环境科学
(HUANJING KEXUE)
ENVIRONMENTAL SCIENCE
第 45 卷　第 4 期
2024 年 4 月 15 日

目　次

中国城市碳排放强度的时空演变、动态跃迁及收敛趋势 ……杨清可，王磊，朱高立，李颖，范业婷，王雅竹（1869）
交通运输业碳排放效率时空演变及趋势预测 ……郑琰，蒋雪梅，肖玉杰（1879）
基于扩展STIRPAT模型LMDI分解的碳排放脱钩因素 ……张江艳（1888）
基于LEAP模型的工业园区碳达峰路径：以南京某国家级开发区为例 ……李慧鹏，李荔，殷茵，何文太，宿杰，赵秋月（1898）
高校碳排放核算与分析：以北京A高校为例 ……曹睿，封莉，张立秋（1907）
北京市制造业减污降碳协同效应分析和驱动因素 ……俞珊，韩玉花，牟洁，张双，张增杰（1917）
碳排放权交易价格与全要素生产率：来自中国的证据 ……吴雪萍（1926）
中国城市$PM_{2.5}$和PM_{10}时空分布特征和影响因素分析 ……李江苏，段良荣，张天娇（1938）
2017~2021年苏皖鲁豫交界区域$PM_{2.5}$和O_3时空变化特征及影响因素 ……陈伟，徐学哲，刘文清（1950）
疫情管控期西安$PM_{2.5}$和O_3污染特征及成因分析 ……原晓红，张强，李琦，谢文豪，刘跃廷，樊亭亭，姜旭朋（1963）
苏南五市秋冬季$PM_{2.5}$化学组成特征和空间差异 ……冯蔚，丁峰，尚玥，谢鸣捷（1975）
湖北咸宁细颗粒物$PM_{2.5}$来源 ……罗怡，朱宽广，陈璞珑，田军，谢旻，战杨志豪，赵润琪（1983）
邢台氨减排对京津冀$PM_{2.5}$改善的溢出效益 ……边泽君，闻超玉，郎建垒，范晓菡，夏祥晨，周颖（1994）
聊城市冬季$PM_{2.5}$载带金属元素污染特征、风险评价及来源分析 ……张敬巧，朱瑶，曹婷，燕丽，王淑兰，刘铮（2003）
高原城市拉萨典型VOCs排放源成分谱特征 ……郭淑政，叶春翔，林伟立，陈熠，曾立民，尹晴晴，刘雪莉（2011）
北京市工业园区VOCs污染特征及健康风险评估案例：高新技术产业的环境影响 ……王洁，姚震，王敏燕，陈速敏，龙腾，王海林，李红，郭秀锐，郝江虹，聂磊（2019）
高温极端天气影响下的成都平原一次典型臭氧污染过程分析 ……雷丽娟，张懿，罗伊娜，张潇，冯淼（2028）
水环境中抗病毒药物的存在、行为与风险 ……葛林科，李璇艳，曹胜凯，郑金帅，张蓬，朱超，马宏瑞（2039）
黄河小浪底水库地表水中重金属的时空变化与概率健康风险 ……王亮，邓雪娇，王潇磊，李明，刘奕尧，娄亚敏，涂响，张坤锋（2054）
藏东多曲河流域锶富集水化学特征及控制因素 ……李敬杰，连晟，王明国，张智印，张涛（2067）
西北内陆区降水稳定同位素时空分布特征及其水汽来源 ……张炎炎，辛存林，郭小燕，张博，陈宁，史延飞（2080）
基于水化学和氢氧同位素的泰安城区岩溶地下水补给来源及演化过程 ……孟令华（2096）
丹江流域山区地表水-地下水水化学特征及其影响因素 ……张子燕，伏永朋，王宁涛，谭建民，刘亚磊（2107）
金塔盆地鸳鸯池灌区地下水水化学特征及控制因素 ……王晓燕，韩双宝，张梦南，尹德超，吴玺，安永会（2118）
德阳市平原区浅层地下水水化学特征与健康风险评价 ……刘楠，陈盟，高东东，吴勇，王橦橦（2129）
典型城市河网沉积物微塑料时空分布特征 ……许万璐，范一凡，钱新（2142）
抚仙湖子流域尺度氮排放清单构建及关键源解析 ……王延杰，梁启斌，王艳霞，侯磊，陈奇伯，王伟，李晓琳，高俊淑（2150）
过氧化钙/海泡石海藻酸钠缓释凝胶复合材料的制备及其对内源磷的控制性能 ……曲思彤，单苏洁，王崇铭，吴玲予，李大鹏，黄勇（2160）
矿物超细颗粒的形成机制、结构特征及其环境行为和效应 ……刘振海，张展华，袁语欣，朱盼盼，陈威，张彤（2171）
