

目次

气候变化对中国夏季臭氧影响	胡安琪, 谢晓栋, 龚康佳, 侯宇晖, 胡建林 (1801)
基于 EOF 分解和 KZ 滤波的 2019~2021 年中国臭氧时空变化及驱动因素分析	王浩琪, 张裕芬, 罗忠伟, 王艳阳, 戴启立, 毕晓辉, 吴建会, 冯银厂 (1811)
华北工业城市夏季大气臭氧生成机制及减排策略	郑镇森, 窦建平, 张国涛, 李丽明, 徐勃, 杨文, 白志鹏 (1821)
2015~2020 年中国城市 PM _{2.5} -O ₃ 复合污染时空演变特征	牛笑笑, 钟艳梅, 杨璐, 易嘉慧, 慕航, 吴倩, 洪松, 何超 (1830)
2015~2021 年京津冀及周边地区 PM _{2.5} 和臭氧复合污染时空特征分析	宋小涵, 燕丽, 刘伟, 贺晋瑜, 王亚晨, 黄同林, 李园园, 陈敏, 孟静静, 侯战方 (1841)
2000~2020 年中国典型经济区 PM _{2.5} 时空变化及其与植被景观格局的关系	徐勇, 李欣怡, 黄雯婷, 郭振东, 盘钰春, 郑志威, 戴强玉 (1852)
北京市核心区冬春季大气离子沉降量特征及来源解析	赵宇, 李贝贝, 黄玉虎, 梁静, 杨洪玲, 秦建平, 朱玲 (1865)
南京近郊农田大气颗粒物及金属干沉降输入特征	刘翠英, 靳浩, 樊建凌 (1873)
西安冬季 PM _{2.5} 中不同极性水溶性有机物的污染特征及氧化潜势	罗玉, 黄沙沙, 张甜, 孙健, 沈振兴 (1882)
机动车源和民用燃料源颗粒物中有机碳和元素碳的排放特征	王红磊, 刘思略, 孙杰娟, 刘煥武, 赵天良, 裴宇僊, 可玥, 武自豪, 刘诗云 (1890)
伊犁河谷核心区春季 PM _{2.5} 组分特征及来源解析	谷超, 徐涛, 马超, 伊布提哈尔·加帕尔, 郭丽瑶, 李新琪, 杨文 (1899)
基于高分辨率网格的郑州市城镇居民 PM _{2.5} 暴露浓度与健康风险变化评估	李媛, 徐艺斐, 袁明浩, 苏方成, 王申博, 王克, 张瑞芹 (1911)
基于多源数据融合的河南省建材行业排放清单	刘晓, 胡京南, 王红梅, 杨丽, 张皓 (1924)
开封市城区冬季大气挥发性有机物污染特征及来源解析	施雨其, 郑凯允, 丁玮婷, 刘金平, 陈洪光, 高光, 王玲玲, 王楠, 马双良, 郑瑶, 谢绍东 (1933)
2020 年和 2021 年南京城区臭氧生成敏感性和 VOCs 来源变化分析	陆晓波, 王鸣, 丁峰, 喻义勇, 张哲海, 胡崑 (1943)
北京市城区夏季大气 VOCs 变化特征及臭氧生成潜势	张蕊, 孙雪松, 王裕, 王飞, 罗志云 (1954)
青岛市臭氧污染与非污染期间 VOCs 化学特征及来源解析	贾智海, 顾瑶, 孔翠丽, 宋江邦, 孟赫, 石来元, 吴建会, 刘保双 (1962)
基于总过氧自由基观测研究合肥市西郊夏季 O ₃ 生成特征	俞辉, 韦娜娜, 徐学哲, 刘芊芊, 姚易辰, 赵卫雄, 张为俊 (1974)
“大气十条”政策的节能降碳效果评估与创新中介效应	李少林, 王齐齐 (1985)
北京市减污降碳协同控制情景模拟和效应评估	俞珊, 张双, 张增杰, 翟艳芝, 刘桐坤 (1998)
基于不同排放清单的长三角人为 CO ₂ 排放模拟	马心怡, 黄文晶, 胡凝, 肖薇, 胡诚, 张弥, 曹畅, 赵佳玉 (2009)
武汉汉江水源水质变化趋势及风险分析	卓海华, 姜保峰, 徐杰, 陈洁, 陈杰, 兰秀薇, 范文重, 欧阳雪姣, 兰静 (2022)
长江武汉段水源地典型抗生素及抗性基因污染特征与生态风险评价	李柏林, 张贺, 王俊, 沙雪妮, 陈晓飞, 卓海华 (2032)
陕北矿区典型河流多环芳烃的赋存特征、来源及毒性风险分析	吴喜军, 董颖, 赵健, 刘静, 张亚宁 (2040)
典型湖泊有机聚集体时空特征及驱动因子	谢贵娟, 龚伊, 朱富成, 刘昌利, 卢宝伟, 邓辉, 汤祥明 (2052)
桂林市不同功能型公园水体微塑料的分布特征及风险评估	李沛钊, 吴莉, 黄菲菲, 林才霞, 舒小华, 张倩 (2062)
长江流域浮游植物群落的环境驱动及生态评价	张静, 胡愈圻, 胡圣, 黄杰 (2072)
环境异质性对三峡库区支流香溪河附石硅藻群落的影响及驱动作用	纪璐璐, 赵璐, 欧阳添, 杨宋琪, 郑保海, 杜雨欣, 李玉鑫, 李佳欣, 施军琼, 吴忠兴 (2083)
武汉市 3 种类型湖泊浮游植物群落特点及关键影响因素	张浩坤, 闵奋力, 崔慧荣, 彭雪, 张心怡, 张淑烟, 李竹栖, 葛芳杰, 张璐, 吴振斌, 刘碧云 (2093)
重金属污染对不同生境中微生物群落结构的影响	何一凡, 肖新宗, 王佳文 (2103)
毫清河水体细菌群落的结构和分布特征	王森, 陈建文, 张红, 李君剑 (2113)
微塑料暴露对小棒指软珊瑚 (<i>Sinularia microclavata</i>) 共附生细菌群落结构和功能的影响	刘敏, 车文学, 曾映旭, 边伟杰, 吕淑果, 穆军 (2122)
上海市从源头到龙头的饮用水新型污染物分布特征及健康风险评价	严棋 (2136)
铝改性生物炭对水体低浓度氟的吸附特性	刘艳芳, 高玮, 刘蕊, 尹思婕, 张妙雨, 刘晓帅, 李再兴 (2147)
典型雌激素在微塑料上的吸附特征及位点能量分布	刘姜艳, 郑密密, 胡嘉梧, 柳玉荣, 贺德春, 潘杰 (2158)
面向工业园区废水臭氧氧化深度处理性能评价的模型污染物选择与评估	辛勃, 单超, 吕路 (2168)
基于地理探测器和多源数据的耕地土壤重金属来源驱动因子及其交互作用识别	张宏泽, 崔文刚, 刘绥华, 崔瀚文, 黄月美 (2177)
基于 APCS-MLR 和 PMF 模型的煤矸山周边耕地土壤重金属污染特征及源解析	马杰, 沈智杰, 张萍萍, 刘萍, 刘今朝, 孙静, 王玲灵 (2192)
基于蒙特卡罗模拟的铅锌冶炼厂周边农田土壤重金属健康风险评估	黄剑波, 姜登登, 温冰, 王磊, 石佳奇, 周艳 (2204)
基于 BP 神经网络预测北京市加油站周边土壤多环芳烃含量	马赛炎, 魏海英, 马瑾, 刘奇缘, 吴颐杭, 屈雅静, 田雨欣, 赵文浩 (2215)
石家庄市土壤中喹诺酮类抗生素时空分布及其风险评估	赵鑫宇, 陈慧, 赵波, 宋圆梦, 卢梦淇, 崔建升, 张璐璐, 李双江 (2223)
典型黑色岩系地质高背景区土壤和农产品重金属富集特征与污染风险	邓帅, 段佳辉, 宁墨兔, 谭林, 蒲刚, 陈际行, 齐小兵, 蒋尚智, 谢桃园, 刘意章 (2234)
岩溶区不同母质土壤 Cd 地球化学特征及玉米籽实 Cd 含量预测	戴亮亮, 徐宏根, 巩浩, 彭志刚, 肖凯琦, 吴欢欢, 许青阳, 郭军, 汤媛媛, 张俊 (2243)
龙岩市不同利用类型土壤及农作物 Pb、Cd 和 As 污染风险与贡献分析	王蕊, 陈楠, 张二喜 (2252)
小麦籽粒镉含量影响因素 Meta 分析和决策树分析	刘娜, 张少斌, 郭欣宇, 宁瑞艳 (2265)
黄土高原次生林演替过程土壤有机碳库及其化学组成响应特征	刘涵宇, 刘颖异, 张琦, 封伦, 高起乾, 任成杰, 韩新辉 (2275)
短期氮磷添加对祁连山亚高山草地土壤呼吸组分的影响	江原, 甘小玲, 曹丰丰, 赵传燕, 李伟斌 (2283)
黄河源区斑块退化高寒草甸土壤微生物多样性对长期封育的响应	杨鹏年, 李希来, 李成一, 段成伟 (2293)
不同海拔拔箭锦鸡儿根际和非根际土壤细菌群落多样性及 PICRUSt 功能预测	李媛媛, 徐婷婷, 艾喆, 魏庐璐, 马飞 (2304)
模拟酸雨及氮沉降对马尾松林土壤细菌群落结构及其多样性的影响	王楠, 钱少郁, 潘小承, 陈一磊, 白尚斌, 徐飞 (2315)
磷石膏和碱蓬对盐渍化土壤水盐及细菌群落结构的影响	刘月, 杨树青, 张万峰, 姜帅 (2325)
菌渣与化肥肥施对稻田土壤微生物群落组成及多样性的影响	耿和田, 王旭东, 石思博, 叶正钱, 周文晶 (2338)
增氧对不同秸秆还田稻田田面水养分动态及温室气体排放的影响	胡锦涛, 薛利红, 钱聪, 魏利祥, 曹帅 (2348)
外源褪黑素对胁迫下水稻幼苗生长和抗氧化系统的影响	储玉檀, 李颜, 黄益宗, 保琼莉, 孙红羽, 黄永春 (2356)
面向 2035 的节能与新能源汽车全生命周期碳排放预测评价	付佩, 兰利波, 陈颖, 郝卓, 邢云翔, 蔡旭, 张春梅, 陈轶嵩 (2365)
农田土壤微塑料分布、来源和行为特征	薄录吉, 李冰, 张凯, 马荣辉, 李彦, 王艳芹, 孙斌, 刘月岩 (2375)
农田土壤除草剂污染的修复技术研究进展	胡芳雨, 安婧, 王宝玉, 徐明恺, 张惠文, 魏树和 (2384)
我国黑土地农田土壤除草剂残留特征研究及展望	李睿, 吴秋梅, 赵归梅, 胡文友, 田康, 黄标, 吴祥为, 刘峰, 赵玉国, 赵永存 (2395)
《环境科学》征订启事(1910)	《环境科学》征稿简则(1984)
信息	(2167, 2191, 2324)

