

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.1

第41卷 第1期

目次

近20年来中国PM _{2.5} 污染演变的时空过程	时燕, 刘瑞梅, 罗毅, 杨昆 (1)
2007~2016年上海颗粒物浓度特征与气候背景异同分析	郑庆峰, 史军, 谈建国, 段玉森, 林燕芬, 徐卫忠 (14)
夏季大气PM _{2.5} 中元素特征及源解析:以华中地区平顶山-随州-武汉为例	刘威杰, 石明明, 程敏, 黎莹, 朱戈昊, 邢新丽, 孔少飞, 张家泉, 祁士华 (23)
呼包鄂地区冬季、夏季PM _{2.5} 污染特征	李伊明, 刘佳媛, 史国良, 皇甫延琦, 张昕, 杨奕, 冯银厂 (31)
2019年元旦前后石家庄市重污染过程PM _{2.5} 污染特征及来源解析	周静博, 段青春, 王建国, 杨鹏, 刘煥武, 李梅, 靳伟 (39)
基于模型模拟的成都市PM _{2.5} 污染来源解析	许艳玲, 易爱华, 薛文博 (50)
北京市PM _{2.5} 中砷污染特征	石绍萱, 杨艳蓉, 秦娟娟, 周雪明, 段青春, 谭吉华, 陈荣志 (57)
夏秋季宁波市气态元素汞(GEM)污染特征及潜在源区贡献分析	易辉, 林佳梅, 蔡秋亮, 王克强, 陈进生, 佟磊, 李建荣, 肖航 (65)
安阳市大气PM _{2.5} 中水溶性离子季节特征及来源解析	孙有昌, 姜楠, 王申博, 段时光, 张瑞芹 (75)
新乡市夏冬季节PM _{2.5} 稳定碳同位素特征分析	闫广轩, 宋鑫, 张靖雯, 张朴真, 王力鹏, 张佳羽, 杨争, 曹治国, 樊静, 王跃思, 刘子锐 (82)
基于颗粒物化学组分粒径分布特征的源解析方法构建与评估	梁永莉, 田瑛泽, 刘童, 冯银厂 (90)
超低排放改造后燃煤电厂细颗粒物排放特征	王润芳, 马大卫, 姜少毅, 朱仁斌, 何军, 张本耀 (98)
京津冀地区城市臭氧污染趋势及原因探讨	余益军, 孟晓艳, 王振, 周崑, 于红霞 (106)
安阳市近地面臭氧污染特征及气象影响因素分析	杨健, 尹沙沙, 于世杰, 王丽娟, 张瑞芹, 郝建尤, 苏方成, 齐艳杰 (115)
长江三角洲2017年机动车IVOCs排放清单构建及其对SOA的生成影响	王倩, 黄凌, 王杨君, 殷司佳, 张琪, 易鑫, 李莉 (125)
华东典型城市非道路移动机械排气烟度	鲁君, 胡馨遥, 杨强, 唐伟, 夏阳, 井宝莉, 陈昀, 黄成 (133)
国内外储油库VOCs排放现状与标准分析	胡玮, 任碧琪, 黄玉虎, 秦建平, 卞吉玮, 吴清柱 (139)
四乙基愈创木酚液相·OH氧化SOA产率及特征分析:初始浓度的影响	庄雨, 陈彦彤, 李旭东, 马帅帅, 赵竹子, 叶招莲, 盖鑫磊 (146)
乌鞘岭南、北坡降水稳定同位素特征及水汽来源对比	徐秀婷, 贾文雄, 朱国锋, 马兴刚, 张显, 袁瑞丰, 张志远, 石阳 (155)
长江源多年冻土区地下水氢氧稳定同位素特征及其影响因素	汪少勇, 何晓波, 丁永建, 常福宣, 吴锦奎, 胡召富, 王利辉, 杨贵森, 邓明珊 (166)
巴尔喀什湖流域水化学和同位素空间分布及环境特征	沈贝贝, 吴敬禄, 吉力力·阿不都外力, A. S. Saparov, Gulnura Isanova (173)
城市湖泊水环境整治对改善水质的影响:以蠡湖近30年水质变化为例	田伟, 杨周生, 邵克强, 潘辉, 胡洋, 白承荣, 姜星宇, 高光, 汤祥明 (183)
典型药物及个人护理品在黄东海海域水体中的检测、分布规律及其风险评估	陈贤, 张彩杰, 杨桂朋, 张婧, 刘梦 (194)
长江南京段水源水中有机磷酸酯的污染特征与风险评估	李栋, 张圣虎, 张芹, 王博, 卜元卿, 赵欣, 李辉, 宋宁慧, 郭瑞昕 (205)
雄安新区-白洋淀冬季冰封期水体溶解性有机物的空间分布、光谱特征及来源解析	周石磊, 孙悦, 张艺冉, 蒋永丰, 尹璐, 黄廷林, 李再兴, 罗晓, 战江, 王函 (213)
白洋淀表层沉积物元素的空间特征、风险评价及来源分析	汪敬忠, 刘卓, 魏浩, 吴玉会, 占水娥, 朱迟, 张益森 (224)
松花江表层沉积物PAEs分布特征及生态风险评价	王欢, 杨永哲, 王海燕, 董伟丰, 闫国凯, 常洋, 李泽文, 赵远哲, 凌宇 (232)
鄱阳湖湖口-长江段沉积物中微塑料与重金属污染物的赋存关系	李文华, 简敏菲, 刘淑丽, 江玉梅, 邓艳彬, 朱琳 (242)
臭氧对生物活性炭中微生物及出水消毒副产物的影响	刘宝明, 王夕希, 张晓夏, 顾艳芳, 李雨平, 阮文权, 缪恒峰, 潘杨 (253)
兰州市西固区儿童饮水重金属暴露与健康风险精细化评估	陈月芳, 孙善伟, 段小丽, 许锦荣, 王娟, 康艺瑾, 梁为纲, 曹素珍 (262)
镁铁层状双金属氢氧化物对磷酸盐的吸附作用及对内源磷释放的控制效果及机制	吴俊麟, 林建伟, 詹艳慧, 程永前, 柏晓云, 辛慧敏, 常明玥 (273)
一硫代磷酸盐在介质上的吸附特征及机制	廖丹雪, 单慧媚, 彭三曦, 潘敖然, 黄健, 陈辉, 赵超然 (284)
酸碱复合改性海泡石亚结构特征及其对Cd(II)吸附性能	谢厦, 徐应明, 闫翠侠, 罗文文, 孙约兵 (293)
脱氮菌剂在低溶解性黑臭水体中氮代谢特征	赵志瑞, 刘硕, 李铎, 李海萍, 李方红, 张佳瑶, 白志辉 (304)
宏基因组方法分析医药化工废水厂中抗生素耐药菌及耐药基因	陈红玲, 张兴桃, 王晴, 姚沛琳 (313)
淀粉废水处理系统中活性污泥的微生物群落结构及多样性分析	赵婷婷, 乔凯, 王蕾, 张伟, 竺建荣, 唐一, 胡滨, 王香莲, 杨静, 景在涛 (321)
基于SBR-ABR实现PN-SAD耦合工艺的运行与优化调控	陈重军, 张敏, 姜滢, 郭萌蕾, 谢嘉玮, 谢军祥, 沈耀良 (330)
基于间歇饥饿的SNAD工艺运行	李冬, 刘志诚, 徐贵达, 王玉颖, 张杰 (337)
反硝化-高效部分亚硝化-厌氧氨氧化工艺处理老龄垃圾渗滤液	陈小珍, 汪晓军, Karasuta Chayangkun, 周松伟, 钟中, 陈振国, 陈晓坤 (345)
硝化微颗粒污泥快速培养及其亚硝化功能快速实现	刘文如, 宋家俊, 王建芳, 沈耀良 (353)
高频曝停下曝时间对亚硝化颗粒污泥性能的影响	张杰, 劳会妹, 李冬, 魏子清 (360)
中国东北沈抚地区土壤中PBDEs的残留、来源及风险评价	向鑫鑫, 鲁垠涛, 阮起扬, 赖偲, 孙绍斌, 姚宏, 张战胜 (368)
某焦化场地非均质包气带中多环芳烃(PAHs)来源及垂向分布特征	孟祥帅, 吴萌萌, 陈鸿汉, 岳希, 陶抒远 (377)
北京蔬菜地土壤中抗生素抗性基因与可移动元件的分布特征	张汝凤, 宋渊, 高浩泽, 程首涛, 孙艳梅, 王旭明 (385)
长期施肥和耕作下紫色土坡耕地土壤C、N、P和K化学计量特征	杜映妮, 李天阳, 何丙辉, 贺小容, 付适 (394)
亚热带稻田土壤碳氮磷生态化学计量学特征	宋佳龄, 盛浩, 周萍, 段良霞, 周清, 张杨珠 (403)
宛山荡农田土壤氮迁移过程反硝化与厌氧氨氧化	陈志浩, 覃云斌, 丁帮琛, 胡优优, 陈湜, 李正魁 (412)
秸秆炭化还田对滴灌棉田土壤微生物代谢功能及细菌群落组成的影响	王晶, 马丽娟, 刘泽华, 陆伟, 侯振安 (420)
基于PMF模型的九龙江流域农田土壤重金属来源解析	黄华斌, 林承奇, 胡恭任, 于瑞莲, 郝春莉, 陈枫桦 (430)
塔里木盆地东南缘绿洲区土壤砷空间分布及农作物砷富集特征	陈云飞, 周金龙, 曾妍妍, 王松涛, 杜江岩, 孙英, 顾思博 (438)
广西典型碳酸盐岩区农田土壤-作物系统重金属生物有效性及迁移富集特征	马宏宏, 彭敏, 刘飞, 郭飞, 唐世琪, 刘秀金, 周亚龙, 杨柯, 李括, 杨峥, 成杭新 (449)
不同钝化剂对微碱性土壤镉、镍形态及小麦吸收的影响	张静静, 朱爽阁, 朱利楠, 柳海涛, 杨金康, 化党领 (460)
不同钝化剂对鸡粪堆肥重金属钝化效果及其腐熟度指标的影响	栾润宇, 高珊, 徐应明, 纪艺凝, 闫翠侠, 孙约兵 (469)
黄土丘陵区退耕草地土壤呼吸及其组分对氮磷添加的响应	周俊杰, 陈志飞, 杨全, 赖帅彬, 王智, 徐炳成 (479)
炉渣与生物炭施加对福州平原水稻田温室气体排放的后续影响	蓝兴福, 王晓彤, 周雅心, 金强, 许旭萍, 王维奇 (489)
《环境科学》征订启事(89)	
《环境科学》征稿简则(97)	
信息(303, 329, 344)	

近 20 年来中国 PM_{2.5} 污染演变的时空过程

时燕^{1,2,3}, 刘瑞梅^{1,2}, 罗毅^{1,2*}, 杨昆^{1,2}

(1. 云南师范大学信息学院, 昆明 650500; 2. 云南师范大学西部资源环境地理信息技术教育部工程研究中心, 昆明 650500; 3. 云南电网有限责任公司信息中心, 昆明 650217)

摘要: 本研究基于国控监测网络的 PM_{2.5} 实测数据、MODIS AOD 数据以及气象参数(温度、风速、风向、边界层高度和相对湿度), 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(ε -SVR)与思维进化算法优化后的 BP 神经网络(MEC-BP)的二阶段 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。结果表明, 本研究提出的二阶段组合估算模型提供了中国 2000~2017 年内空间分辨率为 $1^\circ \times 1^\circ$ 的月度近地面 PM_{2.5} 浓度的可靠估算, 有效地弥补了中国地面监测网络在时间和空间上的空白(模型的决定系数 R^2 为 0.838, 均方根误差 RMSE 为 $11.512 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 平均绝对百分比误差 MAPE 为 14.905%, 均方百分比误差 MSPE 为 0.243%, 绝对误差 MAE 为 $6.476 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, 均方误差 MSE 为 $132.519 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)。时间变化过程分析结果表明: ①2014 年是 2000~2017 年内中国 PM_{2.5} 浓度从持续缓慢上升到快速下降的关键转折点, 其中, 从 2014 年开始, PM_{2.5} 浓度较高的北部沿海、东部沿海和长江中游地区的 PM_{2.5} 污染情况改善较明显。②然而, 在研究时间范围内, 全国仍有超过 65% 的区域 PM_{2.5} 年均浓度超过了二级限值($35 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$), 虽然全国 PM_{2.5} 污染情况有一定程度地改善, 但是空气污染形势依然严峻。