生物炭固定化菌复合材料在环境修复中的应用研究进展 ……孙漱玉，黄梦鑫，孔强，张焕新，刘继伟（2185）
微塑料对沸石吸附水体氨氮的影响及其机制 ……练建军，谢诗婷，吴培，孟冠华，陈波（2195）
紫外老化作用对纳米生物炭吸附环丙沙星的影响机制 ……马锋锋，薛之一，赵保卫（2203）
土地利用影响下无定河流域浮游植物群落与环境因子响应 ……郭善嵩，胡恩，丁一桐，张嘉渭，孙长顺，卢悦，潘保柱（2211）
鄱阳湖湿地细菌群落多样性和可培养细菌功能基因丰度 ……喻江，王淳，龙永，刘贵花，李春杰，范国权，于镇华（2223）
典农河沉积物细菌群落结构特征及其与重金属的关系 ……刘双羽，蒙俊杰，邱小琮，周瑞娟，李霖（2233）
污水处理厂尾水排放对受纳河流细菌和真菌微生物群落的影响 ……郭有顺，余仲，郝文彬，孟凡刚（2246）
宏基因组学分析深度处理阶段污水中细菌的赋存特征及其功能 ……胡健双，王燕，周政，汪雅琴，王秉政，李激（2259）
大别山区生境质量时空特征及自然-人为因素驱动机制 ……郑亚平，张俊华，田惠文，朱航成，刘舒，丁亚鹏（2268）
基于连续小波变换、SHAP和XGBoost的土壤有机质含量高光谱反演 ……叶淼，朱琳，刘旭东，黄勇，陈蓓蓓，李欢（2280）
秸秆还田、覆膜和施氮对旱地麦田土壤质量的影响 ……叶子壮，王松燕，陆潇，史多鹏，吕慎强，李嘉，杨泽宇，王林权（2292）
长期施用有机肥对土壤微塑料赋存及迁移特征的影响 ……王长远，马啸驰，郭德杰，刘新红，马艳，罗佳（2304）
土壤盐分变化对N_2O排放影响：基于Meta分析 ……黄艺华，余冬立，史祯琦，胡磊，潘永春（2313）
基于土地利用/覆被动态变化的粤港澳大湾区碳储量评价与预测 ……郑慧玲，郑辉峰（2321）
基于InVEST模型的伏牛山地区生态系统碳储量时空变化模拟 ……张哲，时振钦，朱文博，孙梓欣，赵体侠，邓文萍，刘志强（2332）
防护林建设过程中土壤微生物养分限制与有机碳组分之间的关系 ……徐凤璟，黄懿梅，黄倩，申继凯（2342）
长期秸秆还田褐土有机碳矿化特征及其驱动力 ……赵宇航，殷浩凯，胡雪纯，解文艳，刘志平，周怀平，杨振兴（2353）
冬绿肥覆盖对土壤团聚体及有机碳和AMF多样性的影响 ……鲁泽让，陈佳钰，李智贤，李永梅，罗志章，杨锐，田明洋，赵吉霞，范茂攀（2363）
辽河流域氮素时空分布及其对土地利用和降雨的响应 ……周波，李晓光，童思陈，吕旭波，郭朝臣，雷坤（2373）
高强度农业种植区不同景观池塘氧化亚氮排放特征 ……张欣悦，肖启涛，谢晖，刘臻婧，邱银国，罗菊花，徐向华，段洪涛（2385）
生物炭与不同类型氮肥配施对菜地土壤反硝化细菌群落的影响 ……柳晓婉，刘杏认，高尚洁，李贵春（2394）
太岳山不同林龄人工油松林土壤微生物特征 ……马义淑，曹亚鑫，牛敏，张明罡，程曼，文永莉（2406）
基于稀疏样点的土壤重金属含量模拟方法 ……张佳琦，潘瑜春，高世臣，赵亚楠，景胜强，周艳兵，郜允兵（2417）
基于特定源-风险评估模型的兰州黄河风情线绿地土壤重金属污染优先控制源分析 ……李军，李旭，李开明，焦亮，台喜生，臧飞，陈伟，脱新颖（2428）
西南不同类型紫色土pH变化、重金属累积与潜在生态风险评估 ……张海琳，张雨，王顶，谢军，张跃强，张宇亭，王洁，石孝均（2440）
重庆某铁矿区周边耕地土壤重金属污染评价及来源解析 ……廖泽源，李杰芹，沈智杰，李彩霞，罗程钟，梅楠，张成，王定勇（2450）
金属矿区周边农田土壤与农作物重金属健康风险评估 ……魏洪斌，罗明，向垒，查理思（2461）
赤泥基纳米零价铁对多金属污染土壤修复效果 ……刘龙宇，杨世利，赵黄诗雨，常凯威，余江（2473）
施锌对碱性土壤-小麦幼苗体系累积镉的影响 ……张瑶，王天齐，牛硕，杨阳，陈卫平（2479）

