北区域大气本底站——上甸子观测站(40° 39' N, 117° 07' E),臭氧观测使用的仪器是美国 Thermo 公司生产的 TE49C 型臭氧分析仪.仪器在使用之前和每月定期利用 TE49CPS 臭氧校准仪校准,并在日常观测中每天进行零点和跨度检查,保证观测结果的准确性.该站点位于北京城区东北方向的密云区高岭镇上甸子村,距离北京市中心约 100 km. 站点远离市中心和人口密集区域,受局地人为排放源的影响极小.该站点是世界气象组织全球大气观测

(WMO/GAW)在我国设立的区域大气本底站之一,也是我国首批入选的大气成分本底野外观测站之一,其臭氧观测数据具有区域代表性.

用于动态 ARIMA 模型中长期预报普适性分析的 2015 ~ 2019 年臭氧日最大 8h 滑动平均数据来自于中国环境监测总站,数据经过完整性和有效性审核.用于动态 ARIMA 模型建模的 2015 ~ 2019 年上甸子、天津和保定站点的日最高气温资料来自于国家气象信息中心及中国气象数据网(<http://data.cma.cn/>).臭氧日最大 8h 滑动平均值根据《中华人民共和国国家环境保护标准》(HJ 663-2013)计算,观测数据的样本量信息如表 1 所示,上甸子站、天津站和保定站的有效数据百分比分别为 98%、94% 和 89%,数据完整性较好,可以满足时间序列分析建模的要求.

表 1 臭氧日最大 8 h 滑动平均值数据样本量统计

Table 1 Sample size of ozone maximum 8 h average value

站点	样本量/个	有效数据百分比/%
上甸子站	1 782	98
天津站	1 723	94
保定站	1 628	89

1.2 ARIMA 方法简介

ARIMA 模型,即差分自回归移动平均模型,是时间序列时域分析的方法之一^[25,26].时间序列时域分析方法从序列自相关的角度揭示时间序列的发展规律,主要包括 AR 模型,MA 模型,ARIMA 模型,自回归条件异方差模型(autoregressive conditional heteroskedasticity model, ARCH)及其衍生模型等. ARIMA 模型是在 AR 模型和 MA 模型基础上发展出的方法,该模型可通过差分法将非平稳时间序列平稳化,可克服 AR 模型和 MA 模型只能处理平稳时间序列的缺点.同时该模型相对于 ARCH 模型及其衍生模型具有结构简单,输入变量少的特点,是单变量时间序列数据预测的最广泛使用方法之一,方便业务化推广. ARIMA 模型记为 ARIMA(p, d, q),其中 p 为 AR 模型阶数, q 为 MA 模型阶数, d 为差分阶数.模型的一般表达式如下:

$$y_t = c + \phi_1 y_{t-1} + \cdots + \phi_p y_{t-p} + \theta_1 \varepsilon_{t-1} + \cdots + \theta_q \varepsilon_{t-q} + \varepsilon_t$$

式中, y_t 为差分序列, ε_t 为噪声序列, ϕ 为 AR 模型拟合参数, θ 为 MA 模型拟合参数.

季节性 ARIMA 模型(seasonal ARIMA model)是在 ARIMA 模型中引入季节性的项,记为 ARIMA(p, d, q)(P, D, Q),其中, p, d 和 q 表示模型中非季节部分的模型参数, P, D 和 Q 表示模型中季节性部分的模型参数, s 为季节性周期.

一般来说,建立 ARIMA 模型有 3 个阶段,分别是模型识别和定阶、参数估计和模型检验^[25]. 模型识别和定阶主要是根据自相关图 (ACF 图) 和偏自相关图 (PACF 图) 截尾和拖尾性质来确定模型参数 p 、 q 和 d . 参数估计主要是根据赤池信息准则 (AIC 准则) 和贝叶斯信息准则 (BIC 准则) 选择最优预测模型. 模型检验主要包括参数估计的显著性检验和残差是否为随机独立的白噪声序列.

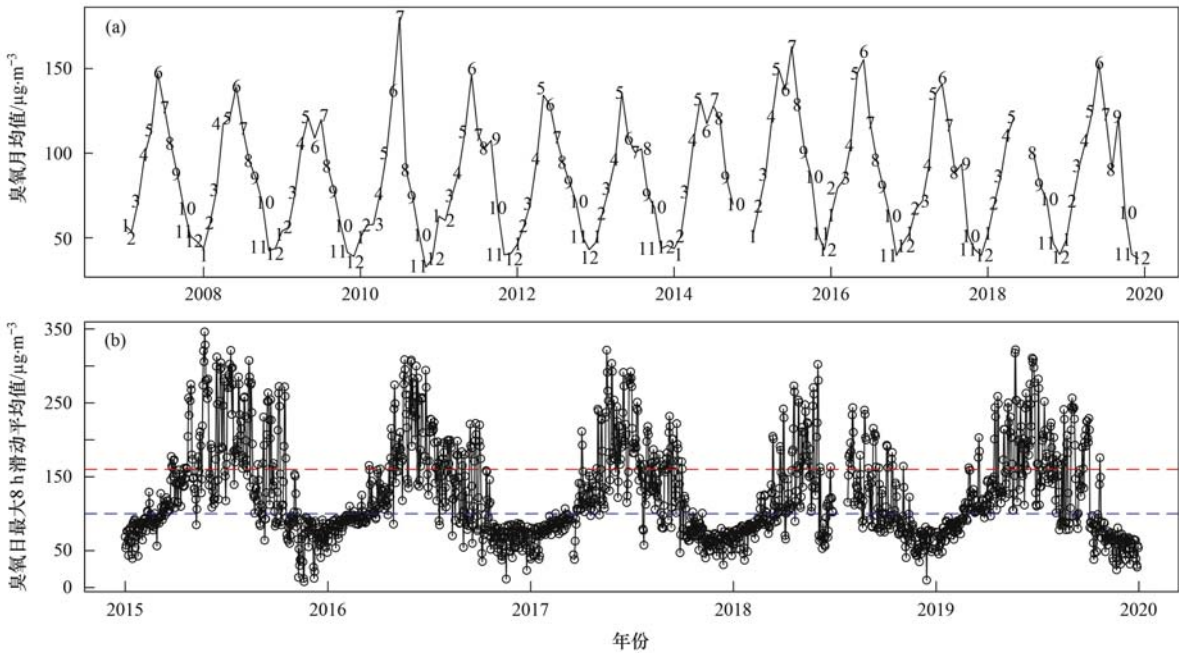
预报中,如果考虑外部变量 (如气温等) 的变动对预测变量的影响,可以将外部变量作为协变量纳入 ARIMA 模型,对 ARIMA 模型进行扩展. 本研究中将未加入协变量的 ARIMA 模型定义为一般 ARIMA 模型,将加入日最高气温及二次项作为协变量的 ARIMA 模型定义为动态 ARIMA 模型. 本研究采用 2007 ~ 2019 年上甸子臭氧浓度月均值数据和 2015 ~ 2019 年上甸子站点、天津和保定站点的臭氧日最大 8 h 滑动平均值数据进行 AIRMA 时间序列建模分析,构建臭氧预报的时间序列分析模型,对预报的结果进

行参数评估,验证 ARIMA 时间序列分析方法在京津冀地区臭氧中长期预报中的适用性. 本文中臭氧预报的时间序列分析利用 R 语言的 forecast 包完成.