基于 EOF 分解和 KZ 滤波的 2019 ~ 2021 年中国臭氧时空变化及驱动因素分析

王浩琪, 张裕芬*, 罗忠伟, 王艳阳, 戴启立, 毕晓辉, 吴建会, 冯银厂

(南开大学环境科学与工程学院, 中国气象局-南开大学大气环境与健康研究联合实验室, 国家环境保护城市空气颗粒物污染防治重点实验室, 天津 300350)

摘要: 基于我国 337 个地级行政区 2019 ~ 2021 年的 3 ~ 8 月 O_3 逐时浓度数据及同期气象数据, 使用经验正交函数 (EOF) 分解, 分析了我国 O_3 浓度的主要空间分布模态变化趋势及其主要气象驱动因素. 选取 31 个省会城市, 利用 KZ 滤波将 O_3 及气象因子的时间序列分解为短期分量、季节分量和长期分量, 结合逐步回归模型, 建立 O_3 与气象要素之间的关系, 进而重构“气象调整”后 O_3 浓度的长期分量时间序列. 结果表明, 在我国 O_3 浓度变率的总体空间特征基本稳定的背景下, O_3 浓度的第一模态整体呈趋同性变化, 即 O_3 浓度变率的高值区域波动性减弱, 低值区域波动性增强. 气象调整前后不同城市 O_3 浓度的变化趋势存在一定差异, 大部分城市 O_3 浓度经调整后的长期分量较调整前更“平缓”. 其中, 气象因素对石家庄、济南和广州等城市 O_3 浓度长期变化的影响较大, 而前体物排放变化对福州、海口、长沙、太原、哈尔滨和乌鲁木齐等城市长期变化的贡献相对较大, 北京、天津、长春和昆明 O_3 浓度长期变化趋势受排放和气象的影响均较大.

关键词: 臭氧(O_3); 时空特征; 气象调整; 经验正交函数 (EOF); KZ 滤波

中图分类号: X515 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2023)04-1811-10 DOI: 10.13227/j.hjxx.202204070

Spatial-temporal Variation and Driving Factors of Ozone in China from 2019 to 2021 Based on EOF Technique and KZ Filter

WANG Hao-qi, ZHANG Yu-fen*, LUO Zhong-wei, WANG Yan-yang, DAI Qi-li, BI Xiao-hui, WU Jian-hui, FENG Yin-chang

(State Environment Protection Key Laboratory of Urban Particulate Air Pollution Prevention, China Meteorological Administration-Nankai University Cooperative Laboratory for Atmospheric Environment-Health Research, College of Environmental Science and Engineering, Nankai University, Tianjin 300350, China)

Abstract: Based on the hourly O_3 concentration data of 337 prefectural-level divisions and simultaneous surface meteorological data in China, we applied empirical orthogonal function (EOF) analysis to analyze the main spatial patterns, variation trends, and main meteorological driving factors of O_3 concentration in China from March to August in 2019-2021. In this study, a KZ (Kolmogorov-Zurbenko) filter was used to decompose the time series of O_3 concentration and simultaneous meteorological factors into corresponding short-term, seasonal, and long-term components in 31 provincial capitals. Then, the stepwise regression was used to establish the relationship between O_3 and meteorological factors. Ultimately, the long-term component of O_3 concentration after “meteorological adjustment” was reconstructed. The results indicated that the first spatial patterns of O_3 concentration showed a convergent change, that is, the volatility of O_3 concentration was weakened in the high-value region of variability and enhanced in the low-value region. Before and after the meteorological adjustment, the variation trend of O_3 concentration in different cities was different to some extent. The adjusted curve was “flatter” in most cities. Among them, Fuzhou, Haikou, Changsha, Taiyuan, Harbin, and Urumqi were greatly affected by emissions. Shijiazhuang, Jinan, and Guangzhou were greatly affected by meteorological conditions. Beijing, Tianjin, Changchun, and Kunming were greatly affected by emissions and meteorological conditions.

Key words: surface ozone (O_3); spatial-temporal characteristics; meteorological adjustment; empirical orthogonal function (EOF); KZ filter

臭氧(O_3)污染是我国面临的主要空气污染问题之一^[1]. 过去几十年间, 随着我国工业化与城市化水平提高, O_3 前体物排放量增大, 导致我国近地面 O_3 浓度明显上升^[2,3], 特别在中国东部人口密集地区, 以 $2 \sim 6 \mu\text{g} \cdot (\text{m}^3 \cdot \text{a})^{-1}$ 的速度快速增长^[4]. 2013 年 9 月, 国务院颁布了“大气污染防治行动计划”, 此后 7 年间, 全国 74 个重点城市 $\text{PM}_{2.5}$ 年均浓度下降了 47%, 而 O_3 年评价 (日最大 8 h 滑动平均 90 百分位浓度) 上升 29%^[5]. 近年来, 我国 O_3 污染呈加重趋势, 以 O_3 为首要污染物的中度及以上污染天数占比呈上升趋势, O_3 已成为影响我国环境空气质量的重要因素^[6].

影响 O_3 污染的因素十分复杂. 国内外学者从

O_3 的污染特征^[7]、形成机制^[8,9]、成因来源^[10,11]和预测预报^[12-14]等诸多方面开展研究, 为臭氧污染的防治提供依据. O_3 呈现明显的区域性污染特征, 我国自动监测网络的建设完善, 为研究全国尺度 O_3 的时空分布特征提供了有力支撑. 经验正交函数 (empirical orthogonal function, EOF) 分解方法是对时空数据进行降维的重要方法, 广泛用于气象气候、海洋等地学研究中^[15-17], 近年来也被广泛应用于我国城市^[18]、区域^[19,20]和全国^[21,22]的近地面 O_3 浓度

收稿日期: 2022-04-07; 修订日期: 2022-07-08

基金项目: 国家自然科学基金项目 (42177465); 天津市科技计划项目 (18PTZWHZ00120)

作者简介: 王浩琪 (1998 ~), 男, 硕士, 主要研究方向为臭氧污染成因, E-mail: nkuhaoqi@126.com

* 通信作者, E-mail: zhafox@nankai.edu.cn

的时空分布、影响因素和空间分区等研究中.然而,关于我国 O_3 浓度空间模态年际变化的研究相对较少,主要空间模态的驱动因素有待进一步探索.

O_3 作为典型的二次污染物,太阳辐射和空气湿度等气象要素对其生成有显著影响^[23,24].将混杂在 O_3 环境浓度时间序列中的气象信息与污染源信息分离,分别解析气象条件和前体物排放变化对 O_3 浓度变化的贡献,便于更客观地认识污染控制措施的环境效果.有数学方法为剥离气象因素的影响提供了思路:如傅里叶变换、小波分析和 KZ (Kolmogorov-Zurbenko) 滤波等^[25].其中,KZ 滤波在 O_3 时间序列分解及“气象影响调整”中应用较为广泛^[26~30].在我国的京津冀、汾渭平原等城市和地区已开展了研究^[31~35].但在全国尺度上,相关研究尚缺乏.

本文基于 EOF 方法,选择臭氧污染频发的 3~8 月作为研究时段,对我国 337 个地级行政区 2019~2021 年近地面 O_3 浓度的空间分布特征进行分析,比较主要空间模态的年际变化趋势.选取 31 个省会城市,利用 KZ 滤波提取 O_3 时间序列的长期分量,结合逐步回归模型,建立污染物与气象要素之间的关系,进而重构“气象调整”后的长期分量时间序列,评估气象和前体物排放对 O_3 浓度变化趋势的影响.

1 材料与方法

1.1 数据来源

2019~2021 年我国 337 个地级行政区大气污染物(O_3 、 NO_2 、 CO 、 $PM_{2.5}$ 、 PM_{10} 和 SO_2) 小时浓度监测数据来自中国环境监测总站的全国城市空气质量实时发布平台(<http://106.37.208.233:20035/>),各地级行政区 O_3 浓度通过计算该地所有国控站 O_3 浓度平均得到(中国香港、澳门和台湾资料暂缺).基于《环境空气质量标准》(GB3095-2012)中对 O_3 浓度数据有效性的要求,对异常值进行剔除,且保障每日至少有 20 h 的有效数据,若不满足,则对当日数据进行剔除.本研究 2019~2021 年数据有效率分别为 96.5%、98.8% 和 99.1%.

气象数据来源于欧洲中期天气预报中心(ECMWF)第五代大气再分析数据集 ERA5^[36].该数据集包括 1979 年至今网格化的全球气象数据,时间分辨率为 1 h,水平分辨率为 $0.25^\circ \times 0.25^\circ$.

1.2 EOF 分解

EOF 分解方法能够将要素场的时间和空间变化分离,把随时间变化的要素场分解为不随时间变化的空间函数和只依赖时间变化的时间函数的乘积

之和,并用尽可能少的模态表达出主要的时间和空间变化,从而客观定量地反映要素场的空间结构和时间变化^[37].