2017～2021年苏皖鲁豫交界区域$PM_{2.5}$和O_3时空变化特征及影响因素

陈伟[1,2], 徐学哲[1*], 刘文清[1,2]

(1. 中国科学院合肥物质科学研究院安徽光学精密机械研究所, 合肥 230031; 2. 中国科学技术大学研究生院科学岛分院, 合肥 230026)

摘要: 苏皖鲁豫交界区域是长三角和京津冀及周边两大大气污染治理重点区域的连接带, 揭示该区域$PM_{2.5}$和O_3污染特征对推动区域大气污染联防联控有着重要意义. 基于2017～2021年苏皖鲁豫交界区域22个地市的国家空气环境监测网络观测数据, 探讨了该区域$PM_{2.5}$和O_3浓度的时空变化特征及气象影响. 结果表明: ①2017～2021年区域$PM_{2.5}$浓度呈现逐年下降趋势, $PM_{2.5}$浓度月均值呈现“U型”分布, 冬季$PM_{2.5}$浓度仍维持高位. O_3-8h-90%浓度呈现波动下降趋势, O_3-8h-90%浓度月均值变化呈“M型”分布, 夏秋季O_3污染程度未有好转. ②与2017年相比, 2021年$PM_{2.5}$-O_3复合污染天数减少了52 d, 但$PM_{2.5}$污染仍占主导地位. ③$PM_{2.5}$和O_3污染区域主要集中在区域中部和北部城市, 且中部城市$PM_{2.5}$和O_3污染程度均改善显著. ④采用Moran's *I*指数和LISA指数分析了区域$PM_{2.5}$和O_3-8h-90%浓度的全局和局部空间自相关性, $PM_{2.5}$和O_3-8h-90%浓度均具有空间相关性, $PM_{2.5}$浓度主要表现为高值-高值聚集或低值-低值聚集现象, 且高值-高值聚集有从中部向西部转移的现象, 2020年和2021年O_3-8h-90%浓度表现为高值-高值聚集或低值-低值聚集现象. ⑤结合气象要素数据, 利用KZ滤波方法量化排放源与气象条件对区域$PM_{2.5}$和O_3-8h浓度的贡献, 两者主要受到污染物排放影响, 贡献率分别为101.0%和99.3%, 表明污染物减排是驱动区域空气质量改善的主要因素. 此外, 气象条件对$PM_{2.5}$浓度的贡献在一、四季度为正值, 二、三季度为负值, 而对O_3-8h浓度的影响则反之, 且气象条件对不同城市$PM_{2.5}$和O_3-8h浓度的影响程度存在较大差异.