2 结果与讨论

2.1 上甸子站点臭氧时间序列变化特征

图 1 为上甸子臭氧的月均值和日最大 8 h 滑动平均值,结果表明,上甸子所在京津冀地区臭氧浓度变化呈现明显的季节性,5 ~ 8 月臭氧浓度较高,易发臭氧污染. 2015 ~ 2019 年,上甸子站点臭氧日最大 8 h 滑动平均值超过《环境空气质量标准》(GB 3095-2012) 二级标准限值的天数平均为 97 d,平均超标率为 26. 7% (表 2). 上甸子站点夏季臭氧超标率近年来维持在较高水平,表明京津冀地区面临的臭氧污染问题的严重性. 因此,十分有必要开展相关研究,发展臭氧客观预报方法,提升臭氧污染中长期预报的准确性,开展精细化臭氧预报预警业务,保护民众身体健康.



(a) 线上数值表示月份; (b) 蓝色虚线:《环境空气质量标准》(GB 3095-2012) 臭氧一级标准限值; (b) 红色虚线:《环境空气质量标准》(GB 3095-2012) 臭氧二级标准限值

图 1 上甸子站点臭氧浓度时间序列

Fig. 1 Time series of ozone at the SDZ site

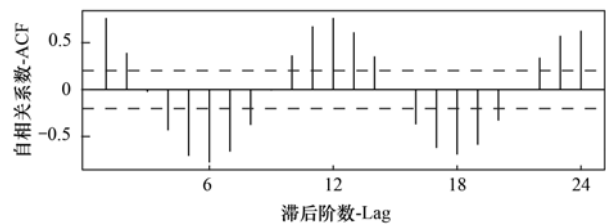
表 2 上甸子臭氧超标情况统计

Table 2 Statistics of ozone pollution at the SDZ site

年份	一级超标率/%	二级超标率/%	日最大 8 h 滑动平均值 (4 ~ 10 月均值)/ $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	缺失数据百分比/%
2015	60. 2	31. 9	179. 3	0. 3
2016	51. 8	27. 5	159. 2	0. 8
2017	51. 4	25. 6	154. 9	1. 4
2018	48. 8	20. 0	140. 4	9. 6
2019	58. 1	28. 5	162. 2	0. 0
2015 ~ 2019 年平均	54. 1	26. 7	159. 2	2. 4

2.2 利用季节性 ARIMA 模型进行臭氧月均值预报

考虑低时间分辨率的污染物长期数据的易获取性和消除日变化和周变化波动对长期预报的影响,本研究采用上甸子臭氧浓度月均值开展臭氧长期预报.上甸子臭氧浓度月均值的时间序列(图 1)和 ACF 图(图 2)表明,该站点 2007~2019 年臭氧浓度月均值具有明显的季节性,该时间序列为非平稳时间序列,在 ARIMA 建模预测时要首先对其进行平稳化处理,将时间序列转变为平稳时间序列.对数变换和差分是实现时间序列平稳化常用的方法,对季节性时间序列,应根据季节周期进行季节化差分.



蓝色虚线:自相关系数 2 倍标准差

图 2 上甸子站点臭氧月均值 ACF 图

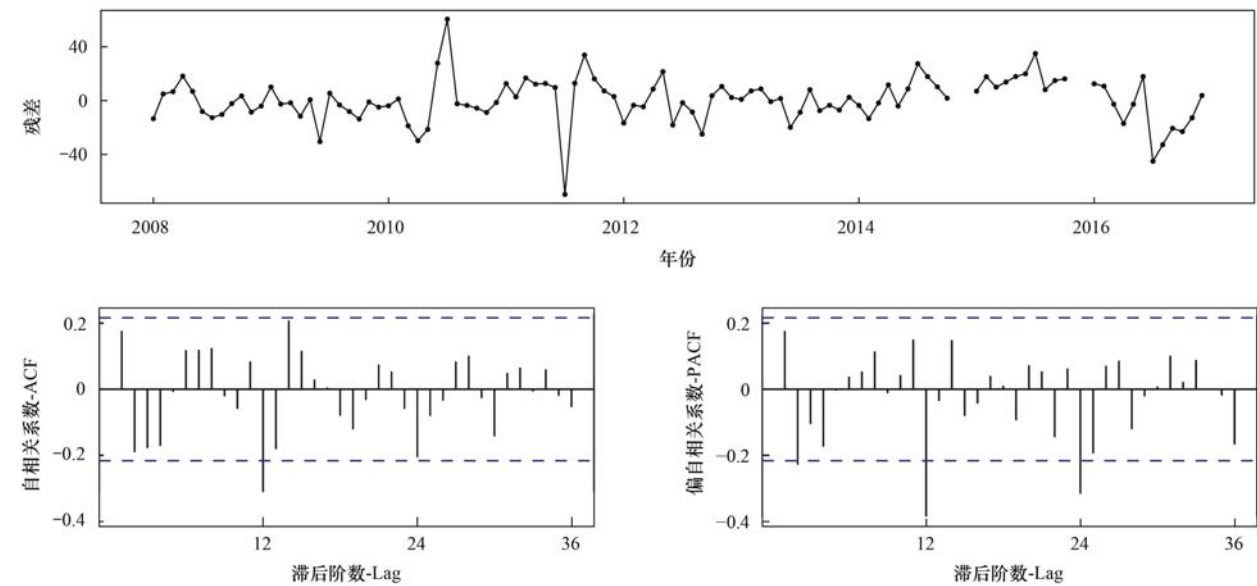
Fig. 2 ACF chart of monthly average ozone at the SDZ site

结合差分平稳化处理后的 ACF 和 PACF 图(图 3),可以构建臭氧月均值预报的 ARIMA 模型.其中,差分平稳化后的 ACF 图显示在滞后 12 阶有明显的突起,该突起显示出季节性 MA(1)的成分.在 PACF 图中,在滞后 2 阶时(PACF 图中左起第 2 根竖垂线)的突起显示出数据包含非季节性 AR(1)的成分,而滞后 12 和 24 阶的突起则显示出季节性 AR(2)的成分.因此综合考虑,构建一个可能的 ARIMA 模型为

$ARIMA(0,0,2)(2,1,1)_{12}$.用该模型以及该模型的衍生模型进行拟合,并计算了衍生模型的 AICc、AIC 和 BIC 值.在同阶差分模型中, $ARIMA(0,0,1)(1,1,1)_{12}$ 模型中的 AICc 值最小,因此可以选择 $ARIMA(0,0,1)(1,1,1)_{12}$ 模型为最优模型.