将大气污染物浓度在 m 个格点上的 n 次连续监测资料看作一个 m 维随机向量 $\mathbf{X}$,其中, x_{ij} 为第 i 个监测点上第 j 时次的污染物监测值,大气污染物浓度场 $\mathbf{X}$ 可分解为特征向量矩阵 $\mathbf{V}$ 和与之对应的时间系数矩阵 $\mathbf{T}$ 两部分的线性组合:

$$\mathbf{X} = \mathbf{VT} = \begin{bmatrix} v_{11} & v_{12} & \cdots & v_{1n} \\ v_{21} & v_{22} & \cdots & v_{2n} \\ \vdots & \vdots & & \vdots \\ v_{m1} & v_{m2} & \cdots & v_{mn} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} t_{11} & t_{12} & \cdots & t_{1n} \\ t_{21} & t_{22} & \cdots & t_{2n} \\ \vdots & \vdots & & \vdots \\ t_{m1} & t_{m2} & \cdots & t_{mn} \end{bmatrix} \quad (1)$$

特征向量矩阵 $\mathbf{V}$ 和时间系数矩阵 $\mathbf{T}$ 的求解过程如下:①数据预处理,得到臭氧浓度的距平矩阵 $\mathbf{X}$;②计算 $\mathbf{X}$ 与其转置矩阵 $\mathbf{X}^T$ 的交叉积,得到协方差矩阵 $\mathbf{C}$;③计算协方差矩阵 $\mathbf{C}$ 的特征值矩阵 $\mathbf{E}$ 和特征向量矩阵 $\mathbf{V}$;④基于特征向量矩阵 $\mathbf{V}$ 和臭氧浓度的距平矩阵 $\mathbf{X}$,得到时间系数矩阵 $\mathbf{T}$.

将协方差矩阵 $\mathbf{C}$ 的特征值 λ 降序排列,每个非 0 的特征值对应一列特征向量,得到的分解结果依次称为第一模态、第二模态……第 m 模态.

对于任一空间模态,特征向量分量值的相对大小反映了各站点大气污染物浓度的变率,分量值越大,表明大气污染物浓度的变化越显著,即“振荡强度”越大.时间系数表示每种空间分布形式的时间变化特征,若为正,表明该时刻此种空间分布形式为污染物浓度的主要变化趋势;若为负,则表明污染物浓度的变化趋势与典型分布形式相反^[37].

1.3 KZ 滤波

大气污染物浓度时间序列 $X(t)$ 具有非平稳的特征.时间尺度上, $X(t)$ 包含若干不同周期的波动^[25].为了更清晰地反映不同过程对污染物环境浓度的影响,对 $X(t)$ 进行时间序列分解:

$$X(t) = e(t) + S(t) + W(t) \quad (2)$$

式中, $e(t)$ 为污染物浓度的长期分量,受经济活动、污染控制和气候变化等因素影响; $S(t)$ 为季节分量,受污染源和气象因子的季节变化影响; $W(t)$ 为短期分量,受天气系统、污染源强及一些不确定因素的短期波动影响.

KZ 滤波是一种时间序列分析方法,是经过 p 次迭代的 m 点滑动平均^[38],其计算公式如下:

$$Y_t = \frac{1}{m} \sum_{s=-(m-1)/2}^{(m-1)/2} X(t+s) \quad (3)$$

式中, X 为原始的 O_3 浓度时间序列; t 为采样点; m 为滤波窗宽; s 为滑动窗口变量; Y_t 为经过一次滤

波后的时间序列; 将 Y_t 作为输入再进行一次滤波, 得到 $Y_t^{(2)}$; 如此迭代 p 次, 得到 $Y_t^{(p)}$, 即 $KZ_{(m,p)}$.

滤波的截断频率与滤波窗宽 m 和迭代次数 p 的选择有关. 通过调整 m 和 p 可以进行不同频段的滤波^[33], 若滤除波长小于 N 的高频波, 则有效滤波宽度满足:

$$m \times p^{1/2} \leq N \quad (4)$$

本研究选择 $KZ_{(15,5)}$ 和 $KZ_{(365,3)}$, 有效滤波宽度分别约为 33 d 和 632 d^[28,32]. 利用 $KZ_{(15,5)}$ 和 $KZ_{(365,3)}$ 分解后, 得到下列关系式:

$$\begin{aligned} X(t) &= e(t) + S(t) + W(t) \\ &= X_{\text{baseline}}(t) + W(t) \end{aligned} \quad (5)$$

$$X_{\text{baseline}}(t) = e(t) + S(t) = KZ_{(15,5)} \quad (6)$$

$$e(t) = KZ_{(365,3)} \quad (7)$$

$$W(t) = X(t) - KZ_{(15,5)} \quad (8)$$

$$S(t) = KZ_{(15,5)} - KZ_{(365,3)} \quad (9)$$

式中, $e(t)$ 、 $S(t)$ 和 $W(t)$ 含义同式(2), $X_{\text{baseline}}(t)$ 为大气污染物浓度的基线分量.

将太阳辐射、相对湿度、气压和风速等气象要素时间序列亦分解为短期分量和季节分量. 利用逐步回归模型, 针对短期分量和基线分量, 分别建立污染物浓度与气象因子时间序列之间的关系.

$$W(t) = \sum_i \alpha_i MW_i(t) + \varepsilon_w(t) \quad (10)$$

$$X_{\text{baseline}}(t) = \sum_j \beta_j M_{j\text{baseline}}(t) + \varepsilon_{\text{baseline}}(t) \quad (11)$$

式中, $W(t)$ 和 $MW_i(t)$ 分别为污染物浓度及第 i 种气象因子的短期分量, α_i 为回归系数, $\varepsilon_w(t)$ 为短期分量拟合残差; 类似地, $X_{\text{baseline}}(t)$ 和 $M_{j\text{baseline}}(t)$ 分别为污染物浓度及第 j 气象因子的基线分量, β_j 为回归系数, $\varepsilon_{\text{baseline}}(t)$ 为基线分量拟合残差.

大气污染物浓度观测值与拟合值之间的总残差 $\varepsilon(t)$ 可表示为:

$$\varepsilon(t) = \varepsilon_w(t) + \varepsilon_{\text{baseline}}(t) \quad (12)$$

对总残差 $\varepsilon(t)$ 再进行 $KZ_{(365,3)}$ 滤波, 可得 $\varepsilon(t)$ 的长期变化趋势 $\varepsilon_{\text{LT}}(t)$; 对式(7)得到的大气污染物浓度时间序列的长期分量求均值, 可得 X_{ave} .

综上, 经气象调整后污染物浓度长期分量时间序列 $X_{\text{LT}}(t)$ 可表示为:

$$X_{\text{LT}}(t) = X_{\text{ave}} + \varepsilon_{\text{LT}}(t) \quad (13)$$

2 结果与讨论

2.1 O_3 浓度的时空分布

我国 2019 ~ 2021 年的 3 ~ 5 月和 6 ~ 8 月 O_3 日最大 8 h 滑动 90 百分位浓度 $[\rho(O_3)]$ 存在明显时空变化. 如图 1 所示, O_3 浓度高值区主要集中在京

津冀、长三角、汾渭平原、中原城市群和山东半岛城市群等地区. 2019、2020 和 2021 年的 3 ~ 5 月我国 337 个地级行政区 $\rho(O_3)$ 平均值分别为 (142 ± 25) 、 (145 ± 22) 和 $(134 \pm 19) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 6 ~ 8 月 $\rho(O_3)$ 平均值分别为 (157 ± 38) 、 (143 ± 36) 和 $(150 \pm 33) \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$. 整体而言, 2021 年 3 ~ 8 月 O_3 污染水平较 2019 年有所缓解, 其中, $\rho(O_3)$ 在 3 ~ 5 月下降 $8 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 在 6 ~ 8 月下降 $7 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$. 受疫情管控影响, 2020 年 O_3 浓度变化较为复杂: $\rho(O_3)$ 在 3 ~ 5 月较 2019 年 3 ~ 5 月上升 $3 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 在 6 ~ 8 月较 2019 年 6 ~ 8 月下降 $14 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 且 2020 年 3 ~ 5 月 $\rho(O_3)$ 略高于同年 6 ~ 8 月.

2.2 O_3 浓度的空间分布模态

对我国 2019 ~ 2021 年的 3 ~ 5 月和 6 ~ 8 月的 O_3 浓度分别进行 EOF 分解, O_3 浓度距平 EOF 分解后前 7 个模态的累积贡献率均高于 70% (如图 2), 其中第一模态贡献率均在 50% 左右, 可表征我国近地面 O_3 浓度空间分布的主要特征. 如图 3 所示, 第一模态中, 各地市特征向量均为正值, 呈现同增同减态势, 体现了 O_3 浓度变化的空间一致性. O_3 浓度的振荡强度形成以“东北、西北和西南”部分地区为低载荷区、“华北、华东和华中”部分地区为高载荷区的空间分型, 即“华北、华东和华中”部分地区 O_3 浓度变化较为显著, “东北、西北和西南”部分地区 O_3 浓度振荡强度较弱.

如图 3(a) ~ 3(c) 所示, 2019 年 3 ~ 5 月 O_3 浓度空间分布第一模态 (O_3 浓度第一模态) 高载荷区 (特征向量 > 0.06) 主要分布在北京、天津、河北、河南、山东、江苏、山西、陕西、湖北东部、安徽北部和浙江北部, 中载荷区 ($0.04 < \text{特征向量} < 0.06$) 大多分布在高载荷区周边. 2020 年 3 ~ 5 月高载荷区向四川东部、江西北部 and 湖南北部蔓延, 但高值中心有所减少; 湖北东部由高载荷区转为中载荷区, 且中载荷区向广东、广西蔓延. 除湖北东部外, 2021 年 3 ~ 5 月高载荷区与 2019 年较为相似, 但中载荷区继续有向新疆、黑龙江蔓延的态势.

如图 3(d) ~ 3(f) 所示, 从 6 ~ 8 月第一模态分布来看, O_3 污染的影响范围与 3 ~ 5 月相似, 但振荡强度明显增强. 此外, 2019、2020 和 2021 年的 3 ~ 5 月和 6 ~ 8 月我国 337 个地级行政区浓度空间分布特征向量中位数均约为 0.05, 表明我国 2019 ~ 2021 年 O_3 浓度的主要空间分布形式基本保持稳定.