关键词: $PM_{2.5}$; 臭氧(O_3); 时空分布; 相关性; 气象因素

中图分类号: X513;X515 **文献标识码:** A **文章编号:** 0250-3301(2024)04-1950-13 **DOI:** 10.13227/j.hjkx.202304233

Spatial-temporal Characteristics and Influencing Factors of $PM_{2.5}$ and Ozone in the Border Area of Jiangsu, Anhui, Shangdong, and Henan from 2017 to 2021

CHEN Wei[1,2], XU Xue-zhe[1*], LIU Wen-qing[1,2]

(1. Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Hefei Institutes of Physical Science, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China; 2. Science Island Branch, Graduate School, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China)

Abstract: The border area of Jiangsu, Anhui, Shandong, and Henan (SWLY) is the connecting zone of two key air pollution control regions: the Yangtze River Delta Region and Beijing-Tianjin-Hebei and its surrounding areas. Revealing the characteristics of $PM_{2.5}$ and ozone pollution in the region is of great significance for promoting the regional joint prevention and control of air pollution. The spatial-temporal characteristics and influencing factors of $PM_{2.5}$ and ozone were discussed based on the observation data obtained from the national air environmental monitoring network of 22 cities in the SWLY region from 2017 to 2021. ① The annual average $PM_{2.5}$ concentration showed a year-round decrease trend during 2017-2021, and the monthly average concentration showed a "U-shaped" distribution, but the $PM_{2.5}$ concentration remained high in winter. The O_3-8h-90% concentration showed a fluctuating decrease trend during 2017-2021, the monthly average concentration showed an "M-shaped" distribution, and O_3 pollution had not improved in summer and autumn. ② Compared with that in 2017, $PM_{2.5}$-O_3 co-pollution days in 2021 decreased by 52d, but $PM_{2.5}$ pollution was still predominant in the region. ③ The $PM_{2.5}$ and O_3 pollution areas mainly occurred in the central and northern cities of the region, but the pollution of both $PM_{2.5}$ and O_3 in the central cities improved significantly. ④ The global and local spatial auto-correlation of $PM_{2.5}$ and O_3 concentrations were analyzed using Moran's *I* and LISA. The results showed that the spatial correlation of both $PM_{2.5}$ and O_3 concentrations occurred in the region, and the spatial aggregation of $PM_{2.5}$ was characterized by "high-high" or "low-low" aggregations, and the phenomenon of "high-high" aggregation was shifted from the middle to the western cites. The spatial aggregation of O_3 was characterized by "high-high" or "low-low" aggregations in 2020 and 2021. ⑤ By combining meteorological data and using the Kolmogorov-Zurbenko filter, the influence of emissions and meteorological conditions on the $PM_{2.5}$ and O_3 concentrations was quantified. The results showed that they were mainly affected by emissions, with the contributions of 101.0% and 99.3%, respectively, indicating that emission reduction actions were the decisive factor in the improvement in regional air quality. In addition, the influence of meteorological conditions on $PM_{2.5}$ concentration was positive in the first and fourth quarters and negative in the second and third quarters. Conversely, the influence on O_3 concentration showed the opposite, and the influence of meteorological conditions on the concentration of $PM_{2.5}$ and O_3 concentration in different cities was quite different.

Key words: $PM_{2.5}$; ozone (O_3); spatial-temporal; correlation; meteorological elements

收稿日期: 2023-04-26; **修订日期:** 2023-06-20
基金项目: 大气重污染成因与治理攻关项目(DQGG202117)
作者简介: 陈伟(1983～), 男, 博士研究生, 主要研究方向为区域颗粒物和臭氧污染成因及防控对策, E-mail: 50510915@qq.com
* 通信作者, E-mail: xzxu@aiofm.ac.cn

自2013年国务院颁布《大气污染防治行动计划》以来，全国空气质量总体改善.但随着工业化和城市化的迅速发展，我国大气污染从局部、单一的城市污染向以细颗粒物($PM_{2.5}$)和臭氧(O_3)污染为主的区域、复合型大气污染转变[1~5]，制约区域社会经济的可持续发展，影响人民群众的身体健康[3,6,7].根据《2021年中国生态环境状况公报》，2021年全国339个城市中，有35.7%的城市环境空气质量超标，以$PM_{2.5}$和O_3为首要污染物的超标天数分别占总超标天数的39.7%和34.7%.$PM_{2.5}$和O_3污染协同防控已成为我国“十四五”期间及未来大气污染控制的关键[8~11].