关键词: 空气质量; 中国; PM_{2.5} 估算; 二阶段组合估算模型; 趋势检验; 突变检验

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2020)01-0001-13 DOI: 10.13227/j.hjxx.201905109

Spatiotemporal Variations of PM_{2.5} Pollution Evolution in China in Recent 20 Years

SHI Yan^{1,2,3}, LIU Rui-mei^{1,2}, LUO Yi^{1,2*}, YANG Kun^{1,2}

(1. School of Information Science and Technology, Yunnan Normal University, Kunming 650500, China; 2. GIS Technology Engineering Research Centre for West-China Resources and Environment, Ministry of Education, Yunnan Normal University, Kunming 650500, China; 3. Information Center of Yunnan Power Grid Co., Ltd., Kunming 650217, China)

Abstract: We use measured aerosol fine particulate matter (PM_{2.5}) data, moderate resolution imaging spectroradiometer (MODIS) aerosol optical depth (AOD) data, and meteorological parameters (temperature, wind speed, wind direction, boundary layer height, and relative humidity) from the Chinese national control monitoring network, to consider seasonal and regional differences in the relationship between AOD and PM_{2.5}. We propose a two-stage combined estimation model of PM_{2.5} concentrations based on the ε -support vector regression (ε -SVR/Epsilon-SVR) and the Mind Evolutionary Computation-BP neural network (MEC-BP) for analyzing spatiotemporal variations in PM_{2.5} concentrations in China between 2000 and 2017. The results showed that the two-stage combined estimation model provided a reliable estimation of the monthly ground-level PM_{2.5} concentrations at a spatial resolution of $1^\circ \times 1^\circ$ during 2000-2017 in China. This effectively offsets the time and space gaps in the current data sets of the ground monitoring network ($R^2=0.838$, root mean square errors (RMSE) = $11.512 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, mean absolute percentage error (MAPE) = 14.905%, mean squared percentage error (MSPE) = 0.243%, mean absolute error (MAE) = $6.476 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, mean squared error (MSE) = $132.519 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$). The preliminary spatiotemporal analysis results showed that: ① Over the period 2000-2017, 2014 represented an important demarcation point for the annual PM_{2.5} concentration, as its trend changed from one of continuous increase to one of rapid decrease. The PM_{2.5} concentration decreases more rapidly in areas with high concentrations of PM_{2.5} in particular, including the northern coastal area, the eastern coastal area, and the middle reaches of the Changjiang River. ② During the studied period, the annual average PM_{2.5} concentration exceeded the second level criterion of the Chinese national air quality standard ($35 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) over more than 65% of China. Although the PM_{2.5} pollution situation in China improved to a certain extent in the latter years of the studied period, the air pollution situation remained poor.

Key words: air environment; China; PM_{2.5} estimation; two-phase hybrid model; trend test; change-point test

在过去近 30 年里, 中国以“高能耗、高污染”的方式实现了工业化、城市化和社会经济的快速发展, 发展过程中伴随着城市空间盲目扩张、机动车拥有量快速增加、能源、资源消耗迅速增长^[1]和城市植被覆盖率快速下降^[2]等现象, 间接引发了一系列严峻的包括空气污染在内的环境问题。作

为最大的发展中国家, 中国正面临着严重的空气污染问题^[3]。近年来中国多地空气重度污染事件

收稿日期: 2019-05-15; 修订日期: 2019-08-27

基金项目: 国家自然科学基金项目(41761084); 云南省自然科学基金青年基金项目(2016FD020)

作者简介: 时燕(1993~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为地理信息系统, E-mail: xdshtyan@163.com

* 通信作者, E-mail: lysesist@ynnu.edu.cn

频发,从 2012 年开始,全国 338 个地级及以上城市陆续建成了 $\text{PM}_{2.5}$ 地面监测网络,并开展了空气质量新标准监测. 2017 年在全国 338 个地级及以上城市中,以 $\text{PM}_{2.5}$ 为首要污染物的天数占重度污染及以上污染天数的 74.2%, $\text{PM}_{2.5}$ 已经成为我国大部分城市环境空气质量的首要污染物^[4]. $\text{PM}_{2.5}$ 污染给交通运输、自然环境、人类健康和社会可持续发展带来严重影响,因此全面准确地了解我国 $\text{PM}_{2.5}$ 污染的时空变化情况对控制 $\text{PM}_{2.5}$ 污染和确保我国的可持续发展至关重要.

连续、长时间和大范围的 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度数据是研究 $\text{PM}_{2.5}$ 污染时空变化规律的基础,然而我国 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度地面监测网络建成时间较晚,且地面监测站点覆盖范围较小,空间分布不均匀,可获取的传统地面监测数据通常难以满足 $\text{PM}_{2.5}$ 相关研究的需要. 气溶胶光学厚度(aerosol optical depths, AOD)与 $\text{PM}_{2.5}$ 有很强的相关性^[5,6],通过卫星遥感数据产品 AOD 来估算近地面 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度为从长时间序列、大空间尺度研究 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度提供了一种低成本且有效的方法^[5-9]. 近年来,国内外相关学者以全球不同的地区^[9-20]为研究对象,使用多元回归^[10]、非线性模型^[11]、线性混合效应^[12]、两阶段空间统计模型^[13]、两阶段广义相加模型^[14]、地理加权回归模型^[7]、化学传输模型^[15]、ANN^[10]、BP 神经网络^[12]和支持向量回归(SVR)^[16]等模型,建立了 $\text{PM}_{2.5}$ 和卫星遥感反演的 AOD 之间的关系模型,研究结果表明 AOD 和 $\text{PM}_{2.5}$ 之间的关系存在明显的时间差异和空间差异^[17,18]. 有研究表明,在 AOD- $\text{PM}_{2.5}$ 关系模型中加入气象参数可以有效提高模型估算精度^[7,13-15,19];Gupta 等^[10]使用 MODIS AOD 和气象数据估算了美国东南部的 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度,结果表明人工神经网络估算效果比简单线性回归和多元回归更好;郭建平等^[12]使用中国东部地区 5 个大气成分站气象数据和 11 个 $\text{PM}_{2.5}$ 地面监测站数据,结合 2007 ~ 2008 年 MODIS/Terra AOD,针对各个大气成分站分别构建了 BP 神经网络模型估算中国 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度,5 个模型的拟合系数在 0.4 ~ 0.6 之间;Nguyen 等^[16]使用多元线性回归(MLR)和 SVR 模型估算了越南河内的细微颗粒($\text{PM}_{2.5}$ 和 PM_{10})的浓度,研究结果表明 SVR 的回归效果普遍优于 MLR.

尽管已经有大批学者在我国 $\text{PM}_{2.5}$ 污染方面开展了大量的研究,但这些研究大多关注于 $\text{PM}_{2.5}$ 污染严重的区域^[14-20],或直接以全国作为一个整体为研究对象^[7,20]. 我国的东部和西部、沿海和内陆地区在自然条件、经济水平和人口规模等方面存在着明

显差异,造成 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度变化特征差异明显. 根据自然和社会经济同质性将中国完全划分为多个子区域,然后对 $\text{PM}_{2.5}$ 的长期时空变化特征进行估算和分析是有必要的. 同时,从大气污染防治行动计划^[21]发布以来,各地空气污染状况已经在一定程度上得到缓解,很明显 2000 ~ 2017 年我国 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度是一个阶段性动态变化的过程,现有研究主要通过整个时间序列数据进行趋势分析^[19],而线性回归只能评估数据序列在某时间段内的整体变化,无法客观地体现指定时间段内的逐步变化过程.

在前期研究基础上^[22-24],本研究以 2013 年 1 月至 2017 年 12 月内所有可获取的国控空气质量地面监测站的实测 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度数据、2000 年 3 月至 2017 年 12 月内卫星遥感反演的 MODIS AOD 数据以及气象参数(温度、风速、风向、边界层高度和相对湿度)为基础数据集,综合考虑 AOD 与 $\text{PM}_{2.5}$ 关系的季节性和区域性差异性,基于支持向量回归机与思维进化算法优化后的 BP 人工神经网络,构建了一个全国尺度下近地面 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度的二阶段组合估算模型. 在此基础上,从长时间和大空间尺度分析了中国 $\text{PM}_{2.5}$ 污染演变的时空变化过程,以期开展全球 $\text{PM}_{2.5}$ 时空演变过程和特征分析提供方法借鉴,并为揭示 $\text{PM}_{2.5}$ 形成机制、空间异质性以及其它与 $\text{PM}_{2.5}$ 相关的研究提供数据基础.

1 材料与方法

1.1 研究区域

本研究以中国为研究区域,经纬度范围为 $73^{\circ} \sim 135^{\circ}\text{E}$ 、 $17^{\circ} \sim 54^{\circ}\text{N}$. 国务院发展研究中心根据各省自然条件及经济的同质性于 2005 年提出了对大陆 31 个省的八大经济区域划分方式,八大经济区域包括:东北地区(northeast region, NE)、北部沿海(northern coastal area, NC)、东部沿海(eastern coastal area, EC)、南部沿海(southern coastal area, SC)、黄河中游(middle yellow river, MYR)、长江中游(middle changjiang river, MCR)、西南地区(southwest China, SW)和大西北地区(northwest China, NW). 图 1 为八大经济区域、国控空气质量地面监测站点的空间分布,2000 ~ 2017 年内每年各经济区域的 GRP(地区生产总值)占我国 GDP(国内生产总值,不包括港澳台地区)的占比情况(各省地区生产总值数据来自于国家数据官网^[25]). 可以看到,区域 GRP 占比最高的区域主要为 EC 和 NC 地区;而在 SC 和 MCR 地区的 GRP 占比较高;在 SW 和 MYR 地区的 GRP 占比较低;在 NE 和 NW 地区的 GRP 占比最低.