2.3 O_3 浓度空间分布模态的年际变化

337 个地级行政区 3 年间 O_3 浓度空间分布特征的变化趋势分为两个大类: 单调型和非单调型. 其

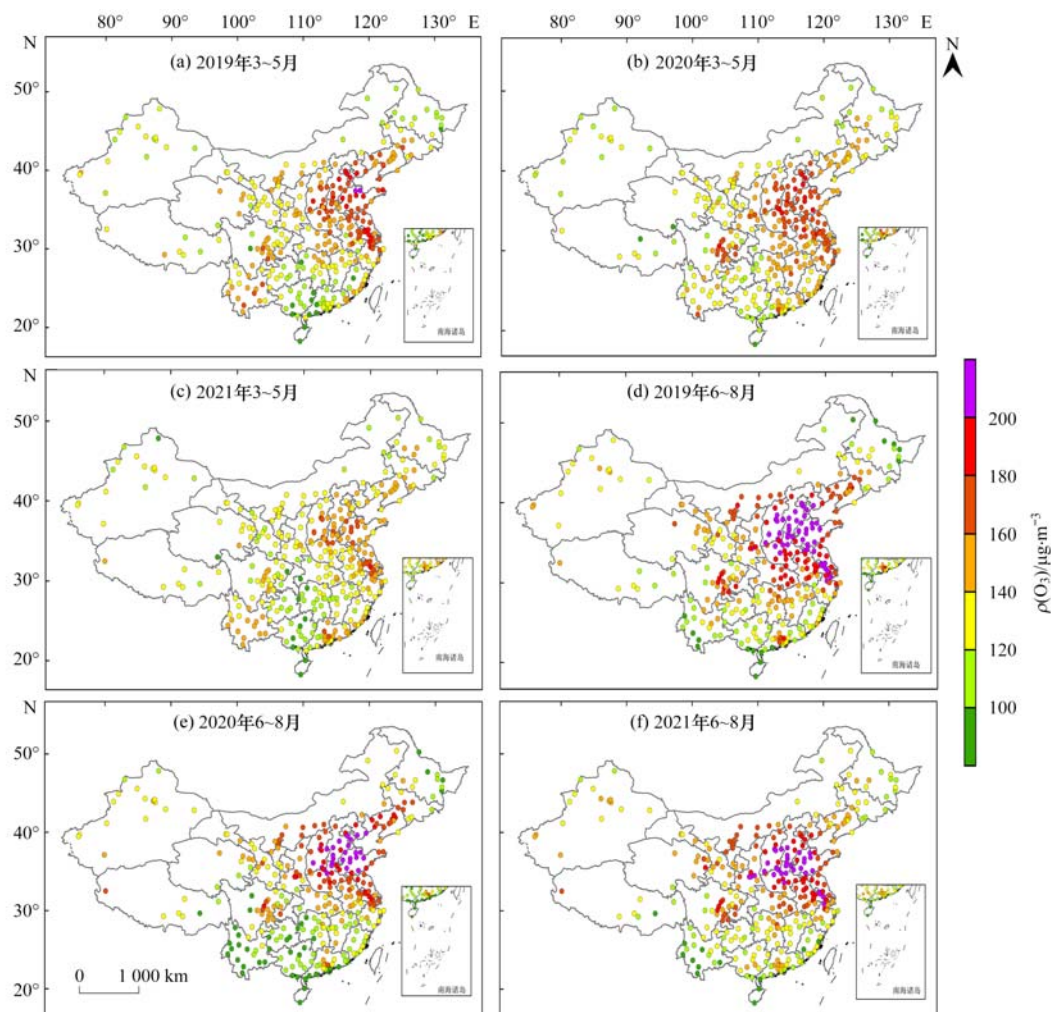


图1 2019~2021年的3~5月和6~8月我国337个地级行政区近地面O₃浓度空间分布

Fig. 1 Spatial distribution of surface O₃ concentration in 337 prefectural-level divisions in China from March to May and June to August, 2019-2021

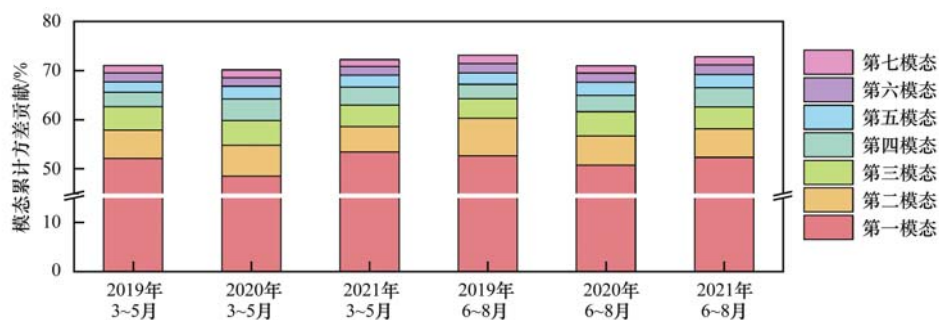


图2 我国近地面O₃浓度EOF分解的前7模态累积方差贡献

Fig. 2 Cumulative variance contribution from top seven spatial patterns of EOF decomposition surface O₃ concentration in China

中,单调型又可分为两类:持续升高型(2019~2021年特征向量逐年增长)和持续降低型(2019~2021年特征向量逐年下降)。根据2021年较2019年的相对变化,非单调型也可分为两类:总体升高型(2021年较2019年增长,但2020年较2019年下降)和总体降低型(2021年较2019年下降,但2020年较2019年增长)。此外,第五类为空间模态无明显变化的过渡区域(如图4)。

值得注意的是,O₃浓度空间分布特征的年际变化与其浓度变率的空间分布有较好的一致性。2021年O₃浓度变率较2019年有以下3个特点:①O₃浓度变率高值中心往往表现为“振荡强度”减弱,其中以北京、天津、河北、河南、山东和湖北最为典型。②O₃浓度变率中、低值区域往往表现为“振荡强度”增强,其中黑龙江、广西、福建、宁夏和甘肃的增长较为显著。③少部分区域O₃浓度的原空间特

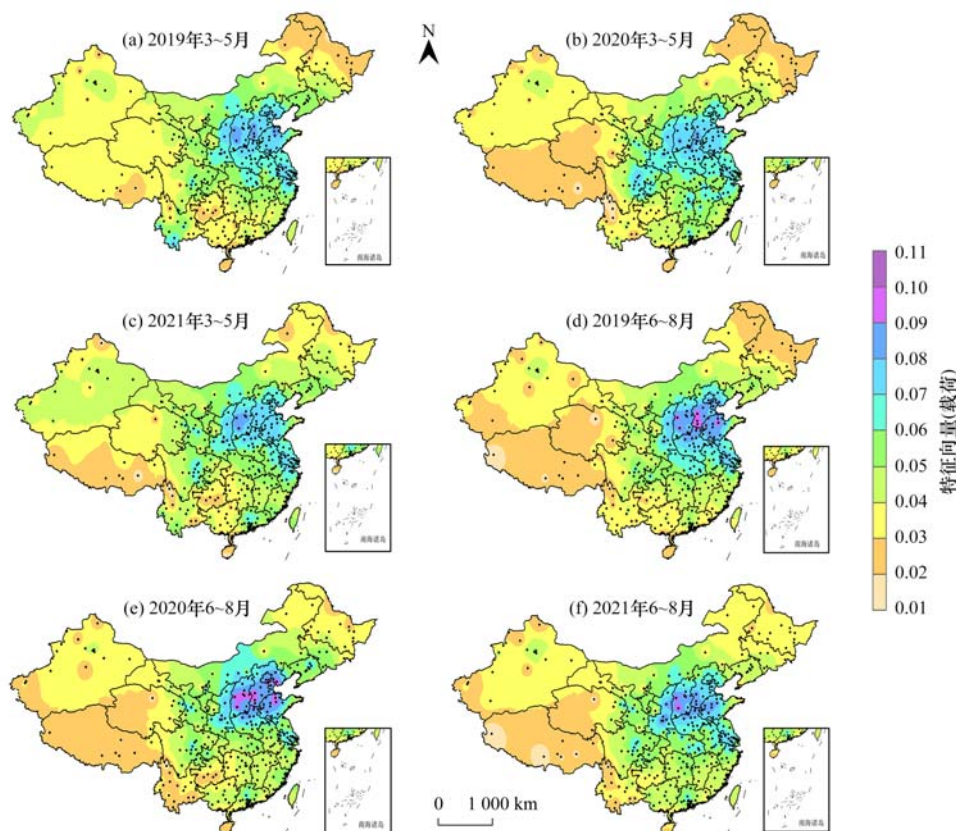


图3 2019 ~ 2021 年的 3 ~ 5 月和 6 ~ 8 月我国 337 个地级行政区 O_3 浓度第一模态

Fig. 3 First spatial patterns of surface O_3 concentration in 337 prefectural-level divisions in China from March to May and June to August, 2019-2021

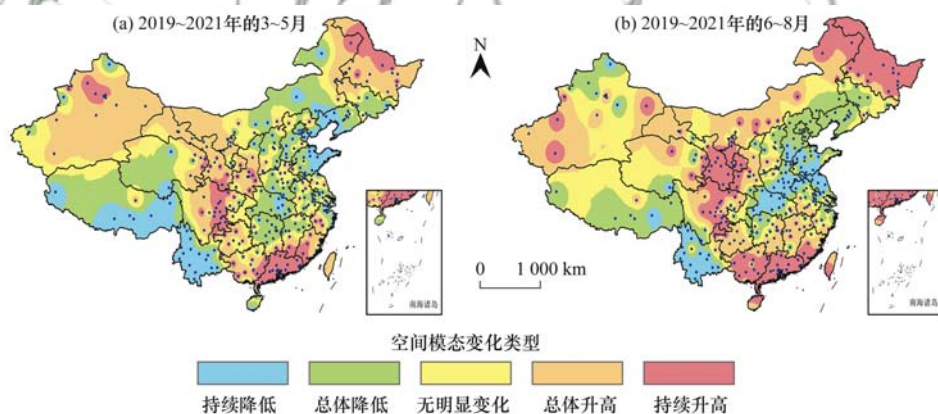


图4 2019 ~ 2021 年的 3 ~ 5 月和 6 ~ 8 月我国 O_3 浓度第一模态的年际变化

Fig. 4 Interannual variation in the first spatial patterns of O_3 concentration in China from March to May and June to August, 2019-2021

征被“放大”,如四川中部和广东南部 O_3 浓度变率高值中心的“振荡强度”增强,云南、西藏和青海 O_3 浓度变率中、低值区域的“振荡强度”减弱. 综上,在我国 O_3 浓度变率的主要空间分布形式基本稳定的背景下, O_3 浓度空间分布特征整体呈现“均一性”变化的特点,即原来 O_3 浓度变化显著的区域,其波动性呈减弱态势,而原来浓度变化不显著的区域,波动性则呈增强态势.