近年来，针对区域与城市群层面$PM_{2.5}$和O_3的时空特征、空间相关特征及其影响因素研究已取得了丰硕成果[12~15].张淼等[10]对山东省$PM_{2.5}$和O_3复合污染特征与时空变化趋势进行了研究，结果表明山东省$PM_{2.5}$-O_3复合污染特征突出，空间差异性明显.刘贤赵等[15]探究了长株潭城市群$PM_{2.5}$和O_3浓度时空分布特征及相关因素的影响程度.宋小涵等[3]对2015~2021年京津冀及周边“2+26”城市$PM_{2.5}$和O_3复合污染时空分布特征进行研究，结果发现$PM_{2.5}$污染集中在区域中南部，O_3浓度呈“西南低，东北高”的格局.Yan等[16]基于京津冀地区13个城市的$PM_{2.5}$浓度数据分析了京津冀地区的$PM_{2.5}$污染状况.曾德珩等[17]以2015~2017年成渝城市群空气质量监测值的日均$PM_{2.5}$数据为基础，探索了$PM_{2.5}$浓度的全局和局部空间自相关性，结果表明成渝城市群$PM_{2.5}$污染存在显著的空间聚集性.

环境空气$PM_{2.5}$浓度受污染物排放(包括一次颗粒物和生成二次颗粒物的气态前体物)和气象条件的共同影响[18,19].近地面O_3主要是由NO_x和VOCs通过光化学反应产生，同样会受到污染物(NO_x和VOCs)排放和气象条件(温度、湿度和太阳辐射强度等)的共同影响[2,18].气象条件影响着大气污染物的传输扩散、化学转化和干湿沉降等过程，在高相对湿度、静稳小风天气和边界层逆温等不利气象条件下，污染物排放累积加之二次颗粒物生成转化，极易形成$PM_{2.5}$重污染事件；而在太阳辐射强、温度高、相对湿度低和风速低等不利气象条件下，通常会出现臭氧污染天气.已有研究指出污染排放是我国$PM_{2.5}$浓度的主要影响因素[20,21]，在京津冀和长三角等区域夏季O_3浓度的增加主要归因于近年来人为排放的影响[22,23].不同区域因地形、气候和污染源分布等存在差异，气象要素和空气质量之间的关系也存在差异，需去除气象条件对污染物浓度长期变化的影响，才能客观评估排放源变化对污染物浓度的影响.为探究气象条件和排放源对污染物的贡献，Rao等[24]提出Kolmogorove-Zurbenko(KZ)滤波法，通过对污染物浓度进行不同时间尺度的分离，得到关键气象要素(地表温度)对污染物浓度长期变化的影响[25,26].Gao等[27]使用人工神经网络与KZ滤波方法研究发现，河北省的O_3浓度受气象条件的影响大于前体物排放的影响.郑小华等[28]基于汾渭平原11个重点城市2015~2019年近地面大气O_3浓度监测数据，分析了O_3浓度的时空特征变化及空间聚集效应，同时使用KZ滤波评估了气象条件与排放源的影响，结果表明O_3空间聚集特征逐年增强，O_3浓度受前体物排放和气象条件的季节分量和短期分量的影响贡献率分别为40%和24%.荆琦等[29]研究了2018~2021年京津冀及周边“2+26”城市$PM_{2.5}$和O_3污染特征，结合KZ滤波方法定量分析了排放源与气象条件对$PM_{2.5}$和O_3浓度长期趋势的贡献，结果表明$PM_{2.5}$和O_3浓度的长期分量受气象条件的影响较明显.

苏皖鲁豫交界区域是长三角和京津冀及周边两大大气污染治理重点区域的连接带，现阶段该区域已成为全国污染最严重的地区之一，呈现显著的季节性污染特征，秋冬季$PM_{2.5}$污染严重，夏季O_3污染突出[30].2021年苏皖鲁豫交界区域22个城市$PM_{2.5}$平均浓度已与京津冀及周边“2+26”城市和汾渭平原基本持平，近年来O_3浓度也呈逐年恶化趋势.一方面，该区域各城市大气污染物浓度年际和月际变化特征相近，重污染过程高度一致，具有典型的区域性污染特征；另一方面，该区域紧邻京津冀及周边“2+26”城市和长三角地区，与两大重点区域间存在明显的传输影响[31,32].苏皖鲁豫交界区域城市群大气污染已不再局限于单一城市，其空气质量受本地和周边污染源的综合影响.然而目前缺少$PM_{2.5}$和O_3长期变化趋势及其影响因素的系统性研究，因此，明确苏皖鲁豫交界区域$PM_{2.5}$和O_3时空分布及其影响因素，对区域大气污染联防联控有着重要意义.本研究基于2017~2021年苏皖鲁豫区域22个地市的观测数据，探讨$PM_{2.5}$和O_3浓度的时空变化特征，并采用空间自相关性方法分析该区域$PM_{2.5}$和O_3污染的空间聚集特征，同时利用KZ滤波方法量化排放源与气象条件对$PM_{2.5}$和O_3浓度的贡献，区分大气污染治理中“天帮忙”和“人努力”的具体贡献，量化减排措施对$PM_{2.5}$和O_3浓度长期变化的影响，旨在为该区域$PM_{2.5}$和O_3污染协同控制策略的制定及联防联控机制的建立提供科学的技术支撑.