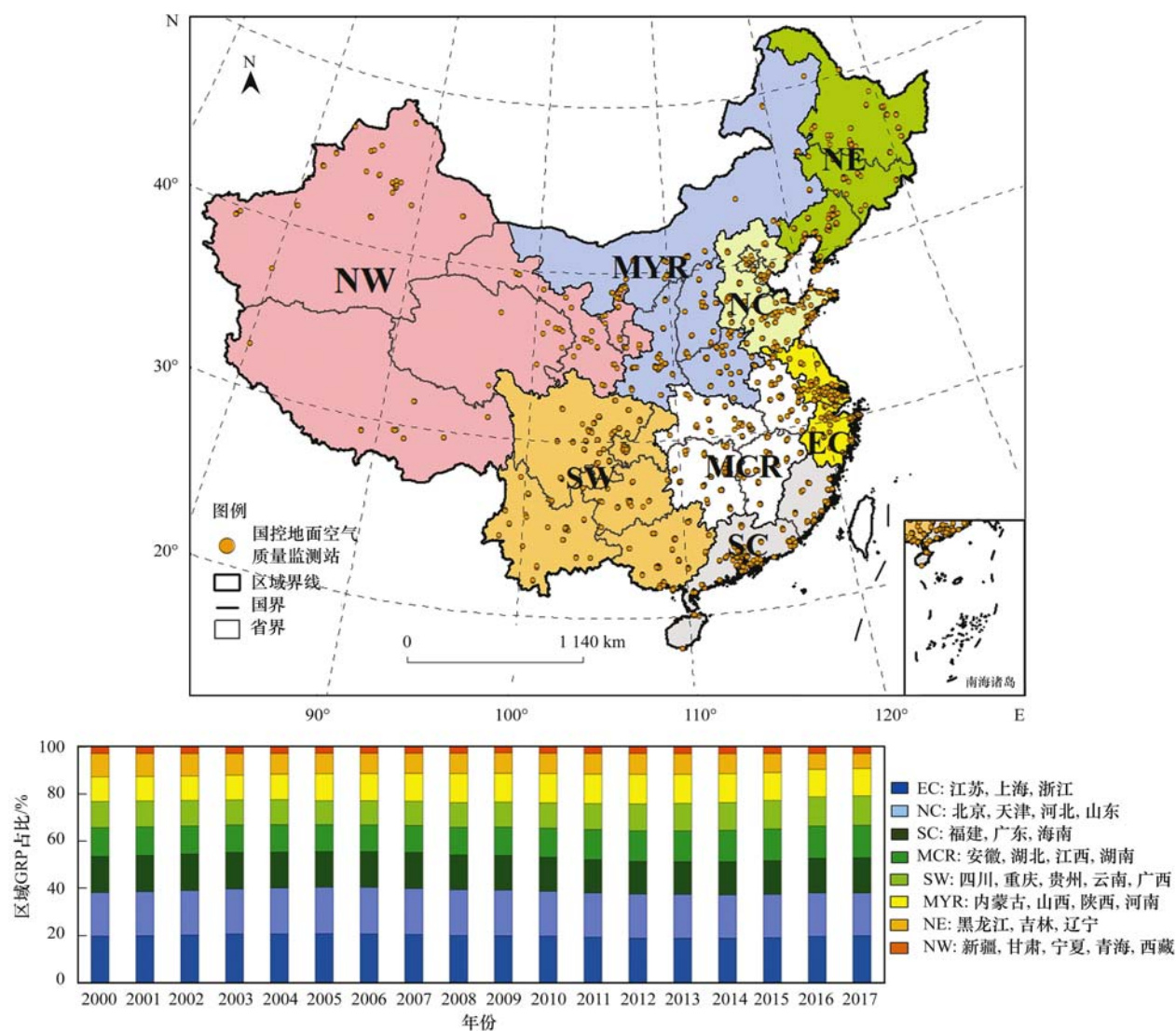


图1 研究区域概况

Fig. 1 Overview of study area

1.2 数据来源

1.2.1 MODIS AOD 数据

本研究从大气存档和分配系统^[26]获取了2000年3月至2017年12月期间内月均尺度的MOD08 M3和MYD08 M3文件(C6,空间分辨率为 $1^{\circ} \times 1^{\circ}$),并选用了使用深蓝算法反演的550nm处陆地气溶胶数据产品(参数名:Deep_Blue_Aerosol_Optical_Depth_550_Land_Mean_Mean).

1.2.2 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AOD-PM_{2.5}关系模型的精度,从欧洲中期天气预报中心^[27]获取了2000年3月至2017年12月的5种空间分辨率为 $1^{\circ} \times 1^{\circ}$ 的月均气象数据作为本研究中PM_{2.5}浓度估算模型的协变量,包括2 m气温(T2M,K)、10 m风的东向分量(10U, $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$)、10 m风的北向分量(10V, $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$)、边界层高度(BLH,m)和相对湿度(RH,%).其中,

10 U与10 V两个参数组合在一起可给出水平10 m风的速度和方向.

1.2.3 PM_{2.5}地面监测数据

我国从2013年1月陆续开始发布PM_{2.5}地面监测数据,本研究从全国城市空气质量实时发布平台^[28]获取了2013年1月至2017年12月内的62 166 756行每小时实测数据,共涉及1 621个国控空气质量地面监测站点,其中,PM_{2.5}地面监测站点分布如图1所示,监测站点的数量呈现明显的由东向西、由南向北逐渐递减的分布特点.

2 数据处理

2.1 二阶段PM_{2.5}浓度组合估算模型

大部分研究结果表明,回归型支持向量机^[29]和BP神经网络^[29,30]的非线性回归效果普遍优于传统的统计回归模型.BP神经网络对初始值(初始权重和阈值)设置较敏感,通过思维进化算法(mind

evolutionary computation, MEC) 对其进行优化, 可有效避免其陷入局部最小^[30]. MEC-BP 算法不受初始种群规模限制, 学习速度快, 既能满足精度要求, 也能降低网络复杂性, 具有很好地扩展性. 通常在解决小样本的非线性回归问题时, ε -SVR 具有许多独特优势, 但当其解决大数据集的非线性回归问题时处理速度较慢, 而 BP 神经网络的收敛速度较快. 本研究数据样本较大, 气象参数、AOD 与 $PM_{2.5}$ 之间的关系是非线性的, AOD 与 $PM_{2.5}$ 关系存在明显的季节性和区域性差异性. 因此, 本研究提出了一种基于 ε -SVR-MEC-BP 算法的近地面 $PM_{2.5}$ 浓度二阶段组合估算模型, 组合模型的训练和估算过程如下.

2.1.1 数据预处理

(1) MODIS AOD 提取、融合及插值 因从 MOD08 和 MYD08 文件提取的两种 AOD 数据的时间覆盖范围和数据缺失情况有差异, 故使用一元线性回归模型以实现 MODIS AOD 数据的融合^[7,9,20], 当两种 AOD 数据中仅有一个数据缺失时, 可以结合线性回归模型估算另一个数据, 最终两种 AOD 数据的均值参与模型构建. 由于云层覆盖、高表面反射率(如沙漠、积雪天气、冰川覆盖)或检索错误等原因^[14], 几乎每个月的 AOD 数据都存在不同程度的非随机性缺失, 故使用克里金插值对 AOD 数据缺失率较低的春、夏和秋季进行插值, 但冬季缺失率较高, 所以不进行插值处理. 经过插值处理后的 AOD 数据不参与模型训练, 仅在获得理想模型后估算 $PM_{2.5}$ 时使用.

(2) 气象数据和 $PM_{2.5}$ 实测数据的提取 每年的气象数据以一个三维数组的形式存储([经度][纬度][月份]), 批量提取每一种气象数据. 本研究获取到的地面 $PM_{2.5}$ 监测数据为每小时的点值, 为了确保由点到面转化后的 $PM_{2.5}$ 浓度的月均值能够更准确地表征每一个网格内的近地面 $PM_{2.5}$ 浓度, 在提取数据过程中引入了《环境空气质量标准》(GB 3095-2012): 首先, 剔除 $PM_{2.5}$ 每小时实测数据的缺失值、异常值($PM_{2.5} \leq 0$), 以网格为单位计算每小时 $PM_{2.5}$ 浓度均值, 然后计算日均 $PM_{2.5}$ 浓度(每日多于 20 h), 最后计算 $PM_{2.5}$ 浓度月均值(2 月多于 25 d, 其余月份多于 27 d).

(3) 划分数据集 删除没有覆盖在我国陆地区域的网格(剩余 112 个)及其所对应的 AOD 数据和气象数据, 并完成气象数据、MODIS AOD 数据和 $PM_{2.5}$ 数据的时空匹配, 得到集合 S . 将数据集 S 分别按季节和区域划分为子数据集($S_{z1}, S_{z2}, \dots, S_{z8}, S_{z11}, S_{z12}, \dots, S_{z14}$, 其中, S_z 表示按区域划分, S_t 表示按季节划分), 其中八大经济区域划分主要是针对内

陆地区 31 个省(不包括港澳台), 因港澳台地理位置、自然条件与南部沿海地区较接近, 故将港澳台与南部沿海地区划为一类.

2.1.2 模型构建及训练

(1) 第一阶段 ε -SVR 分区域、分季节建模

将子数据集($S_{z1}, S_{z2}, \dots, S_{z8}, S_{z11}, S_{z12}, \dots, S_{z14}$) 内的 $PM_{2.5}$ 、MODIS AOD 和气象参数(10U、10V、BLH、RH)均非空的数据用于建模. 基于每一个子数据集分别训练 12 个 ε -SVR 模型, 选取了高斯径向基核函数, 并使用交叉检验用于确定 ε -SVR 参数. 在多次实验获得理想模型后, 将 12 个 $PM_{2.5}$ 浓度估算序列合并, 最后得到由分区域估算的 $PM_{2.5}$ 、分季节估算的 $PM_{2.5}$ 和实际 $PM_{2.5}$ 浓度序列组成的数据集 S_1 .

(2) 第二阶段 MEC-BP 神经网络建模

数据集 S_1 内分区域估算的 $PM_{2.5}$ 和分季节估算的 $PM_{2.5}$ 作为输入变量, 实际的 $PM_{2.5}$ 浓度作为输出变量, 使用 MEC-BP 进行模型训练, 其中输入层节点数量为 2, 输出节点数量为 1, 通过多次实验得到当隐含层节点数为 5 时模型精度最高, 故 BP 神经网络的拓扑结构为 2-5-1. MEC 算法初始化参数如下: 种群大小为 200, 子种群大小为 20, 优胜子种群个数为 5, 临时子种群个数为 5, 迭代次数为 100.

2.1.3 模型精度评价及数据估算

本研究使用 $PM_{2.5}$ 浓度的估算值与观测值的均方误差 (MSE, $\mu g \cdot m^{-3}$)、绝对误差 (MAE, $\mu g \cdot m^{-3}$)、平均绝对百分比误差 (MAPE, %)、均方百分比误差 (MSPE, %)、均方根误差 (RMSE, $\mu g \cdot m^{-3}$) 和决定系数 R^2 评价模型的性能. 得到理想的模型后, 将 AOD 和气象参数均为非空并且实测的 $PM_{2.5}$ 浓度数据为空的数据集用作输入变量以估算在我国 2000-03 ~ 2017-01 期间内缺失的 $PM_{2.5}$ 浓度数据.

2.2 $PM_{2.5}$ 浓度时间序列的趋势和突变检验

基于实测的和估算的 $PM_{2.5}$ 浓度数据, 将突变检验和趋势分析相结合, 以揭示近 20 年来我国 $PM_{2.5}$ 浓度的阶段性动态变化特征. 首先, 使用 Pettitt 突变检验^[31] (Pettitt test) 对 $PM_{2.5}$ 浓度时间序列做突变点分析, 如果检测到突变点, 则以突变点为分割点, 将该 $PM_{2.5}$ 时间序列分割为两个序列, 并对两个子序列分别进行 Mann-Kendall (M-K) 趋势检验^[31]. 同时, 本研究也使用 M-K 趋势检验对完整的 $PM_{2.5}$ 浓度时间序列进行趋势检验, 以揭示研究时间范围内 $PM_{2.5}$ 浓度的整体变化特征. 此外, 还计算了多个 $PM_{2.5}$ 浓度时间序列的 Theil-Sen's^[32] 倾斜度以量化变化趋势的大小.

2.2.1 Pettitt 突变检验

Pettitt 突变检验是一种基于秩的检验,能检测到时间序列的平均值的突然变化.通过突变检验可找出时间序列的突变时间 t_0 ,并计算出统计变量 P ,若 P 小于刚给定显著性水平时(取 $\alpha = 0.1$),则认为检测出的突变点在统计学意义上是显著的,已知长度为 n 的按年份顺序排列的 PM_{2.5} 年均浓度序列 X ,具体的计算公式如下:

$$r_i = \begin{cases} +1, & x_i > x_j \\ 0, & x_i = x_j \\ -1, & x_i < x_j \end{cases} \quad (1)$$

$$S_k = \sum_{i=1}^k r_i \quad (k = 2, 3, \dots, n) \quad (2)$$

若在 t_0 年满足 $k(t_0) = \max |S_k|$, $k = 2, 3, \dots, n$, 则 t_0 年即为突变点.

$$P = 2 \exp[-6k(t_0)^2 / (n^3 + n^2)] \quad (3)$$

2.2.2 Mann-Kendall 趋势检验

Mann-Kendall (M-K) 趋势检验是一种非参数检验,通常用于监测环境数据、气候数据或水文数据的单调趋势,它不要求样本遵从一定的分布,也不受少数异常值的干扰,它已被普遍用于环境方面时间序列的趋势检测.通过 Mann-Kendall 趋势检验可以检测到某个时间序列中是否存在单调的增加或减小的趋势,以及检测到的趋势是否具有统计学意义,即通过 Mann-Kendall 趋势检验可以计算出指定时间序列的测试统计量 Z ,正的 Z 表示上升趋势,负的 Z 表示下降趋势,其中统计量 Z 遵循正态分布,当 $|Z| > U_{1-\alpha/2}$ 时表示变化趋势具有统计显著性,其中 $U_{1-\alpha/2}$ 是标准正态分布的 $(1 - \alpha/2)$ 分位数.