同时本研究使用 2007~2016 年上甸子臭氧月均值数据作为训练集进行模型拟合,将 2017~2019 年上甸子臭氧月均值数据作为测试集进行预测,评估模型的预测效果(表 3).对不同模型测试集的评估发现 $ARIMA(0,0,1)(1,1,1)_{12}$ 模型拥有最小的均方根误差(RMSE),表明该模型在对臭氧月均值的预报中具有良好的预报性能(表 3).同时为了验证模型的适用性,本研究将季节性 ARIMA 模型与指数平滑模型(ETS 模型)进行了比较,结果发现季节性 ARIMA 模型比 ETS 模型在臭氧月均值预报中具有更小的均方根误差,说明季节性 ARIMA 模型预报结果优于 ETS 模型.ETS 模型是季节性数据预报中常用的时间序列分析预报模型,在污染物预报中具有广泛的应用.本研究中臭氧月均值预报采用的季节性 ARIMA 模型与 ETS 模型相比准确度更高,进一步说明季节性 ARIMA 模型在臭氧的月均值长期预报中具有很好的适用性.

图 4 给出了上甸子 2017~2019 年臭氧月均值季节性 ARIMA 模型预测值和观测值的对比,可以看出预测值和观测值变化趋势吻合较好,计算模型预测值和观测值的相关系数 R 可达 0.951,该模型可以用于臭氧长期变化趋势的预测和评估.



蓝色虚线:自相关系数和偏自相关系数 2 倍标准差

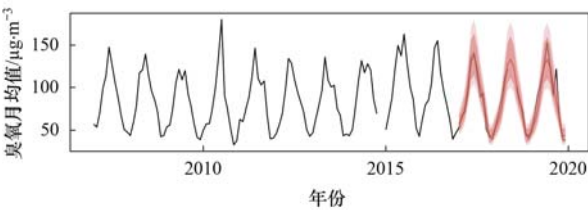
图 3 上甸子臭氧月均值时间序列 1 阶季节性差分变换平稳化处理后残差、ACF 和 PACF 图

Fig. 3 Time series of residuals, ACF, and PACF plots after the first-order seasonal difference transformation of the monthly average ozone value at the SDZ site

表 3 臭氧月均值 ARIMA 模型参数评价

Table 3 Evaluation of ARIMA model parameters for predicting monthly average ozone values

月均值模型选择	AIC	AICc	BIC	RMSE / $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$
ARIMA(0,0,1)(1,1,1) ₁₂	-117.2	-116.8	-106.5	10.2
ARIMA(0,0,1)(2,1,1) ₁₂	-116.6	-116	-103.3	10.36
ARIMA(0,0,2)(1,1,1) ₁₂	-115.2	-114.6	-101.9	10.2
ARIMA(0,0,1)(2,1,2) ₁₂	-114.8	-113.9	-98.8	10.37
ARIMA(0,0,2)(2,1,1) ₁₂	-114.7	-113.8	-98.7	10.35
ARIMA(0,0,2)(2,1,2) ₁₂	-112.8	-111.7	-94.2	10.38
ARIMA(0,0,1)(2,1,0) _{12auto}	-104.4	-104	-93.8	11.34
ETS(M,N,M)	1 144.2	1 148.8	1 186	15.46



红色阴影区域:预测值和置信区间

图 4 上甸子站点臭氧月均值预报结果

Fig. 4 Prediction of monthly average ozone values at the SDZ site

2.3 利用动态 ARIMA 模型进行臭氧中长期预报

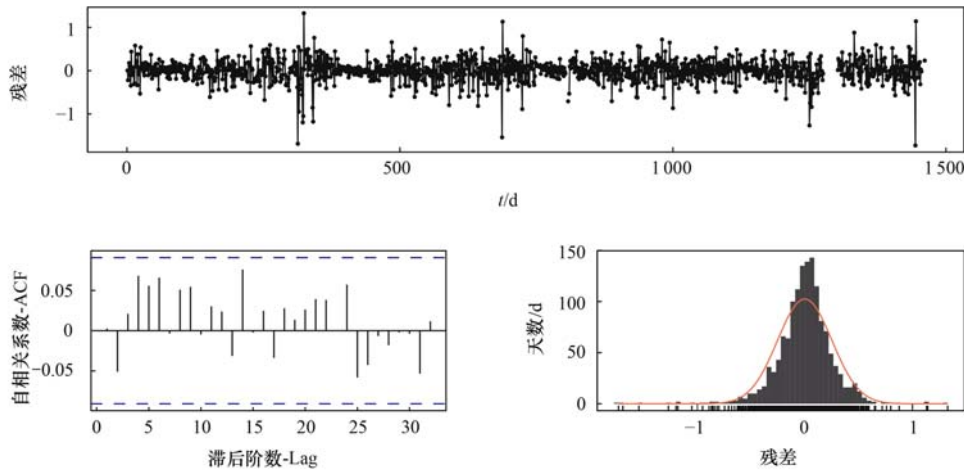
2.3.1 动态 ARIMA 模型构建

在上述对于臭氧月均值的预报中,仅利用长期臭氧月均值的历史观测资料进行季节性 ARIMA 模型建模,就能实现对未来 3 a 臭氧月均值的准确预报.由于污染物长期变化趋势波动相对较小,因此在预报建模时没有考虑随时间推移外部气象因素的影响.而在对高时间分辨率的臭氧浓度(如臭氧日最大 8 h 滑动平均值)的预测中,考虑外部气象因子的影响,可以提高时间序列分析模型的预报准确度.已有研究发现,臭氧的日最大 8 h 滑动平均值和日最高气温存在很好的相关性^[28~30].因

此在臭氧日最大 8 h 的预报中,考虑将日最高气温及其二次项作为协变量加入 ARIMA 模型中,建立动态 ARIMA 模型,进行臭氧日最大 8 h 滑动平均值的预测.

在模型中加入日最高气温及其二次项作为协变量,利用 `auto.arima()` 函数根据 AICc 选择合适的拟合模型进行臭氧日最大 8 h 滑动平均值预测建模.在进行预测前,需对构建的模型进行 ARIMA 残差的白噪声检验.图 5 结果表明,构建模型的残差值在 $y=0$ 上下小幅波动,其期望为 0,方差固定.残差序列表现为自相关特征,在任何 Lag 时差的序列之间自相关系数值在 2 倍标准差范围内,近似为 0(图 5).残差序列为正态分布,且 Ljung-Box Q 统计量检验的 P 值为 0.19(大于 0.05),进一步证明该模型拟合的残差时间序列为白噪声.综上,经过统计检验表明可以利用上述动态 ARIMA 模型,进行臭氧日最大 8 h 滑动平均值的预报.