为验证 O_3 浓度空间分布呈“均一性”变化特征,选取 O_3 浓度第 90 百分位数与第 10 百分位数差

值作为“振荡强度”验证值($V1$),通过计算 2021 年与 2019 年验证值的差值($V1_{2021} - V1_{2019}$)判断 O_3 浓度波动的变化情况. 若 $(V1_{2021} - V1_{2019}) > 0$,则判断为 O_3 浓度“振荡强度”增强,若 $(V1_{2021} - V1_{2019}) < 0$,则判断为 O_3 浓度“振荡强度”减弱. 同时,插值得出波动的增强过渡区和减弱过渡区. 与之类似,选择第 75 百分位数与第 25 百分位数差值作为第二组验证($V2_{2021} - V2_{2019}$). 如图 5 所示,广东、黑龙江、福建、海南、宁夏、甘肃、四川、青海、西藏和新疆等区域波动性增强,而这些区域的空间模态变化类型

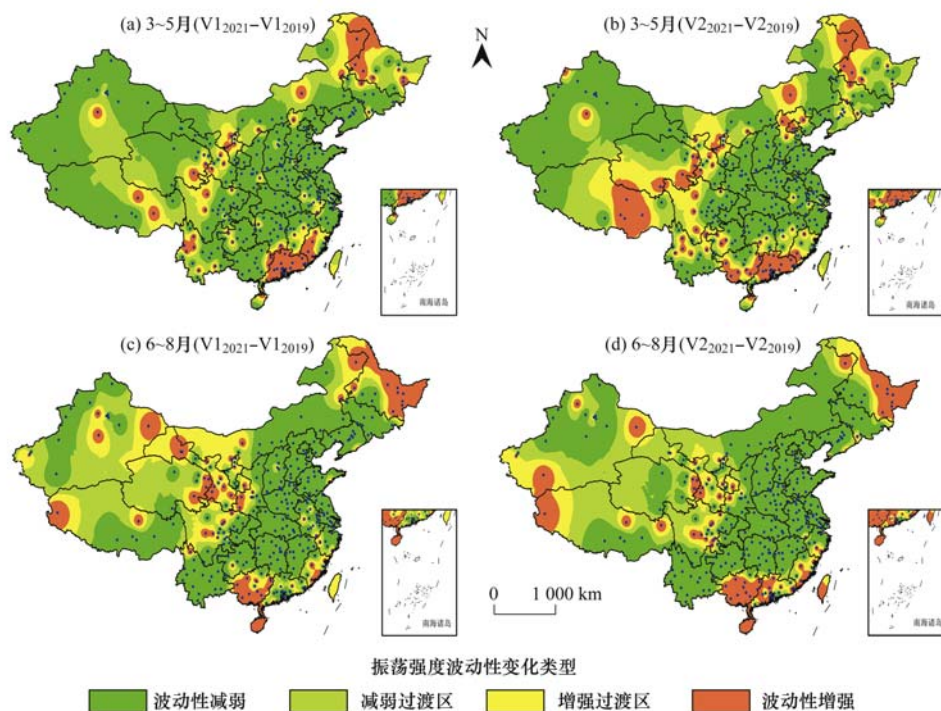


图5 3~5月和6~8月我国O₃浓度波动的年际变化

Fig. 5 Interannual variation in the volatility of O₃ concentration in China from March to May and June to August

也表现为升高型;除上述区域外,我国大部分区域O₃浓度的波动性均减弱,验证了O₃浓度空间分布年际变化的“均一性”特点。

2020年O₃浓度变化比较特殊。受疫情管控影响,部分区域前体物排放有所下降,如华北平原、长三角和珠三角地区2月NO_x排放显著低于往年同期^[39~41]。一方面,在VOCs控制区NO_x排放量降低,其滴定作用减弱,O₃浓度上升;另一方面,合适的VOCs与NO_x减排比例减少O₃的生成,O₃浓度下降^[42,43]。这可在一定程度上解释2020年3~5月我国近地面O₃浓度较2019年同期呈上升趋势^[41]、而2020年6~8月O₃浓度低于往年同期^[40]的现象。在O₃浓度第一模态的年际变化中形成了以安徽、浙江、江西、湖南、贵州、吉林和陕西等地区为代表的非单调型变化区域(如图4)。

以上分析表明,我国O₃浓度空间分布特征的年际变化整体呈趋同性特征。除少部分地区外,我国整体上3~5月和6~8月近地面O₃污染的区域差异在不断减弱,呈现高振荡强度区域峰值降低,中振荡强度区域向低振荡强度区域“蔓延”的特点。因此,区域性污染过程在水平空间上的影响范围可能更广。

2.4 气象调整前后的O₃浓度长期分量变化趋势

2019~2021年的3~8月我国近地面O₃浓度的变化可能受前体物排放和气象条件的共同影响^[44~46]。气象因素通过影响光化学环境和大气运动

过程,进而影响O₃的生成、转化和传输^[47,48],对O₃浓度的时空变化有着重要影响^[49,50]。为直观地反映前体物源排放变化对O₃浓度的影响,需要屏蔽气象因素对O₃浓度长期变化趋势的影响,对O₃浓度的长期分量进行“气象调整”。

利用KZ滤波方法将31个省会城市2019年1月至2021年8月O₃浓度时间序列分解为对应的长期分量、短期分量和季节分量。选择太阳辐射、相对湿度、风速和气压等气象因子^[32,33],基于2.3节中的方法和步骤,重构去除气象影响后的O₃浓度的长期分量 $X_{LT}(t)$ 。对比气象调整前后的差异,可反映气象因素和前体物排放变化对O₃浓度变化的相对贡献。

气象调整前后O₃浓度长期变化趋势如图6所示。可以看出,北京、天津、福州、海口和长沙O₃浓度降幅较大,太原、长春、哈尔滨、乌鲁木齐和昆明O₃浓度增幅较大。屏蔽气象影响后,2021年O₃浓度较2019年有以下3种变化类型:①下降型(降幅 $>2\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)11个,包括北京、天津、合肥、福州、南昌、海口、长沙、西安、西宁、重庆和拉萨。其中,北京和天津降幅最大,年均降幅约为 $2.1\mu\text{g}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{a})^{-1}$ 。②升高型(增幅 $>2\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)11个,包括太原、呼和浩特、长春、哈尔滨、南京、杭州、南宁、郑州、乌鲁木齐、成都和昆明。其中呼和浩特、南京、杭州和南宁等城市增幅较小。也有部分城市O₃浓度上升显著,如哈尔滨年均增幅高达5.2

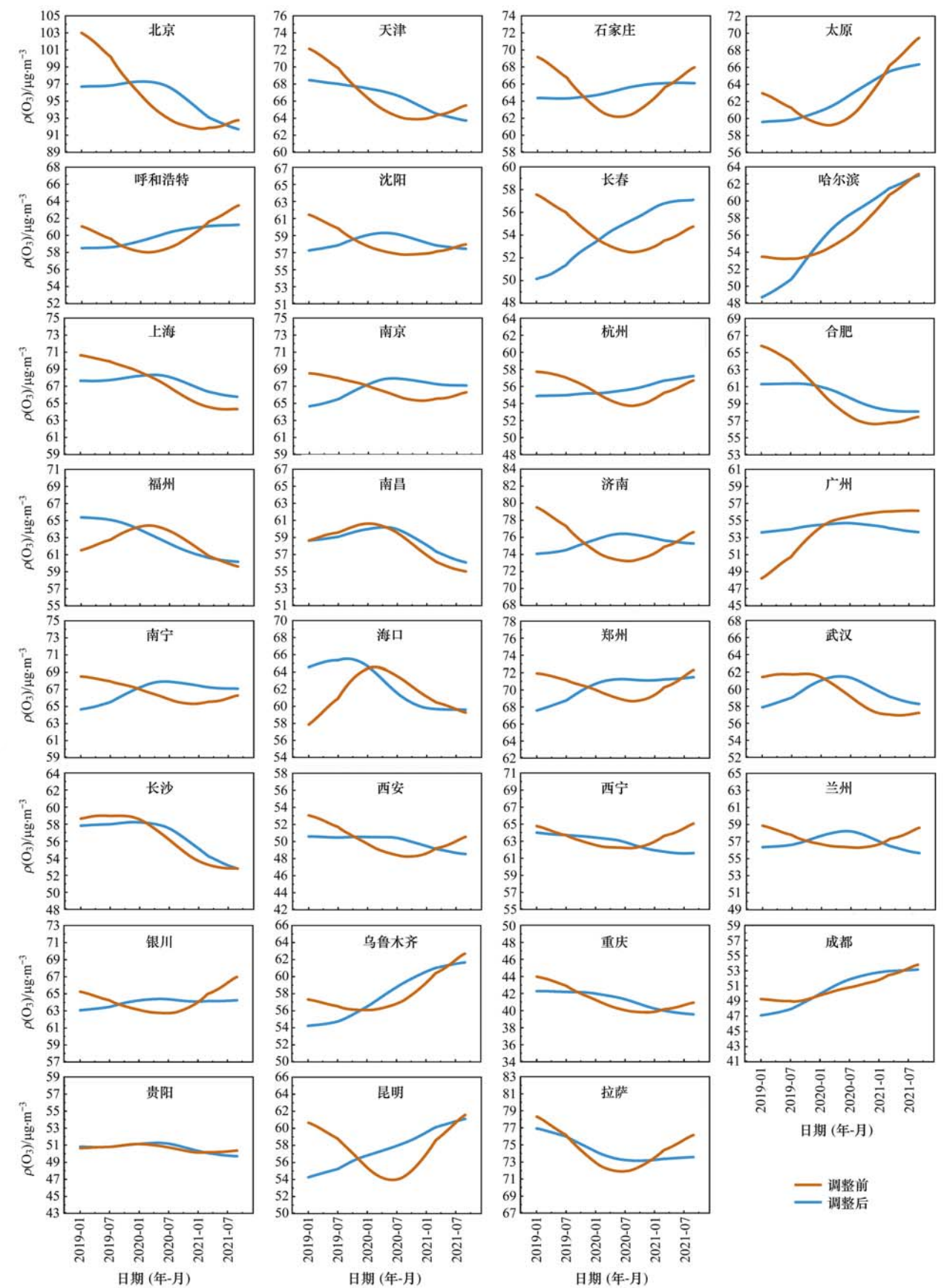


Fig. 6 Long-term trend of O₃ concentration before and after meteorological adjustment in 31 provincial capitals