已知长度为 n 的按年份顺序排列的 PM_{2.5} 年均浓度序列 X , Mann-Kendall 趋势检验的过程即先将每年的年均 PM_{2.5} X_i ($i = 1, 2, \dots, n$) 作为参考点将其与其余数据点 X_j ($j = i + 1, 2, \dots, n$) 进行比较并计算统计量 Z ,具体计算公式如下:

$$S = \sum_{i=1}^n \sum_{j=i+1}^n \text{Sgin}(x_j - x_i) \quad (4)$$

$$\text{Sgin}(x_j - x_i) = \begin{cases} +1, & x_j > x_i \\ 0, & x_j = x_i \\ -1, & x_j < x_i \end{cases} \quad (5)$$

$$Z = \begin{cases} \frac{S - 1}{\sqrt{\text{Var}(S)}}, & S > 0 \\ 0, & S = 0 \\ \frac{S + 1}{\sqrt{\text{Var}(S)}}, & S < 0 \end{cases} \quad (6)$$

$$\text{Var}(S) = \frac{[n(n-1)(2n+5)]}{18} \quad (7)$$

2.2.3 Theil-Sen's 趋势斜率估计

通过 Theil-Sen's 趋势斜率估计可以计算出某个时间序列的趋势斜率,即对趋势幅度进行的稳健估计,该方法已经被广泛用于识别时间序列中趋势线的斜率.通过计算变量 β (倾斜度)即可知道序列随时间增加或减小的具体值^[32].

$$\beta = \text{Median}\left(\frac{x_i - x_j}{t_i - t_j}\right) \quad (8)$$

式中, x_i 和 x_j 分别表示在 t_i 和 t_j 年的 PM_{2.5} 浓度 ($i > j$).

3 结果与分析

3.1 子数据集的描述性统计

基于分区域和季节划分的 12 个子数据集 S_{ai} ($i = 1, 2, \dots, 8$) 和 S_{bj} ($j = 1, 2, \dots, 4$) 分别计算了各子集内 PM_{2.5}、MODIS AOD、T2M、10U、10V、BLH 和 RH 这 7 个变量之间的 Pearson 相关系数和各变量的概率分布.结果表明不同的区域和季节, PM_{2.5} 与 MODIS AOD 的概率分布是相似的,且 MODIS AOD 与 PM_{2.5} 的相关系数均大于 0 且通过了 95% 的显著性水平检验即两者之间正相关;因为季节、气象条件和地理位置存在差异, PM_{2.5} 浓度的概率分布, MODIS AOD 与 PM_{2.5} 之间的关系均呈现明显差异,该结果也进一步论证了本研究分区域、分季节建模的合理性.

分区域角度, MODIS AOD 与 PM_{2.5} 的相关系数在 0.24 ~ 0.56 范围内,其中南部沿海(SC) MODIS AOD 与 PM_{2.5} 的相关系数最低($r = 0.24$)这可能因为南部沿海地区临海面积大,海盐颗粒物为该区域气溶胶的主要组成部分, PM_{2.5} 的占比较低;同时,沿海地区的下浮地表特征和复杂的气溶胶类型会对中等分辨率光谱仪的算法精度产生影响,进而加大了 MODIS AOD 的反演难度^[33].在地形复杂、有冰川分布且沙漠分布较密集的西北地区和冬季积雪较多的东北地区 AOD 与 PM_{2.5} 的相关系数也较低($r < 0.4$);在西南地区(SW) MODIS AOD 与 PM_{2.5} 浓度的相关性最高($r = 0.56$);此外,气象参数(T2M、10U、10V、BLH、RH)与 PM_{2.5} 的相关系数大部分为负数,这说明温度、风速、边界层高度和相对湿度对 PM_{2.5} 的增长有一定的抑制作用.而在分季节角度,夏季里 MODIS AOD 与 PM_{2.5} 的相关性最高($r = 0.67$),冬季相关性最低($r = 0.53$),在春季和秋季相关性较高.

3.2 模型的训练和验证

经过第一阶段 ε -SVR 分区域建模后,各经济区

域模型效果呈由沿海向内陆逐渐递减的趋势;在监测站点分布较密集的东部沿海、北部沿海、南部沿海、黄河中游和长江中游地区模型拟合效果较好;在大西北地区模型的决定系数最低且误差类指标较差,主要原因是大西北地区 $\text{PM}_{2.5}$ 监测点分布较稀疏、地形复杂、沙漠、冰川分布较密集. 经过第一阶段 ε -SVR 分季节建模后,模型拟合效果在春季最差,在夏、秋和冬季模型拟合效果较好. 其中,在 MODIS AOD 数据缺失率较高的冬季和东北区域模型拟合效果较好的原因主要是:缺失的 MODIS AOD 数据剔除

了雨雪等极端天气的 AOD 数据,而这部分数据恰好是与地面 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度相关性较弱的 AOD 数据,进而提升了模型精度. 表 1 为将样本集 S_1 内分区域估算和分季节估算的 $\text{PM}_{2.5}$ 序列作为模型的输入变量,实测的 $\text{PM}_{2.5}$ 序列作为模型的输出变量,经过第二阶段建模后的完整模型的效果,以及单独使用 ELM(极限学习机)、 ε -SVR、MEC-BP 对整个未划分的数据集 S 进行模型拟合的效果. 分析可知,相比只使用 ELM、 ε -SVR 或 MEC-BP,通过本研究提出的组合模型进行建模获得了最好的 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度估算效果.

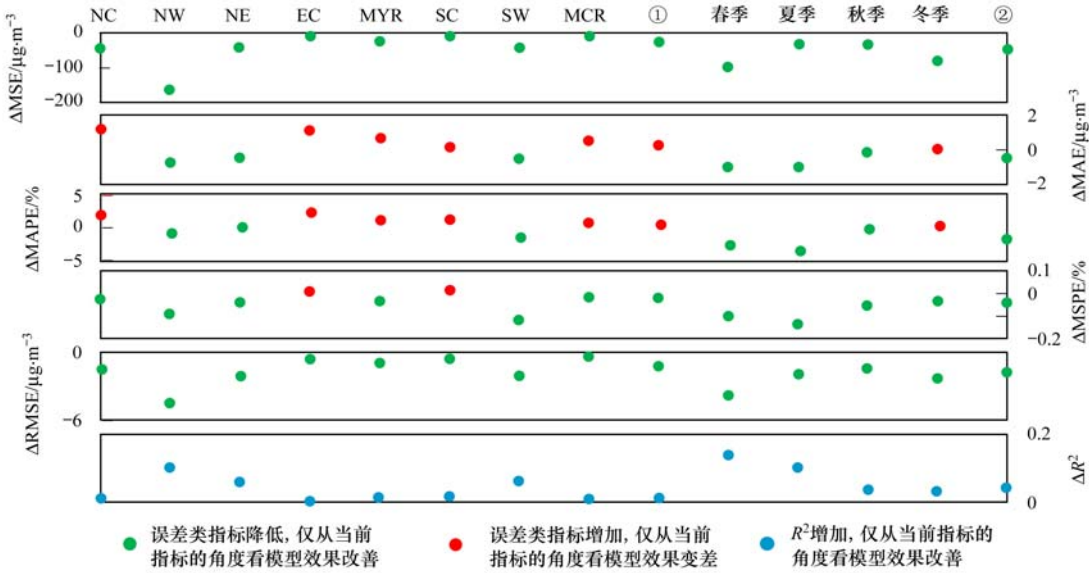
表 1 模型的具体性能评价参数及对比

Table 1 Comparison of specific performance and specific performance evaluation parameters						
模型	MSE/ $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	MAE/ $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	MAPE/%	MSPE/%	RMSE/ $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$	R^2
二阶段组合估算模型	132.519	6.476	14.905	0.243	11.512	0.838
一阶段 ε -SVR 分区域合并	160.074	6.229	14.335	0.258	12.652	0.820
一阶段 ε -SVR 分季节合并	174.958	6.984	16.546	0.283	13.227	0.797
仅使用 ε -SVR	266.245	9.712	23.579	0.376	16.317	0.679 5
仅使用 MEC-BP	299.837	11.991	30.053	0.419	17.316	0.632 5
仅使用极限学习机 ELM	526.812	16.267	41.526	0.565	22.952	0.354 3

为了比较经过二阶段 MEC-BP 建模后在各区域、各季节角度模型估算效果的改善情况,将组合模型最终估算结果序列和实测 $\text{PM}_{2.5}$ 序列组成的数据集,按照区域和季节进行划分,并计算了划分后子集的各项模型性能评价指标. 分别以不同的区域和季节计算各项评价指标差值(完整模型的各项评价指标分别减去第一阶段 ε -SVR 分区域、分季节建模的各项评价指标)情况(图 2),可以清楚地看到,经过第二阶段 MEC-BP 模型的进一步校正,从各经济区域、各个季节和全国角度看,结合 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度的估

算序列和实测序列计算的决定系数($\Delta R^2 > 0$)和大部分误差指标都有明显改善(图 2 中绿色点数明显多于红色点).

在完成模型精度评价及验证后,将估算的历史月均 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度数据与实测的 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度数据合并,进一步从多尺度角度分析了全国 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度的时空分布及时间变化特征. 其中,当计算 2000 年的年均 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度时,选用了 2001 年 1 月和 2 月的数据填补了 2000 年 1~2 月每一个格网内每一个格网内的 $\text{PM}_{2.5}$ 数据.



①完整模型效果与一阶段 ε -SVR 分区域建模合并后对比;②完整模型效果与一阶段 ε -SVR 分季节建模合并后对比

图 2 完整模型与一阶段 ε -SVR 分区域、分季节建模效果对比

Fig. 2 Comparison of the performance between the complete model and the first stage of the regional and seasonal ε -SVR model

3.3 2000~2017 年中国 PM_{2.5} 浓度的时空分布特征

3.3.1 全国尺度

图 3 为全国 2000~2017 内每年的年均 PM_{2.5} 浓度的冷热点分析结果叠加(置信水平为 90%、95% 和 99%)。近 20 年内中国 PM_{2.5} 年均浓度总体呈现东高西低的空间分布特点。在北部沿海地区、东部沿海地区和长江中游地区观察到了大范围高浓度的 PM_{2.5}; 最高的 PM_{2.5} 浓度普遍分布在北部沿海地区

的河北省和天津市,同时在北京以北区域 PM_{2.5} 污染稍轻;相比北部沿海和东部沿海,南部沿海区域 PM_{2.5} 浓度最低;较低的 PM_{2.5} 浓度主要在西南地区以西,大兴安岭地区、东北的小兴安岭地区,西藏以东地区被观测到;在西南地区,PM_{2.5} 浓度在重庆市和四川以东的区域最高,在广西区和贵州省较高,在云南省和四川以西区域最低;东北地区的 PM_{2.5} 浓度自西向东逐渐递减。

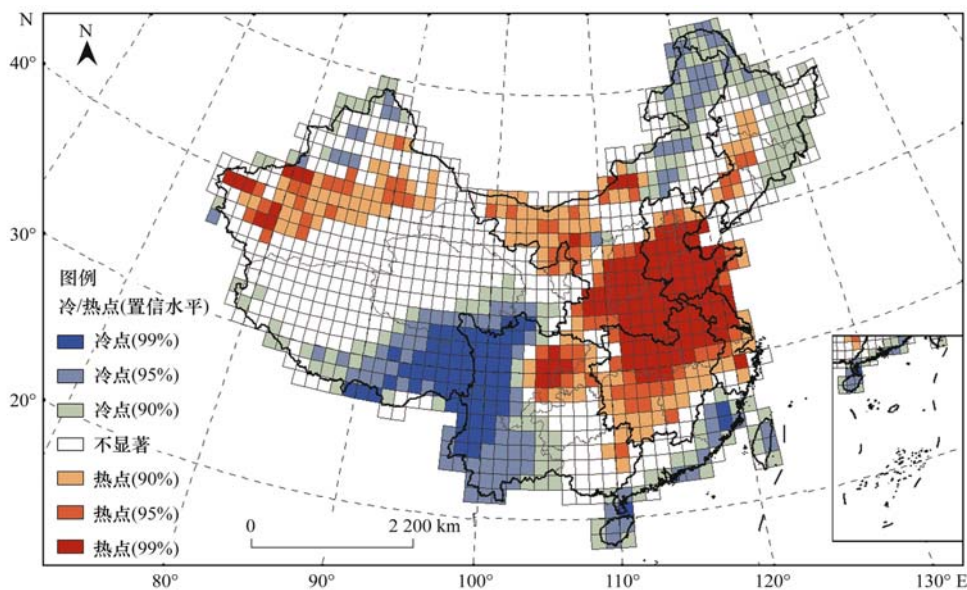


图 3 2000~2017 年 PM_{2.5} 年均值的冷热点分析

Fig. 3 Analysis of cold and hot points of PM_{2.5} annual means from 2000 to 2017