1 材料与方法

1.1 研究区域及数据获取

苏皖鲁豫交界地区位于京津冀周边地区和长三角地区的连接带，呈东北-西南方向分布，北起东营，南抵信阳，西至南阳，长约 1 100 km，宽约 900 km，其主要城市包括：江苏省徐州、连云港和宿迁，安徽省淮北、阜阳、宿州和亳州，山东省青岛、枣庄、东营、潍坊、泰安、临沂和日照，河南省平顶山、许昌、漯河、南阳、商丘、信阳、周口和驻马店这 22 个城市(图 1). 行政区域底图数据来自中国基础地理信息数据库，高程数据来自地理空间数据云(https：//www.gscloud.cn/)发布的 GDEMV2 30 m 分辨率数据.

本研究的空气质量数据来自中国环境监测总站全国城市环境空气自动监测系统的日数据(https：//air.cnemc.cn：18007/)，包括苏皖鲁豫交界区域 22 个地市 2017 ~ 2021 年大气常规 6 项污染物($PM_{2.5}$、PM_{10}、NO_2、SO_2、CO 和 O_3)的日均浓度. 根据《环境空气质量标准》(GB 3095-2012)，$PM_{2.5}$ 浓度日超标定义为 $PM_{2.5}$ 的 24 h 浓度平均值大于国家空气质量二级浓度限值(75 μg·m^{-3})，O_3 浓度日超标定义为 O_3 的日最大滑动 8 h(O_3-8h)浓度平均值大于 O_3 国家空气质量二级浓度限值(160 μg·m^{-3}). $\rho(PM_{2.5})$ 的月评价值和年评价值取各日的算术平均值(35 μg·m^{-3})，O_3 的月评价值和年评价值采用 O_3 日最大 8 h(O_3-8h)浓度平均值在日历月和日历年的第 90 百分位数[$\rho(O_3$-8h-90%)，160 μg·m^{-3}].

气象数据分别来源于 22 个地市的气象观测站，包含了 2017 ~ 2021 年各城市对应的逐小时的数据. 具体气象参数包括：瞬时温度(℃)、地面气压(hPa)、相对湿度(%)、瞬时风向(°)、瞬时风速(m·s^{-1})、日降水量(mm)和 10 min 平均能见度(m).

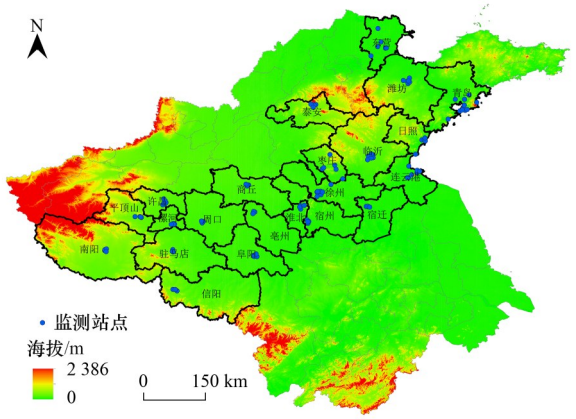


图 1 研究区域地形和监测站点分布示意

Fig. 1 Distribution of topography and monitoring sites in study area

1.2 研究方法

根据苏皖鲁豫交界区域城市 $PM_{2.5}$ 和 O_3 浓度的日均观测数据，总结其年度变化特征和月度变化特征，利用 ArcGIS 10.8 对 $PM_{2.5}$ 和 O_3 浓度进行年度时空变化特征分析. 采用空间自相关分析方法分析 $PM_{2.5}$ 和 O_3 污染的全局和局部自相关特征，获得 $PM_{2.5}$ 和 O_3 污染的空间聚集程度[33]，其中 $PM_{2.5}$ 浓度采用全年各日的算术平均值，O_3 浓度采用 O_3-8h 浓度平均值的全年第 90 百分位数. 结合城市逐日气象要素中的温度、湿度、风速、降雨量和气压，利用 KZ 滤波方法量化排放源与气象条件对 $PM_{2.5}$ 和 O_3-8h 浓度的贡献率[25].