利用 2015~2018 年的臭氧日最大 8 h 滑动平均值数据作为训练集,分别进行一般 ARIMA 模型和动态 ARIMA 模型拟合,结果表明两种时间序列分析



蓝色虚线:自相关系数 2 倍标准差

图 5 动态 ARIMA 模型拟合残差检验

Fig. 5 Residual test of dynamic ARIMA model

模型均具有较好的拟合效果,模型的拟合值和观测值变化趋势吻合较好,且观测值和模拟值之间的偏差较小. 相比较而言,动态 ARIMA 模型的 RMSE 值 ($29.9\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) 较一般 ARIMA 模型的 RMSE 值 ($32.3\text{ }\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) 更小,相关系数 R 更高(图 6). 动态

ARIMA 模型在加入日最高气温及二次项作为协变量以后具有更好的拟合效果. 因此,在对臭氧日最大 8 h 滑动平均值的预报中采用此方法对 2019 年 4 ~ 10 月的臭氧日最大 8 h 滑动平均值进行滚动预报,评估模型的预报效果.

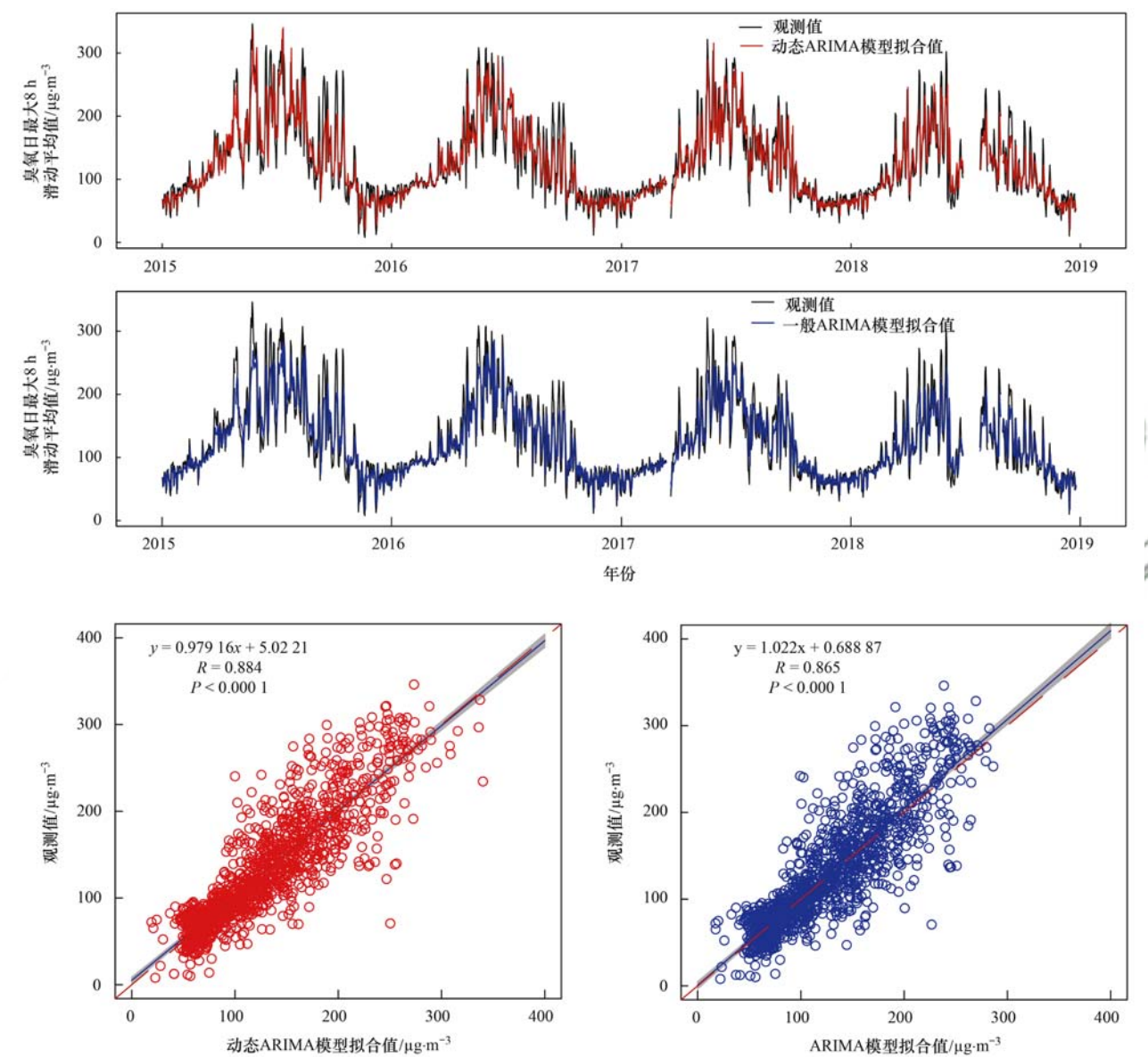


图6 上甸子站一般 ARIMA 模型和动态 ARIMA 模型的拟合结果

Fig. 6 Fitting results of normal ARIMA model and dynamic ARIMA model at the SDZ site

图 7 给出了 2019 年 4 ~ 10 月上甸子臭氧日最大 8 h 滑动平均值动态 ARIMA 模型和一般 ARIMA 模型的 7 d 滚动预报的预测值和观测值的对比,结果表明,尽管动态 ARIMA 模型和一般 ARIMA 模型在训练集的拟合中均表现良好,但是其模型的预报性能相差较大. 加入了日最高气温及其二次项作为协变量的动态 ARIMA 模型,模型预测值和观测值变化趋势一致性较好,模型预测值和观测值的相关系数为 0.670, RMSE 为 45.6

$\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,模型总体具有较好的预报准确性. 但是未加入日最高气温及其二次项作为协变量的 ARIMA 模型,模型预测值和观测值的相关系数仅为 0.296,预测值和观测值存在较大偏差,不能满足臭氧中长期预报的需求.

2.3.2 动态 ARIMA 模型有效预报时长分析

利用上甸子站点 2015 ~ 2019 年臭氧日最大 8 h 滑动平均值进行 ARIMA 建模预测分析表明,加入了日最高气温及其二次项作为协变量的动态 ARIMA