年均 PM_{2.5} 浓度的高值(热点)主要集中于在人口密集、经济发达、工业化水平较高(如北部沿海、东部沿海、长江中游地区)以及戈壁沙漠分布密集的区域(如大西北地新疆塔克拉玛干沙漠一带以及黄河中游的陕西、山西、甘肃和内蒙古以西区域)。年均 PM_{2.5} 浓度的低值(冷点)主要集中于四川、云南和西藏接壤处、以及大兴安岭地区与东北地区的小兴安岭地区。

3.3.2 八大经济区域尺度

图 4 为 2000-03~2017-12 范围内每月和每个季节各经济区域 PM_{2.5} 变化曲线。分析可知大部分经济区域的月均 PM_{2.5} 浓度在 1 月达到最大值,在 1~6 月快速下降,到 6 月达到最低值,然后在 6~12 月快速增大;部分地区偶尔会呈现高峰值在 12 月到次年 1 月之间的双峰型;只有在大西北地区每年的月均 PM_{2.5} 浓度的波动较稳定,而在其余区域每年的月均 PM_{2.5} 波动都不太一致。从季节均值上看,各经济区域内的冬季 PM_{2.5} 浓度最高,冬季到夏季逐渐递减,到夏季达到最低值,然后夏季到冬季逐渐递增;在不同的地区和不同的年份,春季和秋季的浓度大小存在明显差别。

3.4 2000~2017 年中国 PM_{2.5} 浓度的时间变化特征

3.4.1 全国尺度

根据《环境空气质量标准》(GB 3095-2012)规定,PM_{2.5} 年均值一级浓度限值为 15 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,二级浓度限值为 35 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,分析全国 PM_{2.5} 年均浓度变化曲线以及每年 PM_{2.5} 均值在 ≤ 15 、15~35 和 > 35 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 这 3 个范围内的 $1^\circ \times 1^\circ$ 格网数量占全国格网数量(共 1112 个)的占比变化情况可知,2000~2017 年内我国近 65% 的区域 PM_{2.5} 浓度超过二级浓度限值,PM_{2.5} 污染形势严重(图 5)。

对 2000~2017 年内全国年均 PM_{2.5} 序列进行 M-K 趋势检验的结果未通过 95% 置信水平的显著性检验,呈不显著的增长趋势(Theil-Sen's 倾斜度为 0.011)。通过 Pettitt 突变检验检测到 2014 年为研究时间范围内全国年均 PM_{2.5} 序列的显著突变时间,以 2014 年为分界线,将全国年均 PM_{2.5} 序列分为两个子序列并分别对其进行 M-K 趋势检验,两个子序列的变化趋势均通过了 95% 置信水平的显著性检验,2000~2014 年中国年均 PM_{2.5} 浓度缓慢持续增长(Theil-Sen's 倾斜度为 0.124),2014~2017 年中国年均 PM_{2.5} 浓度快速减小(Theil-Sen's 倾斜度为

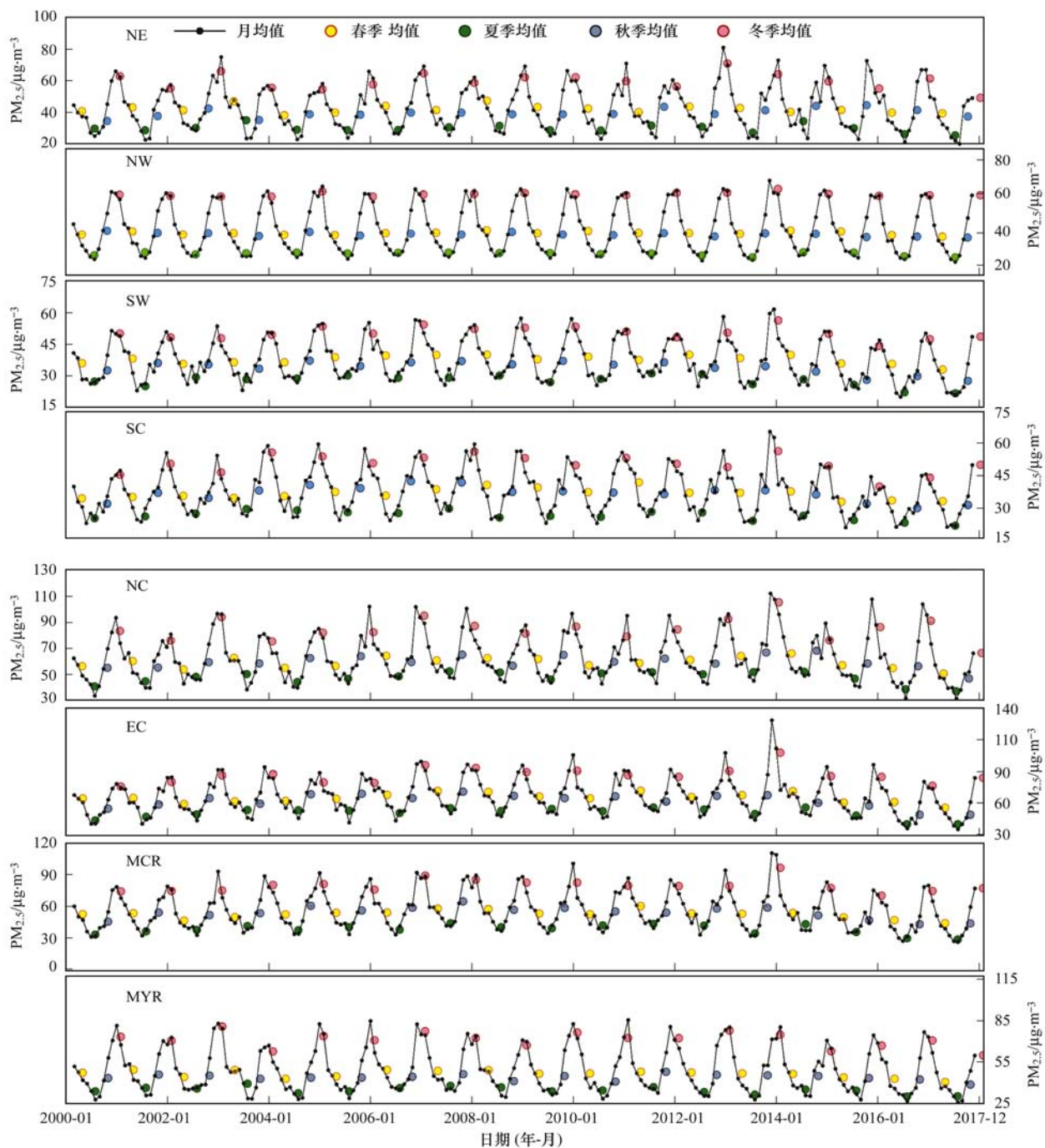


图4 2000-03 ~ 2017-12 各区域的月均及季均 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度变化曲线

Fig. 4 Variation curve of monthly and seasonal average of $\text{PM}_{2.5}$ concentrations in eight economic regions from March 2000 to December 2017

-1.757). 检验结果如表2所示.

3.4.2 八大经济区域尺度

图6为2000~2017年各经济区域的年均 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度变化,分析结果可知,在北部沿海、东部沿海、长江中游和黄河中游的 $\text{PM}_{2.5}$ 污染较严重,区域年均 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度普遍高于 $45 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ (超过了 $\text{PM}_{2.5}$ 二级浓度限值 $35 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$);八大经济区域中, $\text{PM}_{2.5}$ 浓度较高的区域主要为北部沿海、其次是东部沿海和长江中游,在南部沿海和西南地区 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度较低. 在黄河中游地区和大西北地区,沙尘暴(风扬起的灰尘和沙

粒)为 $\text{PM}_{2.5}$ 的主要来源之一,该区域沙漠、沙地分布较密集,位于我国西北方的干旱和半干旱地区,是亚洲尘埃的主要来源区之一,尤其是在春季和冬季受当地沙尘暴影响较大,导致空气中包括 $\text{PM}_{2.5}$ 在内的颗粒物浓度急剧增加,伴随着强烈的西伯利亚/蒙古冷锋,粒径较小的颗粒物会沿着东南向轨道移出戈壁和沙漠地区,途经北部沿海地区的北京、天津和河北,导致途经区域的 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度的增加. 此外,发达的经济和密集的人口及密集的人类活动和快速的城市化也间接导致了北部沿海地区存在较高浓度的 $\text{PM}_{2.5}$.

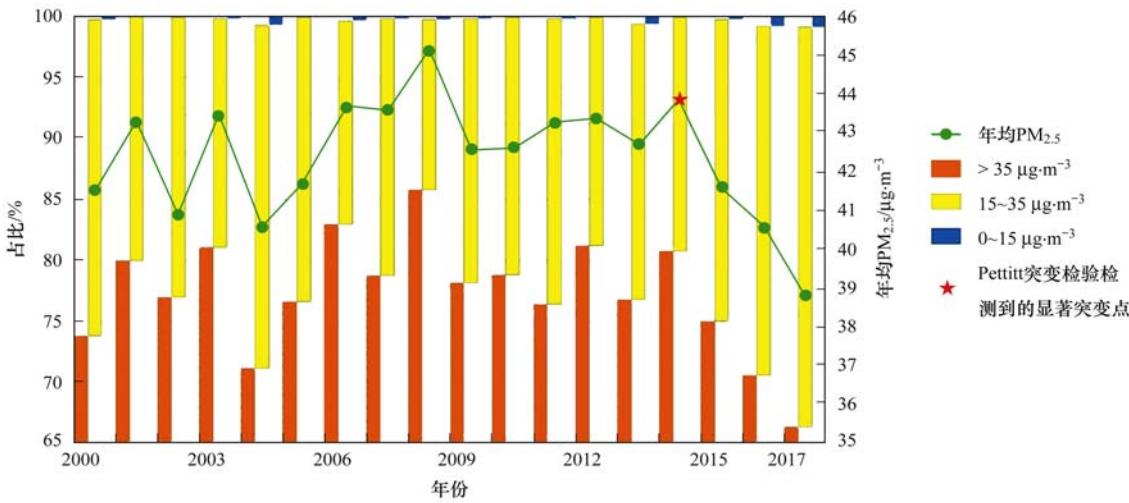


图 5 2000 ~ 2017 年间 PM_{2.5} 浓度变化特征

Fig. 5 Changing characteristics of PM_{2.5} concentrations from 2000 to 2017

表 2 PM_{2.5} 年均序列的突变检验、M-K 趋势检验及 Theil-Sen's 倾斜度结果¹⁾

Table 2 Change-point test, M-K trend test, and Theil-Sen's slope result of PM_{2.5} concentrations

分析尺度	Pettitt 突变检验		M-K 趋势检验及 Theil Sen's 倾斜度估计					
	突变点(年份)	P	① 2000 ~ 2017 年		② 2000 年 ~ 突变年份		③ 突变年份 ~ 2017 年	
			M-K (Zc)	倾斜度	M-K (Zc)	倾斜度	M-K (Zc)	倾斜度
全国尺度	2014	0.098 *	0.152	0.011	2.474 **	0.124	-1.998 **	-1.757
北部沿海	2015	0.059 *	1.061	0.244	2.656 ***	0.472	-2.754 ***	-5.082
东部沿海	2014	0.025 **	0.909	0.184	3.266 ***	0.635	-2.343 **	-4.863
长江中游	2014	0.032 **	0.076	0.020	2.276 **	0.421	-2.225 **	-4.184
黄河中游	2017	0.097 *	-0.177 **	-0.166	突变时间为 2017 年, 所以不分割子序列			
八大经济区域尺度	东北	2015	0.043 **	0.909	2.296 **	0.203	-2.685 ***	-3.08
	西北	2014	1.194	-0.455	2.663 ***	0.029	-2.056 **	-0.675
	西南	2011	0.648	-0.909	2.263 **	0.250	-2.703 ***	-1.100
	南部沿海	2011	0.737	-0.833	2.126 **	0.375	-2.103 **	-1.457