1.2.1 空间自相关性

城市群发展要素及其大气污染在一定空间上有所关联，表现为聚集、随机或规则分布的特征，并且相关性随着距离的增大而减小[4, 15]. 本研究采用 Moran's I 指数及 LISA 指数检验全局和局部是否存在相似或者相异的 $PM_{2.5}$ 和 O_3-8h-90% 浓度聚集现象，即 $PM_{2.5}$ 和 O_3 浓度空间自相关性. Moran's I 指数(I)的计算公式：

$$I = \frac{N\sum_{i=1}^{N}\sum_{j=1}^{N}\left[\boldsymbol{W}_{ij}(x_i-\bar{x})(x_j-\bar{x})\right]}{\left(\sum_{i=1}^{N}\sum_{j=1}^{N}\boldsymbol{W}_{ij}\right)\sum_{i=1}^{N}(x_i-\bar{x})^2} \quad (1)$$

式中，N 为苏皖鲁豫交界区域城市总数；x_i 和 x_j 为地区 i 和 j 的污染物浓度(μg·m^{-3})；$\bar{x}$ 为该区域 $PM_{2.5}$ 全年各日的算术平均值或 O_3-8h 浓度平均值的全年第 90 百分位数浓度值(μg·m^{-3})；$\boldsymbol{W}_{ij}$ 为空间权重值，表示地区 i 与地区 j 之间的一阶面邻接关系. Moran's I 指数取值范围为 −1 ~ 1. Moran's I 指数接近 1 时，表明相似的属性值聚集(即高值-高值或低值-低值相邻)；Moran's I 指数接近 −1 时，表明相异的属性值聚集(即高值-低值或低值-高值相邻).

局部 Moran's I 指数或称 LISA 指数，用来检验局部地区是否存在相似或相异属性值聚集的现象. 地区 i 的 LISA 指数可以衡量地区 i 与其相邻区域之间的关联程度，计算公式：

$$L_i = \frac{(x_i-\bar{x})}{S^2}\sum_{j=1}^{N}\boldsymbol{W}_{ij}(x_i-\bar{x}) \quad (2)$$

式中，L_i 为地区 i 的 LISA 指数，S^2 为各城市污染物浓度的方差. $L_i > 0$ 包括高值-高值聚集和低值-低值聚集；$L_i < 0$ 包含低值-高值聚集和高值-低值聚集.

1.2.2 KZ 滤波和多元线性回归方法

KZ 滤波是一种时间序列分析的方法，通常用于过滤掉气象条件对污染物排放浓度变化的影响，可通过设定不同参数，可较好地将 $PM_{2.5}$ 和 O_3-8h 浓度

时间序列分为短期分量、季节分量和长期分量. KZ 滤波可以处理缺失值，所得结果比其他方法更为可靠[25,33,34].

原始时间序列 $X(t)$ 可以表示为：

$$X(t) = e(t) + S(t) + W(t) \tag{3}$$

式中，$e(t)$、$S(t)$ 和 $W(t)$ 分别为污染物长期分量、季节分量和短期分量.

KZ 滤波属于低通滤波，通过移动平均值的反复迭代产生：

$$Y_i = \frac{1}{m}\sum_{j=-k}^{k} X_{i+j} \tag{4}$$

式中，Y_i 为经 KZ 滤波后的时间序列，滑动窗口长度 $m = 2k + 1$，i 为序列的时间间隔，j 为滑动窗口变量，k 为 X_i 在滤波时其两端的滑动窗口长度.