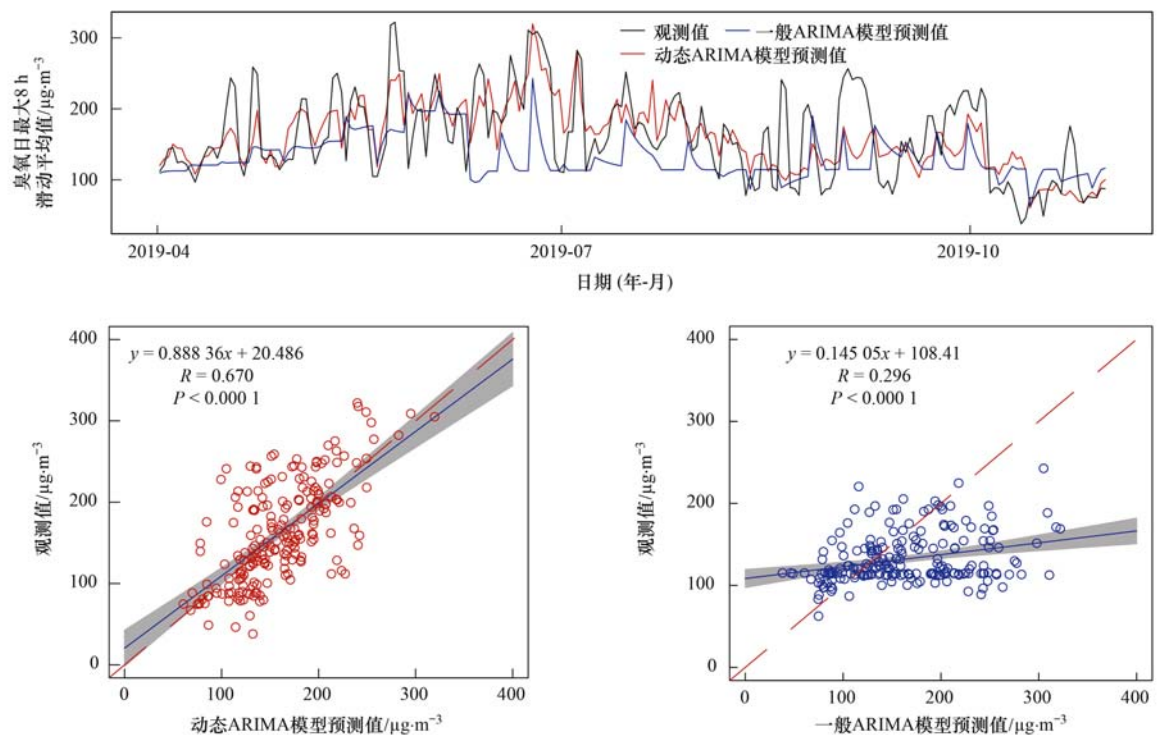


图7 上甸子站一般ARIMA模型和动态ARIMA模型的预报结果

Fig. 7 Forecasting results of normal ARIMA model and dynamic ARIMA model at the SDZ site

模型对臭氧日最大8 h 滑动平均值具有较好的预报效果. 本研究进一步比较分析了动态 ARIMA 模型在不同预报时长(3 d、7 d、15 d 和 1 个月)条件下模型预报性能表现. 结果表明,动态 ARIMA 模型在中长期(3 ~ 15 d)预报性能表现较为稳定,观测值和预测值之间的相关系数在 0.617 ~ 0.670 之间(表4). 因此,动态 ARIMA 模型可以用于臭氧日最大8 h 滑动平均值中长期的预报.

表4 动态 ARIMA 模型不同预报时长模型效果评价¹⁾

Table 4 Evaluation of dynamic ARIMA model for different forecasting durations				
预报时长	RMSE / $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	MAE / $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	MAPE/%	R
3 d	45.8	35.7	24.2	0.666
7 d	45.6	34.7	24.2	0.670
15 d	50.3	40.4	27.7	0.617
1 个月	50.6	40.6	29.2	0.582

1) RMSE 表示均方根误差 (root mean squared error), MAE 表示平均绝对误差 (mean absolute error), MAPE 表示均方绝对百分比误差 (mean absolute percentage error)

2.3.3 动态 ARIMA 模型预报普适性检验

为了检验动态 ARIMA 模型在京津冀地区臭氧中长期预报中的空间普适性,利用保定和天津站点2015 ~ 2019 年观测数据进行了7 d 臭氧日最大8 h 滑动平均值预报模型空间适用性检验. 和上甸子站点的结果类似,未考虑日最高气温影响的一般 ARIMA 模型在保定和天津站点臭氧日最大8 h 滑

动均值预报中,观测值和预测值的相关系数 R 分别为 0.454 和 0.455,而加入日最高气温及二次项作为协变量的动态 ARIMA 模型在保定和天津站点观测值和预报值的相关系数 R 可以提高到 0.748 和 0.723(图8). 表明该动态 ARIMA 模型在京津冀地区臭氧中长期预报中具有较好的稳定性和空间普适性.

3 结论

(1)季节性 ARIMA 模型可以充分考虑具有季节变化的污染物的变化特征,可用于臭氧月均值长期预报.

(2)动态 ARIMA 模型在臭氧中长期预报中优势突出,研究进一步验证了日最高气温是影响臭氧日最大8 h 浓度的关键因素,因此,在加入了日最高气温及二次项最为协变量以后,臭氧日最大8 h 滑动平均值的预报效果得到了很大提升,预测值和观测值的相关系数由 0.296 ~ 0.455 提升至 0.670 ~ 0.748, RMSE 得到了有效降低,尤其是对于臭氧浓度高值的模拟偏差得到了有效控制.

(3)动态 ARIMA 模型对臭氧日最大8 h 滑动平均值3 ~ 15 d 的中长期预报效果较为理想,且在多个站点都取得了很好的预报效果,因此该方法是臭氧日最大8 h 浓度中长期预报的稳定性和普适性方法.