$\mu\text{g}\cdot(\text{m}^3\cdot\text{a})^{-1}$.其原因可能与前体物排放量增加或前体物减排比例不恰当有关.③稳定型(浓度变化范围为 $\pm 2\ \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)9个,包括石家庄、沈阳、上海、济南、广州、武汉、兰州、银川和贵阳.除石家庄

外,其他8个城市气象调整后 O_3 浓度长期分量均在2020年小幅上升,在2021年小幅下降,即气象调整后长期分量呈倒“V”型变化。

气象因素对 O_3 浓度变化的影响存在城市之间的差异。对比气象调整前后 O_3 浓度长期分量的变化情况,可分为以下3类:①调整后 O_3 浓度的长期分量较调整前“平缓”,即气象因素放大、甚至改变了仅由污染源排放变化导致的 O_3 浓度的长期变化特征。根据其气象调整前的变化特征又可分为两小类:“V”型和其他型。其中,“V”型包括:北京、天津、石家庄、太原、呼和浩特、沈阳、南京、杭州、合肥、济南、南宁、郑州、西安、西宁、兰州、银川、乌鲁木齐、重庆、昆明和拉萨,以上20市调整前 O_3 浓度的长期分量均表现为先降后升,可能受区域性的大气过程影响较大;其他型包括广州、海口和武汉,这3市 O_3 浓度长期变化可能受局地尺度的大气过程影响较大^[51]。②调整前后的 O_3 浓度长期分量变化不大,气象因素对 O_3 浓度的长期变化趋势的影响不显著。如哈尔滨、上海、福州、南昌、长沙、成都和贵阳。③调整后 O_3 浓度长期分量变化较调整前更为显著,即气象因素起抑制作用,如长春。

3 结论

(1)我国2019、2020和2021年的3~5月和6~8月的近地面 O_3 浓度 EOF 分解结果表明:第一模态方差贡献均在50%左右,可代表 O_3 浓度变化的总体空间特征。第一模态中各地市特征向量均为正值,呈现同增同减态势,一定程度上体现了 O_3 浓度变化的空间一致性。浓度的振荡强度形成以“东北、西北和西南”部分地区为低载荷区、“华北、华东和华中”部分地区为高载荷区的空间分型。

(2)整体而言,我国2019年至2021年的3~8月 O_3 浓度的主要空间分布态势基本保持稳定,年际变化整体呈趋同性特征。 O_3 污染的区域差异在不断减弱,呈现高振荡强度区域峰值降低,中振荡强度区域向低振荡强度区域“蔓延”的特点。区域性污染过程在水平空间上的影响范围可能更广。

(3)2019年1月至2021年8月,气象调整前后不同城市 O_3 浓度的变化趋势存在一定差异。大部分城市 O_3 浓度调整后的长期分量较调整前“平缓”,即气象因素可能放大、甚至改变仅由污染源排放变化导致的 O_3 浓度的长期变化特征。其中,福州、海口、长沙、太原、哈尔滨和乌鲁木齐受排放影响较大,石家庄、济南和广州受气象影响较大,北京、天津、长春和昆明 O_3 浓度长期变化趋势受排放和气象影响均较大。

参考文献:

- [1] Ding D, Xing J, Wang S X, *et al.* Optimization of a NO_x and VOC cooperative control strategy based on clean air benefits[J]. *Environmental Science & Technology*, 2022, **56**(2): 739-749.
- [2] Dufour G, Hauglustaine D, Zhang Y J, *et al.* Recent ozone trends in the Chinese free troposphere: role of the local emission reductions and meteorology [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2021, **21**(20): 16001-16025.
- [3] 吴锴,康平,于雷,等. 2015—2016年中国城市臭氧浓度时空变化规律研究[J]. *环境科学学报*, 2018, **38**(6): 2179-2190.
Wu K, Kang P, Yu L, *et al.* Pollution status and spatio-temporal variations of ozone in China during 2015—2016 [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2018, **38**(6): 2179-2190.
- [4] Shen H Z, Sun Z, Chen Y L, *et al.* Novel method for ozone isopleth construction and diagnosis for the ozone control strategy of Chinese cities [J]. *Environmental Science & Technology*, 2021, **55**(23): 15625-15636.
- [5] 中国环境科学学会臭氧污染控制专业委员会. 中国大气臭氧污染防治蓝皮书(2020年)[R]. 南京:中国环境科学学会,臭氧污染控制专业委员会,2020.
- [6] 严刚,薛文博,雷宇,等. 我国臭氧污染形势分析及防控对策建议[J]. *环境保护*, 2020, **48**(15): 15-19.
Yan G, Xue W B, Lei Y, *et al.* Situation and control measures of ozone pollution in China [J]. *Environmental Protection*, 2020, **48**(15): 15-19.
- [7] Wang Y H, Gao W K, Wang S, *et al.* Contrasting trends of $PM_{2.5}$ and surface-ozone concentrations in China from 2013 to 2017 [J]. *National Science Review*, 2020, **7**(8): 1331-1339.
- [8] Nussbaumer C M, Cohen R C. The role of temperature and NO_x in ozone trends in the Los Angeles basin [J]. *Environmental Science & Technology*, 2020, **54**(24): 15652-15659.
- [9] Young P J, Naik V, Fiore A M, *et al.* Tropospheric ozone assessment report: assessment of global-scale model performance for global and regional ozone distributions, variability, and trends [J]. *Elementa: Science of the Anthropocene*, 2018, **6**, doi:10.1525/elementa.265.
- [10] Liu H L, Zhang M G, Han X. A review of surface ozone source apportionment in China [J]. *Atmospheric and Oceanic Science Letters*, 2020, **13**(5): 470-484.
- [11] 闫慧,张维,侯墨,等. 我国地级及以上城市臭氧污染来源及控制区划分[J]. *环境科学*, 2020, **41**(12): 5215-5224.
Yan H, Zhang W, Hou M, *et al.* Sources and control area division of ozone pollution in cities at prefecture level and above in China [J]. *Environmental Science*, 2020, **41**(12): 5215-5224.
- [12] 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.
- [13] 李颖若,韩婷婷,汪君霞,等. ARIMA 时间序列分析模型在臭氧浓度中长期预报中的应用[J]. *环境科学*, 2021, **42**(7): 3118-3126.
Li Y R, Han T T, Wang J X, *et al.* Application of ARIMA model for mid-and long-term forecasting of ozone concentration [J]. *Environmental Science*, 2021, **42**(7): 3118-3126.
- [14] 赵楠,卢毅敏. 中国地表臭氧浓度估算及健康影响评估[J]. *环境科学*, 2022, **43**(3): 1235-1245.