1) *、**和*** 分别代表在 90%、95% 和 99% 置信水平下显著

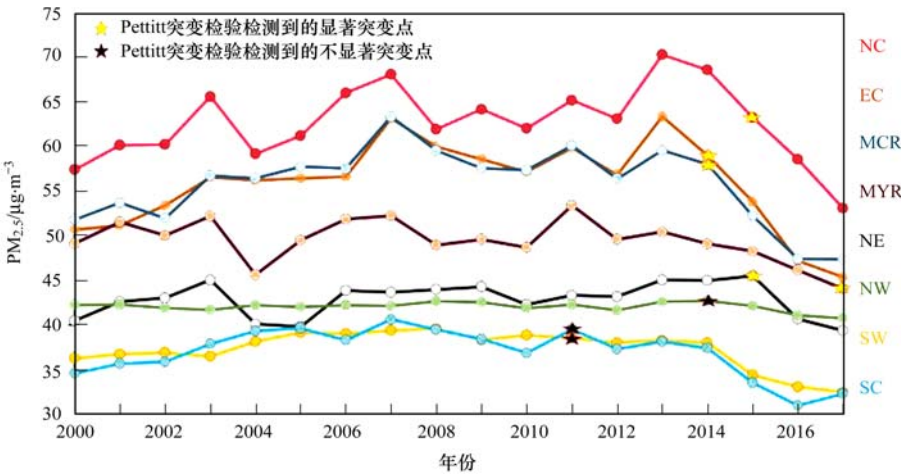


图 6 各区域 PM_{2.5} 年均值突变检验结果

Fig. 6 Results of annual mean change-point test of PM_{2.5} concentrations in each region

使用 Pettitt test 分别对各经济区域的 PM_{2.5} 年均序列进行突变检验(表 2),结果表明,在北部沿海、东部沿海、长江中游、东北地区 and 黄河中游存在显著的突变点;其中东部沿海和长江中游的突变时间为 2014 年,在北部沿海和东北地区突变时间为

2015 年,在黄河中游地区突变时间为 2017 年;大西北地区、南部沿海和西南地区检测到的突变点未通过显著性检验,可能因为大西北地区分布有较多的沙漠和戈壁的沙尘,植被覆盖较少,该区域的空气污染治理是一个长期持续的过程,而在西南地区 and 南

部沿海地区空气条件较好所以年均 $\text{PM}_{2.5}$ 时间序列变化幅度较小,所以这 3 个区域内很难存在明显的突变点. 对 2000 ~ 2017 年内各区域的 $\text{PM}_{2.5}$ 年均序列(表 2 中①)进行 M-K 趋势检验分析的结果表明,只有黄河中游的年均 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度序列呈显著下降趋势(倾斜度为 -0.166),其余 7 个区域的年均 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度均的趋势变化均未通过 95% 置信水平的显著性检验,变化趋势不明显. 为了更好地分析各区域 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度阶段变化特点,以 Pettitt test 检测到的突变点为分割点,将其划分为两段子序列(表 2 中突变点前②和突变点后③)并分别对每个子序列其进行 M-K 趋势检验和 Theil-Sen's 倾斜度估计.

分析 M-K 趋势检验结果可知,我国大部分经济区域的 $\text{PM}_{2.5}$ 年均浓度呈现明显的阶段变化,突变点之前的子序列呈现显著的增长趋势,突变点之后的序列呈现显著的减小趋势,虽然西南地区 and 南部沿海地区的 $\text{PM}_{2.5}$ 年均浓度序列的突变点未通过显著性检验,但是依然表现出明显的阶段性变化特征. 分析 Theil-Sen's 倾斜度估计结果可知,除黄河中游外,其余 7 个区域在突变点之前的年均 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度子序列的均呈显著增长趋势,其倾斜度按东部沿海、北部沿海、长江中游、南部沿海、西南地区、东北地区和大西北的顺序递减;突变点后的年均 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度子序列均呈显著下降趋势,倾斜度的大小按北部沿海、东部沿海、长江中游、东北地区、南部沿海、西南地区 and 西北地区 NW 的顺序递减. 各区域在突变点之后的年均 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度序列的倾斜度明显普遍高于突变之前的子序列,从 2014 年开始全国 $\text{PM}_{2.5}$ 污染情况明显改善.

3.4.3 $1^\circ \times 1^\circ$ 的格网尺度

图 7(a)为每一个格网内的年均 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度. 全国范围 $\text{PM}_{2.5}$ 年均浓度呈显著下降趋势和显著增长趋势的格网分布较离散,呈显著增长趋势的格网主要集中在北部沿海地区;而 $\text{PM}_{2.5}$ 年均浓度呈显著下降趋势的格网主要集中在黄河中游地区,较少格网的 Theil-Sen's 倾斜度超过 1;同时,从格网数来看,呈显著下降趋势的格网少于呈显著增长趋势的格网数. 结合全国尺度和八大经济区域尺度的 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度年均序列的 Pettitt 突变检验、M-K 趋势检验和 Theil-Sen's 倾斜度估计分析结果可知,2014 年是全国以及 $\text{PM}_{2.5}$ 污染较严重的几个地区的 $\text{PM}_{2.5}$ 年均浓度序列从持续缓慢上升到快速下降的关键转折点.

图 7(b)为 2000 ~ 2014 年内每一个格网的 M-K 趋势检验结果. 在该阶段内有近 24.37% 格网的年均 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度呈显著增长趋势(Theil-Sen's 倾斜度为 $0.1 \sim 1.9$),近 7.28% 格网的 $\text{PM}_{2.5}$ 年均 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度

呈显著下降趋势(Theil-Sen's 倾斜度为 $-0.1 \sim -1.4$),其余格网的 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度变化趋势不显著; $\text{PM}_{2.5}$ 显著增长的格网主要集中在北部沿海的山东省、长江中游、东部沿海、黄河中游地区的陕西省、东北地区的辽宁省等; $\text{PM}_{2.5}$ 年均 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度显著下降的格网主要分布在大西北地区 and 黄河中游的内蒙古地区.

图 7(c)为 2014 ~ 2017 年内每一个格网的 M-K 趋势检验结果. 在该阶段内近 17.8% 的格网的 $\text{PM}_{2.5}$ 年均浓度呈显著下降趋势(Theil-Sen's 倾斜度为 $-0.1 \sim -16.5$),仅有近 1.7% 的格网 $\text{PM}_{2.5}$ 年均浓度呈显著增长趋势(Theil-Sen's 倾斜度为 $0.1 \sim 6.7$);表明从 2014 年开始全国范围内的 $\text{PM}_{2.5}$ 污染状况得到快速有效的改善.

4 讨论

本研究构建的二阶段 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度组合估算模型综合考虑了 AOD- $\text{PM}_{2.5}$ 之间的关系存在着非线性、季节差异、区域差异的特点,并结合气象参数(气温、风速、风向、边界层高度、相对湿度),将 ε -SVR 与 MEC-BP 神经网络相组合,提供了中国 2000 ~ 2017 年内分辨率为 $1^\circ \times 1^\circ$ 的可靠的 $\text{PM}_{2.5}$ 月度地面浓度数据估算,相比现有研究具有更广的时空覆盖度. 在实测 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度数据由点到面的提取过程中,引入了《环境空气质量标准》(GB 3095-2012),较大程度地增加了估算结果的准确度. 本研究成果可为其它的地区估算大范围内的历史 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度提供方法借鉴.

本研究构建的组合模型的决定系数 R^2 为 0.838,均方根误差 RMSE 为 $11.512 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$,平均绝对百分比误差 MAPE 为 14.905%,均方百分比误差 MSPE 为 0.243%,绝对误差 MAE 为 $6.476 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$,均方误差 MSE 为 $132.519 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$,具有误差小,泛化高的综合估算能力. 地面监测站空间分布的不均匀可能会导致 $\text{PM}_{2.5}$ 估算结果存在一定程度的误差,大部分 $\text{PM}_{2.5}$ 监测站点都位于 $\text{PM}_{2.5}$ 污染较严重的城市地区,如在大西北(NW)的农村地区基本无 $\text{PM}_{2.5}$ 地面监测站点分布;同时,冬季在东北的黑龙江、吉林和黄河中游地区的大兴安岭有大面积积雪覆盖、在大西北地区的西北边缘和新疆与西南地区接壤处的横断山脉一带有大规模的冰川分布等,这些原因都可能会导致卫星采样偏差,进而导致 MODIS AOD 产生误差或缺失;在新疆和内蒙古境内分布有大面积的沙漠和沙地也可能导致卫星遥感反演的 MODIS AOD 值偏高,进而导致估算的 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度偏高. 基于估算数据和实测数据,本研究分析了

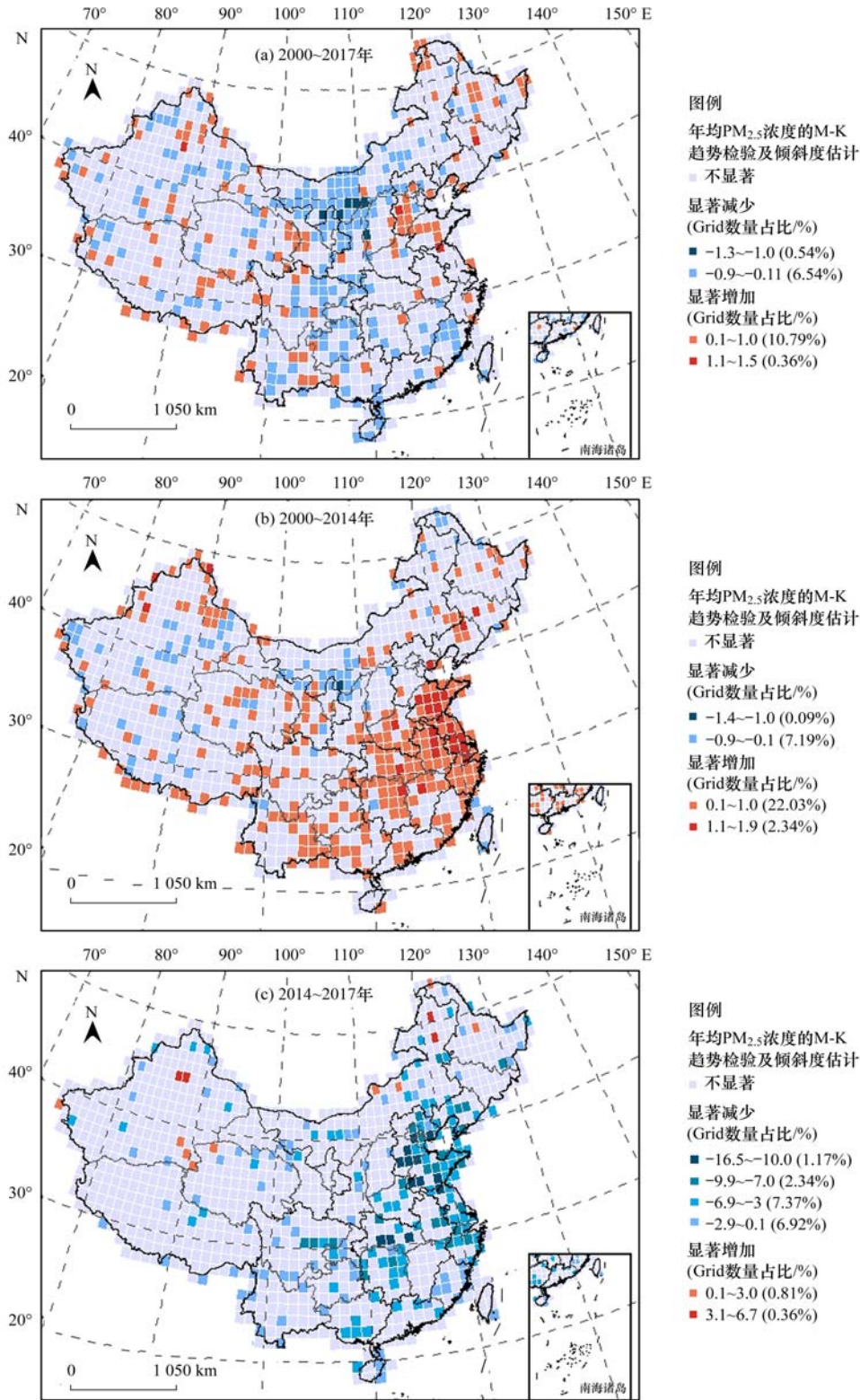


图 7 PM_{2.5} 年均值的 M-K 趋势检验结果及其趋势斜率的估计

Fig. 7 M-K trend test result and Theil-Sen slope estimator of the annual PM_{2.5} concentrations

2000 ~ 2017 年中国 PM_{2.5} 浓度的时空分布特征,在全国和区域尺度中国 PM_{2.5} 浓度的月均值从 1 ~ 12 月呈明显的“U”型变化特征,从 6 月到次年 6 月呈明显的倒“U”型变化特征. 中国的 PM_{2.5} 污染在冬季最严重,在夏季最轻,在秋季和春季较轻. 高浓度的 PM_{2.5} 主要分布在人口密集、经济发达、工业化水平

较高(如北部沿海、东部沿海、长江中游)以及戈壁沙漠密集的区域(如大西北地区、黄河中游地区),较低浓度的 PM_{2.5} 主要分布在南部沿海和西南地区,该研究结果与大部分已有研究结果类似. 综上,本研究构建的二阶段组合估算模型的 PM_{2.5} 浓度估算结果能够较好地表征 2000-03 ~ 2017-12 内中国月均

PM_{2.5}的时空变化过程.