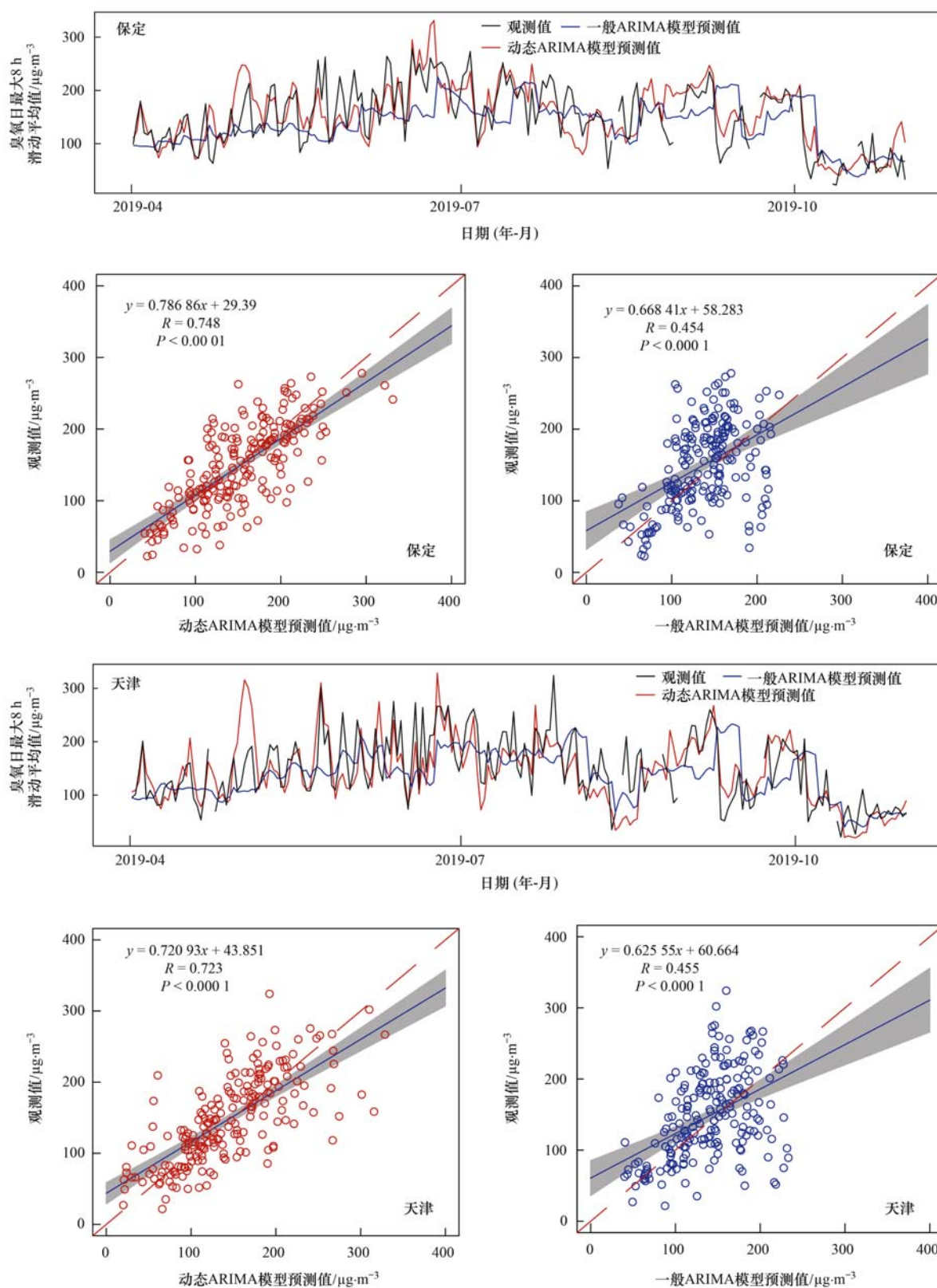


图 8 保定站和天津站一般 ARIMA 模型和动态 ARIMA 模型的预报结果

Fig. 8 Forecasting results of normal ARIMA model and dynamic ARIMA model at the Baoding site and the Tianjin site

参考文献:

- [1] Liu Y M, Wang T. Worsening urban ozone pollution in China from 2013 to 2017-part 1: the complex and varying roles of meteorology[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2020, **20** (11): 6305-6321.
- [2] Canella R, Borriello R, Cavicchio C, *et al.* Tropospheric ozone

effects on chlorine current in lung epithelial cells: an electrophysiological approach [J]. *Free Radical Biology and Medicine*, 2016, **96**: S58-S59.

- [3] Feng Z Z, Hu E Z, Wang X K, *et al.* Ground-level O₃ pollution and its impacts on food crops in China: a review [J]. *Environmental Pollution*, 2015, **199**: 42-48.

- [4] 余益军, 孟晓艳, 王振, 等. 京津冀地区城市臭氧污染趋势及原因探讨[J]. 环境科学, 2020, **41**(1): 106-114.
Yu Y J, Meng X Y, Wang Z, *et al.* Driving factors of the significant increase in surface ozone in the Beijing-Tianjin-Hebei region, China, during 2013-2018[J]. Environmental Science, 2020, **41**(1): 106-114.
- [5] 陆克定, 张远航, 苏杭, 等. 珠江三角洲夏季臭氧区域污染及其控制因素分析[J]. 中国科学: 化学, 2010, **40**(4): 407-420.
- [6] Lu K D, Guo S, Tan Z F, *et al.* Exploring atmospheric free-radical chemistry in China: the self-cleansing capacity and the formation of secondary air pollution[J]. National Science Review, 2019, **6**(3): 579-594.
- [7] Wang T, Xue L K, Brimblecombe P, *et al.* Ozone pollution in China: a review of concentrations, meteorological influences, chemical precursors, and effects[J]. Science of the Total Environment, 2017, **575**: 1582-1596.
- [8] Worden H M, Bowman K W, Worden J R, *et al.* Satellite measurements of the clear-sky greenhouse effect from tropospheric ozone[J]. Nature Geoscience, 2008, **1**(5): 305-308.
- [9] Monks P S, Archibald A T, Colette A, *et al.* Tropospheric ozone and its precursors from the urban to the global scale from air quality to short-lived climate forcer[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2015, **15**(15): 8889-8973.
- [10] Avnery S, Mauzerall D L, Liu J F, *et al.* Global crop yield reductions due to surface ozone exposure: 1. year 2000 crop production losses and economic damage[J]. Atmospheric Environment, 2011, **45**(13): 2284-2296.
- [11] 徐晓斌, 林伟立. 卫星观测的中国地区 1979-2005 年对流层臭氧变化趋势[J]. 气候变化研究进展, 2010, **6**(2): 100-105.
Xu X B, Lin W L. 1979-2005 trends of tropospheric ozone over China based on the satellite data[J]. Advances in Climate Change Research, 2010, **6**(2): 100-105.
- [12] Fu Y, Liao H, Yang Y. Interannual and decadal changes in tropospheric ozone in China and the associated chemistry-climate interactions: a review[J]. Advances in Atmospheric Sciences, 2019, **36**(9): 975-993.
- [13] Lu X, Hong J Y, Zhang L, *et al.* Severe surface ozone pollution in China: a global perspective[J]. Environmental Science & Technology Letters, 2018, **5**(8): 487-494.
- [14] Ding A J, Wang T, Thouret V, *et al.* Tropospheric ozone climatology over Beijing: analysis of aircraft data from the MOZAIC program[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2008, **8**(1): 1-13.
- [15] 陈鹏飞, 张蕾, 权建农, 等. 北京地区臭氧时空分布特征的飞机探测研究[J]. 环境科学, 2012, **33**(12): 4141-4150.