- Zhao N, Lu Y M. Estimation of surface ozone concentration and health impact assessment in China[J]. *Environmental Science*, 2022, **43**(3): 1235-1245.
- [15] 施晓晖, 徐祥德, 谢立安. NCEP/NCAR 再分析风速、表面气温距平在中国区域气候变化研究中的可信度分析[J]. *气象学报*, 2006, **64**(6): 709-722.
- Shi X H, Xu X D, Xie L A. Reliability analyses of anomalies of NCEP/NCAR reanalysis wind speed and surface temperature in climate change research in China[J]. *Acta Meteorologica Sinica*, 2006, **64**(6): 709-722.
- [16] 王东晓, 秦英豪, 肖贤俊, 等. 一套全球海洋再分析资料初步结果分析[J]. *科学通报*, 2012, **57**(22): 2102-2110.
- Wang D X, Qin Y H, Xiao X J, *et al.* Preliminary results of a new global ocean reanalysis [J]. *Chinese Science Bulletin*, 2012, **57**(22): 2102-2110.
- [17] 张武龙, 张井勇, 范广洲. 我国西南地区干湿季降水的主模态分析[J]. *大气科学*, 2014, **38**(3): 590-602.
- Zhang W L, Zhang J Y, Fan G Z. Dominant modes of dry- and wet-season precipitation in southwestern China [J]. *Chinese Journal of Atmospheric Sciences*, 2014, **38**(3): 590-602.
- [18] 王志铭, 张金谱, 梁桂雄. 利用经验正交函数分解方法分析广州臭氧污染特征[J]. *环境科学与技术*, 2020, **43**(2): 60-64.
- Wang Z M, Zhang J P, Liang G X. EOF Analysis of ozone concentration in Guangzhou [J]. *Environmental Science & Technology*, 2020, **43**(2): 60-64.
- [19] Zhan C C, Xie M, Liu J N, *et al.* Surface ozone in the Yangtze river delta, China: a synthesis of basic features, meteorological driving factors, and health impacts[J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2021, **126**(6), doi: 10.1029/2020JD033600.
- [20] 陈楠, 刘长焕, 许可, 等. 基于 EOF/SVD 的 2018 年湖北省臭氧特征及其高值与气象要素关系研究[J]. *中国环境监测*, 2020, **36**(2): 88-95.
- Chen N, Liu C H, Xu K, *et al.* EOF/SVD based characteristics of ozone in Hubei Province in 2018 and the relationship between its high values and meteorological factors [J]. *Environmental Monitoring in China*, 2020, **36**(2): 88-95.
- [21] Cheng L J, Wang S, Gong Z Y, *et al.* Regionalization based on spatial and seasonal variation in ground-level ozone concentrations across China[J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2018, **67**: 179-190.
- [22] 程麟钧, 王帅, 宫正宇, 等. 中国臭氧浓度的时空变化特征及分区[J]. *中国环境科学*, 2017, **37**(11): 4003-4012.
- Cheng L J, Wang S, Gong Y Z, *et al.* Spatial and seasonal variation and regionalization of ozone concentrations in China[J]. *China Environmental Science*, 2017, **37**(11): 4003-4012.
- [23] 何超, 慕航, 杨璐, 等. 中国暖季近地面臭氧浓度空间格局演变及主要气象驱动因素[J]. *环境科学*, 2021, **42**(9): 4168-4179.
- He C, Mu H, Yang L, *et al.* Spatial variation of surface ozone concentration during the warm season and its meteorological driving factors in China[J]. *Environmental Science*, 2021, **42**(9): 4168-4179.
- [24] 刘妍妍, 杨雷峰, 谢丹平, 等. 湖南省臭氧污染基本特征分析及长期趋势变化主控因素识别[J]. *环境科学*, 2022, **43**(3): 1246-1255.
- Liu Y Y, Yang L F, Xie D P, *et al.* Analysis of ozone pollution spatio-temporal evolution characteristics and identification of its long-term variation driving factor over Hunan Province [J]. *Environmental Science*, 2022, **43**(3): 1246-1255.
- [25] 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.
- [26] Henneman L R F, Holmes H A, Mulholland J A, *et al.* Meteorological detrending of primary and secondary pollutant concentrations; method application and evaluation using long-term (2000-2012) data in Atlanta [J]. *Atmospheric Environment*, 2015, **119**: 201-210.
- [27] Rao S T, Zurbenko I G. Detecting and tracking changes in ozone air quality[J]. *Air & Waste*, 1994, **44**(9): 1089-1092.
- [28] Rao S T, Zurbenko I G, Neagu R, *et al.* Space and time scales in ambient ozone data [J]. *Bulletin of the American Meteorological Society*, 1997, **78**(10): 2153-2166.
- [29] Seo J, Youn D, Kim J Y, *et al.* Extensive spatiotemporal analyses of surface ozone and related meteorological variables in South Korea for the period 1999-2010 [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2014, **14**(12): 6395-6515.
- [30] Wise E K, Comrie A C. Meteorologically adjusted urban air quality trends in the Southwestern United States[J]. *Atmospheric Environment*, 2005, **39**(16): 2969-2980.
- [31] 秦人洁, 张洁琼, 王雅倩, 等. 基于 KZ 滤波法的河北省 PM_{2.5} 和 O₃ 浓度不同时间尺度分析研究[J]. *环境科学学报*, 2019, **39**(3): 821-831.
- Qin R J, Zhang J Q, Wang Y Q, *et al.* Study on different time scales of PM_{2.5} and O₃ concentrations in Hebei Province based on KZ filter [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2019, **39**(3): 821-831.
- [32] 田秀霞, 田婷婷, 周志博, 等. 基于 KZ 滤波的臭氧评估研究[J]. *环境科学与管理*, 2021, **46**(7): 50-55.
- Tian X X, Tian T T, Zhou Z B, *et al.* Ozone assessment based on KZ filter[J]. *Environmental Science and Management*, 2021, **46**(7): 50-55.
- [33] 张洁琼, 王雅倩, 高爽, 等. 不同时间尺度气象要素与空气污染关系的 KZ 滤波研究[J]. *中国环境科学*, 2018, **38**(10): 3662-3672.
- Zhang J Q, Wang Y Q, Gao S, *et al.* Study on the relationship between meteorological elements and air pollution at different time scales based on KZ filtering [J]. *China Environmental Science*, 2018, **38**(10): 3662-3672.
- [34] 郑小华, 李明星, 娄盼星. 不同时间尺度下汾渭平原臭氧浓度变化及气象环境影响[J]. *高原气象*, 2021, **40**(4): 954-964.
- Zheng X H, Li M X, Lou P X. Different-scale changes in ozone concentration and meteorological environment in Fenwei Plain [J]. *Plateau Meteorology*, 2021, **40**(4): 954-964.
- [35] 符传博, 徐文帅, 丹利, 等. 2015~2020 年海南省臭氧时空变化及其成因分析[J]. *环境科学*, 2022, **43**(2): 675-685.
- Fu C B, Xu W S, Dan L, *et al.* Temporal and spatial variations in ozone and its causes over Hainan Province from 2015 to 2020 [J]. *Environmental Science*, 2022, **43**(2): 675-685.
- [36] Hersbach H, Bell B, Berrisford P, *et al.* ERA5 hourly data on single levels from 1979 to present [EB/OL]. <https://cds.climate.copernicus.eu/cdsapp#!/dataset/reanalysis-era5-single-levels?tab=form>, 2021-12-22.
- [37] 魏凤英. 现代气候统计诊断与预测技术[M]. (第二版). 北京: 气象出版社, 2007.
- [38] 白鹤鸣, 师华定, 高庆先, 等. 基于气象调整的京津冀典型城市空气污染指数序列重建[J]. *生态与农村环境学报*,

- 2015, **31**(1): 44-49.
- Bai H M, Shi H D, Gao Q X, *et al.* Re-ordination of air pollution indices of some typical cities in Beijing-Tianjin-Hebei Region based on meteorological adjustment [J]. *Journal of Ecology and Rural Environment*, 2015, **31**(1): 44-49.
- [39] Feng S Z, Jiang F, Wang H M, *et al.* NO_x emission changes over China during the COVID-19 epidemic inferred from surface NO₂ observations[J]. *Geophysical Research Letters*, 2020, **47**(19), doi:10.1029/2020GL090080.
- [40] Bouarar I, Gaubert B, Brasseur G P, *et al.* Ozone anomalies in the free troposphere during the COVID-19 pandemic [J]. *Geophysical Research Letters*, 2021, **48**(16), doi: 10.1029/2021GL094204.
- [41] Tang R, Huang X, Zhou D R, *et al.* Global air quality change during the COVID-19 pandemic: Regionally different ozone pollution responses COVID-19 [J]. *Atmospheric and Oceanic Science Letters*, 2021, **14**(4), doi:10.1016/j.aosl.2020.100015.
- [42] Sillman S. The relation between ozone, NO_x and hydrocarbons in urban and polluted rural environments [J]. *Atmospheric Environment*, 1999, **33**(12): 1821-1845.
- [43] Sillman S, He D Y. Some theoretical results concerning O₃-NO_x-VOC chemistry and NO_x-VOC indicators [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2002, **107**(D22), doi: 10.1029/2001JD001123.
- [44] Sicard P, De Marco A, Agathokleous E, *et al.* Amplified ozone pollution in cities during the COVID-19 lockdown[J]. *Science of the Total Environment*, 2020, **735**, doi:10.1016/j.scitotenv.2020.139542.
- [45] Ning G C, Wardle D A, Yim S H L. Suppression of ozone formation at high temperature in China: from historical observations to future projections [J]. *Geophysical Research Letters*, 2022, **49**(4), doi: 10.1029/2021GL097090.
- [46] Liu J D, Wang L L, Li M G, *et al.* Quantifying the impact of synoptic circulation patterns on ozone variability in northern China from April to October 2013-2017 [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2019, **19**(23): 14477-14492.
- [47] Le T H, Wang Y, Liu L, *et al.* Unexpected air pollution with marked emission reductions during the COVID-19 outbreak in China[J]. *Science*, 2020, **369**(6504): 702-706.
- [48] 赵伟, 高博, 卢清, 等. 2006~2019年珠三角地区臭氧污染趋势[J]. *环境科学*, 2021, **42**(1): 97-105.
- Zhao W, Gao B, Lu Q, *et al.* Ozone pollution trend in the Pearl River Delta region during 2006-2019 [J]. *Environmental Science*, 2021, **42**(1): 97-105.
- [49] 姜华, 常宏咪. 我国臭氧污染形势分析及成因初探[J]. *环境科学研究*, 2021, **34**(7): 1576-1582.
- Jiang H, Chang H M. Analysis of China's ozone pollution situation, preliminary investigation of causes and prevention and control recommendations [J]. *Research of Environmental Sciences*, 2021, **34**(7): 1576-1582.
- [50] 刘静达. 2013-2018 中国臭氧区划和演变特征及其气象形成机制研究[D]. 南京: 南京信息工程大学, 2020.
- Liu J D. Ozone regionalization and evolution characteristics, and meteorological formation mechanism in China from 2013 to 2018 [D]. Nanjing: Nanjing University of Information Science & Technology, 2020.
- [51] Orlanski I. A rational subdivision of scales for atmospheric processes[J]. *Bulletin of the American Meteorological Society*, 1975, **56**(5): 527-530.