此外,本研究还利用数理统计与地理空间分析手段,从多空间尺度揭示了以 PM_{2.5}为主要代表的中国空气质量在 2000 ~ 2017 年内的一个退化及改善的阶段性的动态变化过程.

5 结论

(1)本研究提出的二阶段组合估算模型提供了中国 2000 ~ 2017 年内空间分辨率为 1° × 1° 的月度近地面 PM_{2.5}浓度的可靠估算,有效地弥补了中国地面监测网络在时间和空间上的空白.

(2)本研究时间范围内,全国尺度 PM_{2.5}年均浓度序列的整体变化趋势不显著,但是呈明显的阶段变化特征:2000 ~ 2014 年全国年均 PM_{2.5}浓度缓慢持续增长,2014 ~ 2017 年全国年均 PM_{2.5}浓度快速减小,其中从 2014 年开始,空气污染较严重的北部沿海、东部沿海和长江中游地区的 PM_{2.5}污染情况改善更显著.总体而言,2014 年是 2000 ~ 2017 年内中国 PM_{2.5}浓度从持续缓慢上升到快速下降的关键转折点.

(3)本研究时间范围内全国有超过 65% 的区域 PM_{2.5}年均浓度超过了二级限值(35 μg·m⁻³),虽然全国 PM_{2.5}污染情况有一定程度的改善,但是空气污染形势依然严峻.

参考文献:

- [1] Wang S J, Fang C L, Guan X L, *et al.* Urbanisation, energy consumption, and carbon dioxide emissions in China: a panel data analysis of China's provinces[J]. *Applied Energy*, 2014, **136**: 738-749.
- [2] Guan X L, Wei H K, Lu S S, *et al.* Assessment on the urbanization strategy in China: achievements, challenges and reflections[J]. *Habitat International*, 2018, **71**: 97-109.
- [3] 姜磊, 周海峰, 柏玲, 等. 空气质量指数(AQI)的社会经济影响因素分析——基于指数衰减效应视角[J]. *环境科学学报*, 2018, **38**(1): 390-398.
Jiang L, Zhou H F, Bai L, *et al.* The analysis of socio-economic factors of air quality index (AQI) based on the perspective of the exponential decay effects[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2018, **38**(1): 390-398.
- [4] 酃嘉诚, 高庆先, 李亮, 等. 对首要污染物所揭示的京津冀环境空气质量状况的认识启迪与对策建议[J]. *环境科学研究*, 2018, **31**(10): 1651-1661.
Li J C, Gao Q X, Li L, *et al.* Enlightenment and suggestions on the air quality of Beijing, Tianjin and Hebei revealed by primary pollutants[J]. *Research of Environmental Sciences*, 2018, **31**(10): 1651-1661.
- [5] Kahn R, Banerjee P, McDonald D, *et al.* Sensitivity of multiangle imaging to aerosol optical depth and to pure-particle size distribution and composition over ocean[J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 1998, **103**(D24): 32195-32213.
- [6] Kahn R, Banerjee P, McDonald D. Sensitivity of multiangle imaging to natural mixtures of aerosols over ocean[J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2001, **106**(D16): 18219-18238.
- [7] Ma Z W, Hu X F, Huang L, *et al.* Estimating ground-level PM_{2.5} in China using satellite remote sensing[J]. *Environmental Science & Technology*, 2014, **48**(13): 7436-7444.
- [8] Wang J, Christopher S A. Intercomparison between satellite-derived aerosol optical thickness and PM_{2.5} mass: Implications for air quality studies[J]. *Geophysical Research Letters*, 2003, **30**(21): 2095.
- [9] 赵仕伟, 高晓清. 利用 MODIS C6 数据分析中国西北地区气溶胶光学厚度时空变化特征[J]. *环境科学*, 2017, **38**(7): 2637-2646.
Zhao S W, Gao X Q. Analysis of spatio-temporal distribution and variation characteristics of aerosol optical depth over the northwest of China by MODIS C6 product[J]. *Environmental Science*, 2017, **38**(7): 2637-2646.
- [10] Gupta P, Christopher S A. Particulate matter air quality assessment using integrated surface, satellite, and meteorological products; 2. A neural network approach [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2009, **114** (D20): D20205, doi: 10.1029/2008jd011497.
- [11] You W, Zang Z L, Pan X B, *et al.* Estimating PM_{2.5} in Xi'an, China using aerosol optical depth: a comparison between the MODIS and MISR retrieval models[J]. *Science of the Total Environment*, 2015, **505**: 1156-1165.
- [12] 郭建平, 吴业荣, 张小曳, 等. BP 网络框架下 MODIS 气溶胶光学厚度产品估算中国东部 PM_{2.5}[J]. *环境科学*, 2013, **34**(3): 817-825.
Guo J P, Wu Y R, Zhang X Y, *et al.* Estimation of PM_{2.5} over eastern China from MODIS aerosol optical depth using the back propagation neural network[J]. *Environmental Science*, 2013, **34**(3): 817-825.
- [13] Hu X F, Waller L A, Lyapustin A, *et al.* Estimating ground-level PM_{2.5} concentrations in the Southeastern United States using MAIAC AOD retrievals and a two-stage model[J]. *Remote Sensing of Environment*, 2014, **140**: 220-232.
- [14] Liu Y, Paciorek C J, Koutrakis P. Estimating regional spatial and temporal variability of PM_{2.5} concentrations using satellite data, meteorology, and land use information[J]. *Environmental Health Perspectives*, 2009, **117**(6): 886-892.
- [15] Xiao Q Y, Wang Y J, Chang H H, *et al.* Full-coverage high-resolution daily PM_{2.5} estimation using MAIAC AOD in the Yangtze River Delta of China [J]. *Remote Sensing of Environment*, 2017, **199**: 437-446.
- [16] Nguyen T N T, Ta V C, Le T H, *et al.* Particulate matter concentration estimation from satellite aerosol and meteorological parameters: data-driven approaches [A]. In: Huynh V N, Denoeux T, Tran D H, *et al.* (Eds.). *Knowledge and Systems Engineering: Proceedings of the Fifth International Conference KSE 2013, Volume 1* [M]. Cham: Springer, 2014. 351-362.
- [17] Xin J Y, Zhang Q, Wang L L, *et al.* The empirical relationship between the PM_{2.5} concentration and aerosol optical depth over the background of North China from 2009 to 2011 [J]. *Atmospheric Research*, 2014, **138**: 179-188.
- [18] Guo J P, Xia F, Zhang Y, *et al.* Impact of diurnal variability and meteorological factors on the PM_{2.5}-AOD relationship: Implications for PM_{2.5} remote sensing [J]. *Environmental Pollution*, 2017, **221**: 94-104.
- [19] Ma Z W, Hu X F, Sayer A M, *et al.* Satellite-based spatiotemporal trends in PM_{2.5} concentrations: China, 2004-2013

- [J]. Environmental Health Perspectives, 2016, **124**(2): 184-192.
- [20] Liu M, Bi J, Ma Z. Visibility-based PM_{2.5} concentrations in China: 1957-1964 and 1973-2014[J]. Environmental Science & Technology, 2017, **51**(22): 13161-13169.
- [21] 国务院. 大气污染防治行动计划[EB/OL]. [http://www.jingbian.gov.cn/gk/zfwj/gwywj/41211.htm?from=](http://www.jingbian.gov.cn/gk/zfwj/gwywj/41211.htm?from=timeline&tdsourcetag=s_pctim_aiomsg) timeline&tdsourcetag=s_pctim_aiomsg, 2013-09-10.
- [22] 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.
- [23] 杨昆, 喻臻钰, 罗毅, 等. 湖泊表面水温预测与可视化方法研究[J]. 仪器仪表学报, 2017, **38**(12): 3090-3099.
Yang K, Yu Z Y, Luo Y, *et al.* Lake surface water temperature prediction and visualization [J]. Chinese Journal of Scientific Instrument, 2017, **38**(2): 3090-3099.
- [24] 杨昆, 罗毅, 徐玉妃, 等. 基于无线传感器网络与 GIS 的蓝藻水华爆发动态监测与模拟[J]. 农业工程学报, 2016, **32**(24): 197-205.
Yang K, Luo Y, Xu Y F, *et al.* Dynamic monitoring and simulation of *Cyanobacteria* Bloom based on wireless sensor network and GIS [J]. Transactions of the Chinese Society of Agricultural Engineering, 2016, **32**(24): 197-205.
- [25] 国家统计局. 2000-2017 年地区分省年度数据地区生产总值[EB/OL]. [http://data.stats.gov.cn/easyquery.htm?cn=](http://data.stats.gov.cn/easyquery.htm?cn=E0102) E0102.
- [26] 大气存档和分配系统. MOD08 M3 和 MYD08 M3 文件[EB/OL]. <https://ladsweb.modaps.eosdis.nasa.gov/search/>.
- [27] 欧洲中期天气预报中心. 气象数据[EB/OL]. <https://apps.ecmwf.int/datasets/>.
- [28] 全国城市空气质量实时发布平台. PM_{2.5} 地面监测数据[EB/OL]. <http://106.37.208.233>; 20035.
- [29] Kavousi-Fard A, Samet H, Marzbani F. A new hybrid modified firefly algorithm and support vector regression model for accurate short term load forecasting [J]. Expert Systems with Applications, 2014, **41**(13): 6047-6056.
- [30] Zhang J, Yang Y P, Zhang J M. A MEC-BP-Adaboost neural network-based color correction algorithm for color image acquisition equipments[J]. Optik, 2016, **127**(2): 776-780.
- [31] 强皓凡, 靳晓言, 刘超, 等. 基于水热耦合平衡的长江源实际蒸散变化研究[J]. 干旱区资源与环境, 2018, **32**(3): 106-111.
Qiang H F, Jin X Y, Liu C, *et al.* Variations of actual evapotranspiration in the Yangtze River headwater region based on coupled water-energy balance [J]. Journal of Arid Land Resources and Environment, 2018, **32**(3): 106-111.
- [32] Some'e B S, Ezani A, Tabari H. Spatiotemporal trends and change point of precipitation in Iran[J]. Atmospheric Research, 2012, **113**: 1-12.
- [33] Lue Y L, Liu L Y, Hu X, *et al.* Characteristics and provenance of dustfall during an unusual floating dust event[J]. Atmospheric Environment, 2010, **44**(29): 3477-3484.