Chen P F, Zhang Q, Quan J N, *et al.* Temporal and spatial distribution of ozone concentration by aircraft sounding over Beijing[J]. Environmental Science, 2012, **33**(12): 4141-4150.
- [16] 邓涛, 吴兑, 邓雪娇, 等. 珠江三角洲一次典型复合型污染过程的模拟研究[J]. 中国环境科学, 2012, **32**(2): 193-199.
Deng T, Wu D, Deng X J, *et al.* Simulation of a typical complex pollution process over Pearl River Delta area[J]. China Environmental Science, 2012, **32**(2): 193-199.
- [17] Xu Z N, Huang X, Nie W, *et al.* Impact of biomass burning and vertical mixing of residual-layer aged plumes on ozone in the Yangtze River Delta, China: a tethered-balloon measurement and modeling study of a multiday ozone episode[J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2018, **123**(20): 11786-11803.
- [18] Wang T, Ding A J, Gao J, *et al.* Strong ozone production in urban plumes from Beijing, China[J]. Geophysical Research Letters, 2006, **33**(21), doi: 10.1029/2006GL027689.
- [19] Ma Z Q, Xu J, Quan W J, *et al.* Significant increase of surface ozone at a rural site, north of eastern China[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2016, **16**(6): 3969-3977.
- [20] 安俊琳, 王跃思, 朱彬. 主成分和回归分析方法在大气臭氧预报的应用——以北京夏季为例[J]. 环境科学学报, 2010, **30**(6): 1286-1294.
An J L, Wang Y S, Zhu B. Principal component and multiple regression analysis predicting ozone concentrations: case study in summer in Beijing[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2010, **30**(6): 1286-1294.
- [21] 陈亚玲, 赵智杰. 基于小波变换与传统时间序列模型的臭氧浓度多步预测[J]. 环境科学学报, 2013, **33**(2): 339-345.
Chen Y L, Zhao Z J. A multi-step-ahead prediction of ozone concentration using wavelet transform and traditional time series model[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2013, **33**(2): 339-345.
- [22] 朱佳, 王振会, 金天力, 等. 基于小波分解和最小二乘支持向量机的大气臭氧含量时间序列预测[J]. 气候与环境研究, 2010, **15**(3): 295-302.
Zhu J, Wang Z H, Jin T L, *et al.* Combination of wavelet decomposition and least square support vector machine to forecast atmospheric ozone content time series[J]. Climatic and Environmental Research, 2010, **15**(3): 295-302.
- [23] 李梓铭, 赵秀娟, 孙兆彬, 等. 基于相似集合预报技术的臭氧预报释用研究[J]. 中国环境科学, 2020, **40**(2): 475-484.
Li Z M, Zhao X J, Sun Z B, *et al.* Research on the interpretation and correction of numerical ozone forecast based on analog ensemble[J]. China Environmental Science, 2020, **40**(2): 475-484.
- [24] 黄文杰, 曹鸿兴, 顾岚, 等. 时间序列的 ARIMA 季节模型在长期预报中的应用[J]. 科学通报, 1980, **25**(22): 1030-1032.
- [25] 王燕. 时间序列分析: 基于 R[M]. 北京: 中国人民大学出版社, 2015.
- [26] Hyndman R J, Athanasopoulos G. Forecasting: principles and practice[M]. (2nd edition). Melbourne, Australia: OTexts, 2018.
- [27] Box G E P, Jenkins G M. Time series analysis: forecasting and control[M]. San Francisco: Holden-Day, 1970.
- [28] Gu Y X, Li K, Xu J M, *et al.* Observed dependence of surface ozone on increasing temperature in Shanghai, China[J]. Atmospheric Environment, 2020, **221**, doi: 10.1016/j.atmosenv.2019.117108.
- [29] Pu X, Wang T J, Huang X, *et al.* Enhanced surface ozone during the heat wave of 2013 in Yangtze River Delta region, China[J]. Science of the Total Environment, 2017, **603-604**: 807-816.
- [30] Gao Y, Zhang L, Zhang G, *et al.* The climate impact on atmospheric stagnation and capability of stagnation indices in elucidating the haze events over north China plain and northeast China[J]. Chemosphere, 2020, **258**, doi: 10.1016/j.chemosphere.2020.127335.