CONTENTS

Impact of Climate Change on Summer Ozone in China	HU An-qi, XIE Xiao-dong, GONG Kang-jia, <i>et al.</i> (1801)
Spatial-temporal Variation and Driving Factors of Ozone in China from 2019 to 2021 Based on EOF Technique and KZ Filter	WANG Hao-qì, ZHANG Yu-fen, LUO Zhong-wei, <i>et al.</i> (1811)
Photochemical Mechanism and Control Strategy Optimization for Summertime Ozone Pollution in an Industrial City in the North China Plain	ZHENG Zhen-sen, DOU Jian-ping, ZHANG Guo-tao, <i>et al.</i> (1821)
Spatiotemporal Evolution Characteristics of PM _{2.5} -O ₃ Compound Pollution in Chinese Cities from 2015 to 2020	NIU Xiao-xiao, ZHONG Yan-mei, YANG Lu, <i>et al.</i> (1830)
Spatiotemporal Distribution Characteristics of Co-pollution of PM _{2.5} and Ozone over BTH with Surrounding Area from 2015 to 2021	SONG Xiao-han, YAN Li, LIU Wei, <i>et al.</i> (1841)
Spatio-temporal Variation in PM _{2.5} Concentration and Its Relationship with Vegetation Landscape Patterns in Typical Economic Zones in China from 2000 to 2020	XU Yong, LI Xin-yi, HUANG Wen-ting, <i>et al.</i> (1852)
Characteristics and Source Apportionment of Atmospheric Ion Deposition During Winter and Spring in the Core Area of Beijing	ZHAO Yu, LI Bei-bei, HUANG Yu-hu, <i>et al.</i> (1865)
Input Characteristics of Dry Deposition of Atmospheric Particulates and Metals in Farmland in the Suburb of Nanjing	LIU Cui-ying, JIN Hao, FAN Jian-ling (1873)
Pollution Characterizations and Oxidative Potentials of Water-Soluble Organic Matters at Different Polarity Levels in Winter PM _{2.5} Over Xi'an	LUO Yu, HUANG Sha-sha, ZHANG Tian, <i>et al.</i> (1882)
Emission Characteristics of Organic Carbon and Elemental Carbon in PM ₁₀ and PM _{2.5} from Vehicle Exhaust and Civil Combustion Fuels	WANG Hong-lei, LIU Si-han, SUN Jie-juan, <i>et al.</i> (1890)
Characteristics and Source Apportionment of PM _{2.5} in the Core Area of Ili River Valley in Spring	GU Chao, XU Tao, MA Chao, <i>et al.</i> (1899)
Evaluation of Changes in PM _{2.5} Exposure Concentration and Health Risk for Urban Resident in Zhengzhou Based on High Spatial Resolution Grids	LI Yuan, XU Yi-fei, YUAN Ming-hao, <i>et al.</i> (1911)
Emission Inventory of Building Material Industry in Henan Province Based on Multi-source Data Integration	LIU Xiao, HU Jing-nan, WANG Hong-mei, <i>et al.</i> (1924)
Pollution Characteristics and Source Apportionment of Atmospheric Volatile Organic Compounds in Winter in Kaifeng City	SHI Yu-qi, ZHENG Kai-yun, DING Wei-ting, <i>et al.</i> (1933)
Changes in O ₃ -VOCs-NO ₃ Sensitivity and VOCs Sources at an Urban Site of Nanjing Between 2020 and 2021	LU Xiao-bo, WANG Ming, DING Feng, <i>et al.</i> (1943)
Variation Characteristics and Ozone Formation Potential of Ambient VOCs in Urban Beijing in Summer	ZHANG Rui, SUN Xue-song, WANG Yu, <i>et al.</i> (1954)
Chemical Characteristics and Source Apportionment for VOCs During the Ozone Pollution Episodes and Non-ozone Pollution Periods in Qingdao	JIA Zhi-hai, GU Yao, KONG Cui-li, <i>et al.</i> (1962)
Characteristics of O ₃ Production in the Western Suburb of Hefei in Summer Based on the Observation of Total Peroxy Radical	YU Hui, WEI Na-na, XU Xue-zhe, <i>et al.</i> (1974)
Evaluation of Energy Saving and Carbon Reduction Effect of Air Pollution Prevention and Control Action Plan and Innovation Intermediary Effect	LI Shao-lin, WANG Qi-qi (1985)
Scenario Simulation and Effects Assessment of Co-control on Pollution and Carbon Emission Reduction in Beijing	YU Shan, ZHANG Shuang, ZHANG Zeng-jie, <i>et al.</i> (1998)
Simulation of Anthropogenic CO ₂ Emissions in the Yangtze River Delta Based on Different Emission Inventories	MA Xin-yi, HUANG Wen-jing, HU Ning, <i>et al.</i> (2009)
Water Quality Change Trend and Risk Analysis of Wuhan Hanjiang River Water Source	ZHUO Hai-hua, LOU Bao-feng, XU Jie, <i>et al.</i> (2022)
Pollution Characteristics and Risk Assessment of Antibiotics and Resistance Genes in Different Water Sources in the Wuhan Section of the Yangtze River	LI Bo-lin, ZHANG He, WANG Jun, <i>et al.</i> (2032)
Occurrence Characteristics, Sources, and Toxicity Risk Analysis of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Typical Rivers of Northern Shaanxi Mining Area, China	WU Xi-jun, DONG Ying, ZHAO Jian, <i>et al.</i> (2040)
Spatio-temporal Characteristics of Organic Aggregates and the Driving Factors in Typical Lakes	XIE Gui-juan, GONG Yi, ZHU Fu-cheng, <i>et al.</i> (2052)
Distribution Characteristics and Risk Assessment of Microplastics in Water of Different Functional Parks in Guilin	LI Pei-zhao, WU Li, HUANG Fei-fei, <i>et al.</i> (2062)
Environmental Driving Factors and Assessment on the Aquatic Ecosystem of Periphytic Algae of Six Inflow Rivers in Yangtze River Basin	ZHANG Jing, HU Yu-xin, HU Sheng, <i>et al.</i> (2072)
Influence and Driving of Environmental Heterogeneity on the Epilithic Diatom Community in Xiangxi River, a Tributary of the Three Gorges Reservoir Area	JI Lu-lu, ZHAO Lu, OUYANG Tian, <i>et al.</i> (2083)
Characteristics of Phytoplankton Communities and Key Impact Factors in Three Types of Lakes in Wuhan	ZHANG Hao-kun, MIN Fen-li, CUI Hui-rong, <i>et al.</i> (2093)
Effects of Heavy Metal Pollution on the Structure of Microbial Communities in Different Habitats	HE Yi-fan, XIAO Xin-zong, WANG Jia-wen (2103)
Structure and Distribution Characteristics of Bacterial Community in Boqing River Water	WANG Sen, CHEN Jian-wen, ZHANG Hong, <i>et al.</i> (2113)
Effects of Microplastic Exposure on the Community Structure and Function of Symbiotic Bacteria in <i>Sinularia microclavata</i>	LIU Min, CHE Wen-xue, ZENG Ying-xu, <i>et al.</i> (2122)
Distribution Characteristics and Health Risk Assessment of Emerging Contaminants from Raw Water to Drinking Water in Shanghai	YAN Qi (2136)
Adsorption Characteristics of Fluoride in Low-Concentration Water by Aluminum and Zirconium-Modified Biochar	LIU Yan-fang, GAO Wei, LIU Rui, <i>et al.</i> (2147)
Sorption Characteristics and Site Energy Distribution Theory of Typical Estrogens on Microplastics	LIU Jiang-yan, ZHENG Mi-mi, HU Jia-wu, <i>et al.</i> (2158)
Selection and Evaluation of Model Pollutants for Performance Assessment of Advanced Treatment of Industrial Park Wastewater by Ozonation	XIN Bo, SHAN Chao, LÜ Lu (2168)
Identifying Driving Factors and Their Interacting Effects on Sources of Heavy Metal in Farmland Soils with Geodetector and Multi-source Data	ZHANG Hong-ze, CUI Wen-gang, LIU Sui-hua, <i>et al.</i> (2177)
Pollution Characteristics and Source Apportionment of Heavy Metals in Farmland Soils Around the Gangue Heap of Coal Mine Based on APCS-MLR and PMF Receptor Model	MA Jie, SHEN Zhi-jie, ZHANG Ping-ping, <i>et al.</i> (2192)
Contamination and Probabilistic Health Risk Assessment of Heavy Metals in Agricultural Soils Around a Lead-Zinc Smelter	HUANG Jian-bo, JIANG Deng-deng, WEN Bing, <i>et al.</i> (2204)
Prediction of PAHs Content in Soil Around Gas Stations in Beijing Based on BP Neural Network	MA Sai-yan, WEI Hai-ying, MA Jin, <i>et al.</i> (2215)
Spatial-temporal Distribution and Risk Assessment of Quinolones Antibiotics in Soil of Shijiazhuang City	ZHAO Xin-yu, CHEN Hui, ZHAO Bo, <i>et al.</i> (2223)
Accumulation and Pollution Risks of Heavy Metals in Soils and Agricultural Products from a Typical Black Shale Region with High Geological Background	DENG Shuai, DUAN Jia-hui, NING Mo-huan, <i>et al.</i> (2234)
Geochemical Characteristics of Cd in Different Parent Soils in Karst Area and Prediction of Cd Content in Maize	DAI Liang-liang, XU Hong-gen, GONG Hao, <i>et al.</i> (2243)
Pollution Risk and Contribution Analysis of Pb, Cd, and As in Soils and Crops Under Different Land Use Types in Longyan City	WANG Rui, CHEN Nan, ZHANG Er-xi (2252)
Influencing Factors of Cadmium Content in Wheat Grain: A Meta-analysis and Decision Tree Analysis	LIU Na, ZHANG Shao-bin, GUO Xin-yu, <i>et al.</i> (2265)
Response Characteristics of Soil Organic Carbon Pool and Its Chemical Composition During Secondary Forest Succession in the Loess Plateau	LIU Han-yu, LIU Ying-yi, ZHANG Qi, <i>et al.</i> (2275)
Effects of Short-Term Nitrogen and Phosphorus Addition on Soil Respiration Components in a Subalpine Grassland of Qilian Mountains	JIANG Yuan, GAN Xiao-ling, CAO Feng-feng, <i>et al.</i> (2283)
Response of Soil Microbial Diversity to Long-term Enclosure in Degraded Patches of Alpine Meadow in the Source Zone of the Yellow River	YANG Peng-nian, LI Xi-lai, LI Cheng-yi, <i>et al.</i> (2293)
Diversity and Predictive Functional of <i>Caragana jubata</i> Bacterial Community in Rhizosphere and Non-rhizosphere Soil at Different Altitudes	LI Yuan-yuan, XU Ting-ting, AI Zhe, <i>et al.</i> (2304)
Effects of Simulated Acid Rain and Nitrogen Deposition on Soil Bacterial Community Structure and Diversity in the Masson Pine Forest	WANG Nan, QIAN Shao-yu, PAN Xiao-cheng, <i>et al.</i> (2315)
Effects of Phosphogypsum and <i>Suaeda salsa</i> on the Soil Moisture, Salt, and Bacterial Community Structure of Salinized Soil	LIU Yue, YANG Shu-qing, ZHANG Wan-feng, <i>et al.</i> (2325)
Effects of Combined Application of Fungal Residue and Chemical Fertilizer on Soil Microbial Community Composition and Diversity in Paddy Soil	GENG He-tian, WANG Xu-dong, SHI Si-bo, <i>et al.</i> (2338)
Effects of Aeration on Surface Water Nutrient Dynamics and Greenhouse Gas Emission in Different Straw Returning Paddy Fields	HU Jin-hui, XUE Li-hong, QIAN Cong, <i>et al.</i> (2348)
Effects of Exogenous Melatonin Treatment on the Growth and Antioxidant System of Rice Seedlings Under Antimony Stress	CHU Yu-tan, LI Yan, HUANG Yi-zong, <i>et al.</i> (2356)
Life Cycle Prediction Assessment of Energy Saving and New Energy Vehicles for 2035	FU Pei, LAN Li-bo, CHEN Ying, <i>et al.</i> (2365)
Distribution, Sources, and Behavioral Characteristics of Microplastics in Farmland Soil	BO Lu-ji, LI Bing, ZHANG Kai, <i>et al.</i> (2375)
Research Progress on the Remediation Technology of Herbicide Contamination in Agricultural Soils	HU Fang-yu, AN Jing, WANG Bao-yu, <i>et al.</i> (2384)
Research Progress and Prospect of Herbicide Residue Characteristics in Black Soil Region of China	LI Rui, WU Qiu-mei, ZHAO Gui-mei, <i>et al.</i> (2395)