CONTENTS

Spatiotemporal Variations of PM _{2.5} Pollution Evolution in China in Recent 20 Years	SHI Yan, LIU Rui-mei, LUO Yi, <i>et al.</i> (1)
Characteristics of Aerosol Particulate Concentrations and Their Climate Background in Shanghai During 2007-2016	ZHENG Qing-feng, SHI Jun, TAN Jian-guo, <i>et al.</i> (14)
Characteristics and Sources of Elements in PM _{2.5} During Summer for Three Typical Cities in Pingdingshan-Suizhou-Wuhan, Central China	LIU Wei-jie, SHI Ming-ming, CHENG Cheng, <i>et al.</i> (23)
PM _{2.5} Pollution Characteristics During Winter and Summer in the Hohhot-Baotou-Ordos Region, China	LI Yi-ming, LIU Jia-yuan, SHI Guo-liang, <i>et al.</i> (31)
Analysis of Pollution Characteristics and Sources of PM _{2.5} During Heavy Pollution in Shijiazhuang City Around New Year's Day 2019	ZHOU Jing-bo, DUAN Jing-chun, WANG Jian-guo, <i>et al.</i> (39)
Modeling Studies of Source Contributions to PM _{2.5} in Chengdu, China	XU Yan-ling, YI Ai-hua, XUE Wen-bo (50)
Chemical Characteristics of Arsenic in PM _{2.5} in Beijing	SHI Shao-xuan, YANG Yan-rong, QIN Juan-juan, <i>et al.</i> (57)
Pollution Characteristics and Potential Source Contributions of Gaseous Elemental Mercury (GEM) During Summer and Autumn in Ningbo City	YI Hui, LIN Jia-mei, CAI Qiu-liang, <i>et al.</i> (65)
Seasonal Characteristics and Source Analysis of Water-Soluble Ions in PM _{2.5} of Anyang City	SUN You-chang, JIANG Nan, WANG Shen-bo, <i>et al.</i> (75)
Analysis of Stable Carbon Isotope Characteristics of PM _{2.5} in Summer and Winter Season in Xinxiang City	YAN Guang-xuan, SONG Xin, ZHANG Jing-wen, <i>et al.</i> (82)
Construction and Evaluation on Size Resolved Source Apportionment Methods Based on Particle Size Distribution of Chemical Species	LIANG Yong-li, TIAN Ying-ze, LIU Tong, <i>et al.</i> (90)
Fine Particulate Emission Characteristics of an Ultra-Low Emission Coal-Fired Power Plant	WANG Run-fang, MA Da-wei, JIANG Shao-yi, <i>et al.</i> (98)
Driving Factors of the Significant Increase in Surface Ozone in the Beijing-Tianjin-Hebei Region, China, During 2013-2018	YU Yi-jun, MENG Xiao-yan, WANG Zhen, <i>et al.</i> (106)
Characteristic of Surface Ozone and Meteorological Parameters Analysis in Anyang City	YANG Jian, YIN Sha-sha, YU Shi-jie, <i>et al.</i> (115)
Emission Inventory of Intermediate Volatility Organic Compounds from Vehicles in the Yangtze River Delta in 2017 and the Impact on the Formation Potential of Secondary Organic Aerosols	WANG Qian, HUANG Ling, WANG Yang-jun, <i>et al.</i> (125)
Exhaust Smoke of Non-Road Vehicles in Typical Cities of Eastern China	LU Jun, HU Qing-yao, YANG Qiang, <i>et al.</i> (133)
Emission Status and Standards of Volatile Organic Compounds from Chinese and Foreign Bulk Petroleum Terminals	HU Wei, REN Bi-qi, HUANG Yu-hu, <i>et al.</i> (139)
Secondary Organic Aerosol Mass Yield and Characteristics from 4-ethylguaiaacol Aqueous ·OH Oxidation: Effects of Initial Concentration	ZHUANG Yu, CHEN Yan-tong, LI Xu-dong, <i>et al.</i> (146)
Stable Isotope Characteristics and Vapor Source of Precipitation in the South and North Slopes of Wushaoling Mountain	XU Xiu-ting, JIA Wen-xiong, ZHU Guo-feng, <i>et al.</i> (155)
Characteristics and Influencing Factors of Stable Hydrogen and Oxygen Isotopes in Groundwater in the Permafrost Region of the Source Region of the Yangtze River	WANG Shao-yong, HE Xiao-bo, DING Yong-jian, <i>et al.</i> (166)
Hydrochemical and Isotopic Characteristics of the Lake Balkhash Catchment, Kazakhstan	SHEN Bei-bei, WU Jing-lu, JILILI Abuduwali, <i>et al.</i> (173)
Effect of a Comprehensive Improvement Project on Water Quality in Urban Lakes: A Case Study of Water Quality Variation in Lihu Lake Over the Past 30 Years	TIAN Wei, YANG Zhou-sheng, SHAO Ke-qiang, <i>et al.</i> (183)
Detection Method, Distribution, and Risk Assessment of Pharmaceuticals and Personal Care Products in the Yellow Sea and the East China Sea	CHEN Xian, ZHANG Cai-jie, YANG Gui-peng, <i>et al.</i> (194)
Occurrence and Risk Assessment of Organophosphate Esters in Source Water of the Nanjing Section of the Yangtze River	LI Dong, ZHANG Sheng-hu, ZHANG Qin, <i>et al.</i> (205)
Spatial Distribution, Spectral Characteristics, and Sources Analysis of Dissolved Organic Matter from Baiyangdian Lake in Xiong'an New District During the Winter Freezing Period	ZHOU Shi-lei, SUN Yue, ZHANG Yi-ran, <i>et al.</i> (213)
Spatial Characteristics, Risk Assessment, and Source Analysis of Elements in Surface Sediments from the Baiyangdian Lake	WANG Jing-zhong, LIU Zhao, WEI Hao, <i>et al.</i> (224)
Distribution Characteristics and Ecological Risk Assessment of Phthalate Esters in Surface Sediments of the Songhua River	WANG Huan, YANG Yong-zhe, WANG Hai-yan, <i>et al.</i> (232)
Occurrence Relationship Between Microplastics and Heavy Metals Pollutants in the Estuarine Sediments of Poyang Lake and the Yangtze River	LI Wen-hua, JIAN Min-fei, LIU Shu-li, <i>et al.</i> (242)
Effect of Ozonation on Microorganism in the Biological Activated Carbon and Disinfection By-Products in the Effluent	LIU Bao-ming, WANG Xi-xi, ZHANG Xiao-xia, <i>et al.</i> (253)
Refined Assessment of Exposure and Health Risks of Heavy Metals in Water for the Children in Xigu District, Lanzhou	CHEN Yue-fang, SUN Shan-wei, DUAN Xiao-li, <i>et al.</i> (262)
Adsorption of Phosphate on Mg/Fe Layered Double Hydroxides (Mg/Fe-LDH) and Use of Mg/Fe-LDH as an Amendment for Controlling Phosphorus Release from Sediments	WU Jun-lin, LIN Jian-wei, ZHAN Yan-hui, <i>et al.</i> (273)
Characteristics and Mechanism of Monothioarsenate Adsorption on Sand, Sediment, and Goethite	LIAO Dan-xue, SHAN Hui-mei, PENG San-xi, <i>et al.</i> (284)
Substructure Characteristics of Combined Acid-Base Modified Sepiolite and Its Adsorption for Cd(II)	XIE Sha, XU Ying-ming, YAN Cui-xia, <i>et al.</i> (293)
Characteristics of Nitrogen Metabolism by Denitrifying Bacterial Agents in Low Dissolved Oxygen Black Odor Water	ZHAO Zhi-rui, LIU Shuo, LI Duo, <i>et al.</i> (304)
Metagenomic Analysis of Antibiotic Resistant Bacteria and Resistance Genes in a Pharmaceutical and Chemical Wastewater Treatment Plant	CHEN Hong-ling, ZHANG Xing-tao, WANG Qing, <i>et al.</i> (313)
Measurements of Bacterial Community and Biodiversity from Activated Sludge for a Wastewater Treatment Containing Starch	ZHAO Ting-ting, QIAO Kai, WANG Lei, <i>et al.</i> (321)
Process Control and Operation Optimization of PN-SAD Coupling Process Based on SBR-ABR	CHEN Chong-jun, ZHANG Min, JIANG Ying, <i>et al.</i> (330)
Effects of Intermittent Starvation on the Operation of the SNAD Process	LI Dong, LIU Zhi-cheng, XU Gui-da, <i>et al.</i> (337)
Nitrogen Removal from Mature Landfill Leachate via Denitrification-Partial Nitrification-ANAMMOX Based on a Zeolite Biological Aerated Filter	CHEN Xiao-zhen, WANG Xiao-jun, Karasuta Chayangkun, <i>et al.</i> (345)
Rapid Achievement of Nitrifying Micro-granular Sludge and Its Nitrification Function	LIU Wen-ru, SONG Jia-jun, WANG Jian-fang, <i>et al.</i> (353)
Effect of On/Off Aeration Time Ratio Under High Frequency On/Off Aeration on Performance of Nitrosated Granular Sludge	ZHANG Jie, LAO Hui-mei, LI Dong, <i>et al.</i> (360)
Occurrence, Distribution, Source, and Health Risk Assessment of Polybrominated Diphenyl Ethers in Surface Soil from the Shen-Fu Region, Northeast China	XIANG Xin-xin, LU Yin-tao, RUAN Qi-yang, <i>et al.</i> (368)
Vertical Pollution Characteristics and Sources of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in a Heterogeneous Unsaturated Zone Under a Coking Plant	MENG Xiang-shuai, WU Meng-meng, CHEN Hong-han, <i>et al.</i> (377)
Distribution Characteristics of Antibiotic Resistance Genes and Mobile Genetic Elements in Beijing Vegetable Base Soils	ZHANG Ru-feng, SONG Yuan, GAO Hao-ze, <i>et al.</i> (385)
Stoichiometric Characteristics of Purple Sloping Cropland Under Long-term Fertilization and Cultivation	DU Ying-ni, LI Tian-yang, HE Tian-hui, <i>et al.</i> (394)
Ecological Stoichiometry of Carbon, Nitrogen, and Phosphorus in Subtropical Paddy Soils	SONG Jia-ling, SHENG Hao, ZHOU Ping, <i>et al.</i> (403)
Denitrification and Anaerobic Ammonium Oxidation in Soil Nitrogen Migration Process in a Farmland of Wanshang Lake	CHEN Zhi-hao, QIN Yun-bin, DING Bang-jing, <i>et al.</i> (412)
Effects of Straw Biochar on Soil Microbial Metabolism and Bacterial Community Composition in Drip-irrigated Cotton Field	WANG Jing, MA Li-juan, LONG Ze-hua, <i>et al.</i> (420)
Source Appointment of Heavy Metals in Agricultural Soils of the Jiulong River Basin Based on Positive Matrix Factorization	HUANG Hua-bin, LIN Cheng-qi, HU Gong-ren, <i>et al.</i> (430)
Spatial Distribution of Soil Arsenic and Arsenic Enrichment in Crops in the Oasis Region of the Southeastern Tarim Basin	CHEN Yun-fei, ZHOU Jin-long, ZENG Yan-yan, <i>et al.</i> (438)
Bioavailability, Translocation, and Accumulation Characteristic of Heavy Metals in a Soil-Crop System from a Typical Carbonate Rock Area in Guangxi, China	MA Hong-hong, PENG Min, LIU Fei, <i>et al.</i> (449)
Effects of Different Amendments on Fractions and Uptake by Winter Wheat in Slightly Alkaline Soil Contaminated by Cadmium and Nickel	ZHANG Jing-jing, ZHU Shuang-ge, ZHU Li-nan, <i>et al.</i> (460)
Effect of Different Passivating Agents on the Stabilization of Heavy Metals in Chicken Manure Compost and Its Maturity Evaluating Indexes	LUAN Run-yu, GAO Shan, XU Ying-ming, <i>et al.</i> (469)
Response of Soil Respiration and Its Components to Nitrogen and Phosphorus Addition in Farming-Withdrawn Grassland in the Semiarid Loess Hilly-Gully Region	ZHOU Jun-jie, CHEN Zhi-fei, YANG Quan, <i>et al.</i> (479)
Subsequent Effects of Slag and Biochar Application on Greenhouse Gas Emissions from Paddy Fields in the Fuzhou Plain	LAN Xing-fu, WANG Xiao-tong, ZHOU Ya-xin, <i>et al.</i> (489)