CONTENTS

Transmission of Coronavirus via Aerosols and Influence of Environmental Conditions on Its Transmission	LI Xue, JIANG Jing-kun, WANG Dong-bin, <i>et al.</i> (3091)
Impacts of Meteorology and Emission Variations on PM _{2.5} Concentration Throughout the Country During the 2020 Epidemic Period	LU Shi-ze, SHI Xu-rong, XUE Wen-bo, <i>et al.</i> (3099)
Factors and Their Interaction Effects on the Distribution of PM _{2.5} in the Yangtze River Delta Based on Grids	HUANG Xiao-gang, ZHAO Jing-bo, XIN Wei-dong (3107)
Application of ARIMA Model for Mid- and Long-term Forecasting of Ozone Concentration	LI Ying-ruo, HAN Ting-ting, WANG Jun-xia, <i>et al.</i> (3118)
Pollution Characteristics and Sources of Wintertime Atmospheric Brown Carbon at a Background Site of the Yangtze River Delta Region in China	ZHAO Yu, WU Can, WANG Yi-qian, <i>et al.</i> (3127)
Spatio-temporal Variation Characteristics Monitored by Remotely Sensed Technique of PM _{2.5} Concentration and Its Influencing Factor Analysis in Sichuan Basin, China	LI Meng-zhen, ZHANG Ting-bin, YI Gui-hua, <i>et al.</i> (3136)
Construction of Continuous Dynamic Model for River Networks and Its Application in Simulation of Spatiotemporal Migration of Typical Biocides	XING Cheng, ZHANG Qian-qian, CAI Ya-ya, <i>et al.</i> (3147)
Response of Riverine Nitrogen Exports to Land Use Pattern and Hydrological Regime in the Jiulong River Watershed	HUANG Ya-ling, HUANG Jin-liang (3156)
Correlation Between Microplastics Pollution and Eutrophication in the Near Shore Waters of Dianchi Lake	YUAN Hai-ying, HOU Lei, LIANG Qi-bin, <i>et al.</i> (3166)
Analysis of Water Quality and Exchange Flux of Interstitial Water-Overlying Water in Sediments of Baiyangdian Entrance Area in Summer	ZHANG Tian-na, ZHOU Shi-lei, CHEN Zhao-ying, <i>et al.</i> (3176)
Distribution Characteristics and Pollution Evaluation of Nitrogen and Organic Matter in Overlying Water and Sediment of Guyun River and Jinshan Lake in Zhenjiang City	YUAN Lu-bin, XING Shu-yu, LIU Xin, <i>et al.</i> (3186)
Spatial Distribution Characteristics of Phosphorus Fractions and Release Risk in Sediments of Honghu International Importance Wetland	LIU Yong-jiu, HUANG Su-zhen, ZHANG Lu, <i>et al.</i> (3198)
Pollution Distribution and Ecological Risk Assessment of Heavy Metals in River Sediments from the Ancient Town of Suzhou	BAI Dong-rui, ZHANG Tao, BAO Jun-song, <i>et al.</i> (3206)
Spatio-temporal Distribution Characteristic and Risk Assessment of Heavy Metals in Soils Around Centralized Drinking Water Sources in Wuhan	ZHU Jing, HOU Yao-zong, ZOU Shu-cheng, <i>et al.</i> (3215)
Hydro-chemical Characteristics and Ion Origin Analysis of Surface Groundwater at the Shengjin Lake and Yangtze River Interface	CUI Yu-huan, WANG Jie, LIU You-cun, <i>et al.</i> (3223)
Identifying the Sources of Groundwater NO ₃ ⁻ -N in Agricultural Region of Qingdao	KOU Xin-yue, DING Jun-jun, LI Yu-zhong, <i>et al.</i> (3232)
Analysis of Phytoplankton Community Stability and Influencing Factors in a Tributary of the Three Gorges Reservoir	HE Shu-han, OUYANG Tian, ZHAO Lu, <i>et al.</i> (3242)
Distribution Characteristics and Influencing Factors of Phytoplankton Community in Harbin Urban River Network During Wet Season	LU Feng, LI Lei, QI Qing-song, <i>et al.</i> (3253)
Response of Microbial Community to Natural Organic Matter Input in Lake Sediments	JU Qi, ZHANG Qi, CAO Chi-cheng, <i>et al.</i> (3263)
Effects of Water Supply Quality and Social Activity on the Microbial Community in Baiyangdian Wetland	ZHAO Zhi-rui, WU Hui-qing, BI Yu-fang, <i>et al.</i> (3272)
Characteristics of Dissolved Organic Matter in Overlying Water During Algal Bloom Decay	LI Xiang, LI Zhi-chun, WANG Xuan, <i>et al.</i> (3281)
Water Pollution Characteristics and Source Apportionment in Rapid Urbanization Region of the Lower Yangtze River: Considering the Qinhuai River Catchment	MA Xiao-xue, GONG Chang, GUO Jia-xun, <i>et al.</i> (3291)
Contamination Characteristics of Surface Runoff in Densely Populated Areas in Downstream Yangtze River, China	GUO Wen-jing, ZHANG Zhi-yong, WEN Xue-zheng, <i>et al.</i> (3304)
Characteristics of Pollutant Dynamics Under Rainfall-Runoff Events in the Chaohe River Watershed	BAO Xin, JIANG Yan, HU Yu-cong (3316)
Influence of Impervious Surface Roughness on Accumulation and Erosion of Urban Non-Point Source Particles	SHAN Xi-huan, XIE Wen-xia, LIAO Yun-jie, <i>et al.</i> (3328)
Probabilistic Risk Assessment of Arsenic Exposure Through Drinking Water Intake in Chinese Residents	QIN Ning, LIU Yun-wei, HOU Rong, <i>et al.</i> (3338)
Removal Behavior of Protein-like Dissolved Organic Matter During Different Water Treatment Processes in Full-Scale Drinking Water Treatment Plants	LI Meng-ya, SONG Yu-ying, ZHANG Xiao-lan, <i>et al.</i> (3348)
Distribution of Heavy Metals and Their Corresponding Nanoparticles in Different Treatment Unit Processes in the Sewage Treatment Plant	WANG Du-jia, HE Shuai, ZHOU Xiao-xia (3358)
Metagenomic Analysis of Resistance Genes in Membrane Cleaning Sludge	DU Cai-li, LI Zhong-hong, LI Xiao-guang, <i>et al.</i> (3366)
Distribution and Removal of Antibiotic-Resistant Bacteria and Antibiotic Resistance Genes in Petrochemical Wastewater Treatment Plants	TANG Zhen-ping, XIAO Sha-sha, DUAN Yi, <i>et al.</i> (3375)
Treatment of Medium Ammonium Wastewater by Single-stage Partial Nitrification-ANAMMOX SMBBR	LÜ Kai, SHAO Xian-ming, WANG Kang-zhou, <i>et al.</i> (3385)
Two-Stage Denitrification Process Performance with Solid Slow-Release Carbon Source	TANG Yi, MA Yong-wen, WAN Jin-quan, <i>et al.</i> (3392)
Effect of Ozone Dosage on Sludge Settleability and Biological Nutrient Removal in SBR System	LÜ Yong-tao, ZHU Chuan-shou, ZHANG Xu-yang, <i>et al.</i> (3400)
First Extended Anaerobic Phase Enhanced Nitrogen and Phosphorus Removal by Aerobic Granular Sludge Under Intermittent Gradient Aeration	ZHANG Yu-jun, LI Dong, WANG Xin-xin, <i>et al.</i> (3405)
Effect of Rate of Salinity Increase on the Performance and Microbial Community Structure of Sequencing Batch Reactors	GU Bai-ming, JIN Chun-ji, WEN Chun, <i>et al.</i> (3413)
Effects of Cold Acclimation on the Activity of Autotrophic Nitrogen Removal in Granular Sludge and Its Bacterial Population Structure	QIAN Fei-yue, LIU Yu-xin, WANG Jian-fang, <i>et al.</i> (3422)
Stabilization of Heavy Metals in Municipal Sludge Using a Slag-Based Modifying Agent	ZHANG Fa-wen, DONG Ming-kun, CHEN Chen-hui, <i>et al.</i> (3430)
Role of Land Use Changes on Ammonia Emissions from Agricultural Ecosystems in the Yangtze River Delta Region from 2000 to 2018	WANG Wen-jin, WANG Qing, ZHU An-sheng, <i>et al.</i> (3442)
Effects of Wheat Straw Hydrochar and Its Modified Product on Rice Yield and Ammonia Volatilization from Paddy Fields	HAN Chen, HOU Peng-fu, XUE Li-hong, <i>et al.</i> (3451)
Effects of Water and Fertilization Management on CH ₄ and N ₂ O Emissions in Double-rice Paddy Fields in Tropical Regions	LI Jin-qiu, SHAO Xiao-hui, GOU Guang-lin, <i>et al.</i> (3458)
Community Characteristics of Methanogens and Methanogenic Pathways in Salt-tolerant Rice Soil	YANG Yu-hong, HE Hui, MI Tie-zhu, <i>et al.</i> (3472)
Effect of Ferric-carbon Micro-electrolysis on Greenhouse Gas Emissions from Constructed Wetlands	ZHAO Zhong-jing, HAO Qing-ju, TU Ting-ting, <i>et al.</i> (3482)
Screening and Evaluation of Methods for Determining Available Lead (Pb) and Cadmium (Cd) in Farmland Soil	CHEN Ying, LIU Han-yi, LIU Na, <i>et al.</i> (3494)
Spatial Distribution Trends and Influencing Factors of Typical Heavy Metals in Subtropical Alpine Forest Soils: A Case Study from Ailao Mountain in Yunnan Province	LIU Xu, WANG Xun, WANG Ding-yong (3507)
Environmental Background Values of Heavy Metals and Physicochemical Properties in Different Soils in Shenzhen	LIN Ting, ZHAO Shu-hua, XI Xiu-ping, <i>et al.</i> (3518)
Screening of Amendments for Simultaneous Cd and As Immobilization in Soil	ZHOU Si-jiang, LIU Zhen-yan, XIONG Shuang-lian, <i>et al.</i> (3527)
Simultaneous Immobilization of Arsenic, Lead, and Cadmium in Paddy Soils Using Two Iron-based Materials	YUAN Feng, TANG Xian-jin, WU Ji-zi, <i>et al.</i> (3535)
Pollution Characteristics of Organophosphate Esters in Frozen Soil on the Eastern Edge of Qinghai-Tibet Plateau	LIU Li-ya, YIN Hong-ling, JIAN Lin-jie, <i>et al.</i> (3549)
Analysis of Spatial Distribution and Influencing Factors of Nitrogen and Phosphorus Fertilizer Application Intensity in Chengdu Plain	LIU Qi-xin, WANG Chang-quan, LI Bing, <i>et al.</i> (3555)
Different Responses of Soil Dissolved Organic Matter to Different Types of Compost	XI Bei-dou, WANG Yan, TAN Wen-bing, <i>et al.</i> (3565)