$KZ_{(m,\ p)}$ 为滑动窗口 m 经过 p 次迭代，调整窗口长度 m 和迭代次数 p 可以控制不同尺度过程的滤波. 若要将波长小于 N 的高频波去除，则需满足：

$$m \times p^{1/2} \leqslant N \tag{5}$$

有研究表明[9,26]，长期分量受到前体物排放、污染输送、气候和经济等多方面因素的影响，季节分量主要受到太阳高度角和平流层垂直输送的影响，短期分量主要是由天气变化和污染物短期排放的波动造成[9,26]. 将长期分量和季节分量之和定义为基线分量 $X_{baseline}(t)$，季节分量为基线分量与长期分量之差，短期分量为原始序列与基线分量之差[28]，具体如公式(6)~(9).

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

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

$$S(t) = KZ_{(15,5)} - KZ_{(365,3)} \tag{8}$$

$$W(t) = X(t) - KZ_{(15,5)} \tag{9}$$

$KZ_{(15,\ 5)}$ 滤波可以提取气象和空气质量数据长期和季节成分的总和，通过选择较大的窗口可以获取污染物的长期趋势，如 $KZ_{(365,\ 3)}$ 滤波可以获得污染物长期分量.

对浓度时间序列短期分量和基线分量分别建立以气象要素为自变量的多元线性回归模型，是消除气象影响的有效方法[18,29,35]. 回归模型如下：

$$W(t) = \alpha_0 + \sum \alpha_i W_i(t) + \varepsilon_W(t) \tag{10}$$

$$X_{baseline}(t) = b_0 + \sum b_i x_i(t) + \varepsilon_b(t) \tag{11}$$

式中，$\varepsilon_W(t)$ 和 $\varepsilon_b(t)$ 分别为短期分量回归残差和基线分量回归残差，$W_i(t)$ 为短期分量回归的第 i 个气象因子，$x_i(t)$ 为基线分量回归的第 i 个气象因子，α_0、α_i、b_0 和 b_i 为回归系数.

浓度时间序列回归的总残差 $\varepsilon(t)$ 是短期分量回归残差 $\varepsilon_W(t)$ 与基线分量回归残差 $\varepsilon_b(t)$ 之和：

$$\begin{aligned}\varepsilon(t) &= \varepsilon_W(t) + \varepsilon_b(t)\\ &= \left\{W(t) - \left[\alpha_0 + \sum \alpha_i \boldsymbol{W}_i(t)\right]\right\} +\\ &\quad \left\{X_{baseline}(t) - \left[b_0 + \sum b_i x_i(t)\right]\right\}\end{aligned} \tag{12}$$

式(12)表示去除气象条件影响、仅受排放影响的污染物浓度变化. 对总残差序列做 KZ 滤波处理可得到受排放变化影响的污染物浓度长期分量 $\varepsilon_e(t)$. 将该浓度长期分量叠加到原始浓度序列的长期分量均值 $\overline{e(t)}$ 之上，即可得到去除气象影响、仅受排放影响的污染物浓度长期分量时间序列 $e_{adj}(t)$：

$$e_{adj}(t) = \overline{e(t)} + \varepsilon_e(t) \tag{13}$$

基于 KZ 滤波和多元线性回归模型，得到去除气象影响之后仅受排放影响的 $PM_{2.5}$ 和 O_3 浓度的长期分量时间序列，可分别计算 2017 ~ 2021 年第一季度(1 ~ 3 月)、第二季度(4 ~ 6 月)、第三季度(7 ~ 9 月)和第四季度(10 ~ 12 月)排放和气象条件对 $PM_{2.5}$ 和 O_3-8h 浓度的贡献率.

2　结果与讨论

2.1　$PM_{2.5}$ 和 O_3 浓度时空分布特征

2.1.1　$PM_{2.5}$ 和 O_3 时间变化特征

如图 2 所示，2017 ~ 2021 年苏皖鲁豫交界地区 $\rho(PM_{2.5})$ 年均值分别为 57、52、53、47 和 42 μg·m^{-3}，除 2019 年略有升高外，整体呈现逐年下降的趋势，$PM_{2.5}$ 浓度年均降幅为 3.5%(2 μg·m^{-3}). 2017 ~ 2021 年该区域 $\rho(O_3\text{-8h-90\%})$ 分别为 175、165、180、163 和 155 μg·m^{-3}，除 2019 年略有升高外，整体呈波动下降的趋势，O_3-8h-90% 浓度年均降幅为 1.1%(2 μg·m^{-3}).

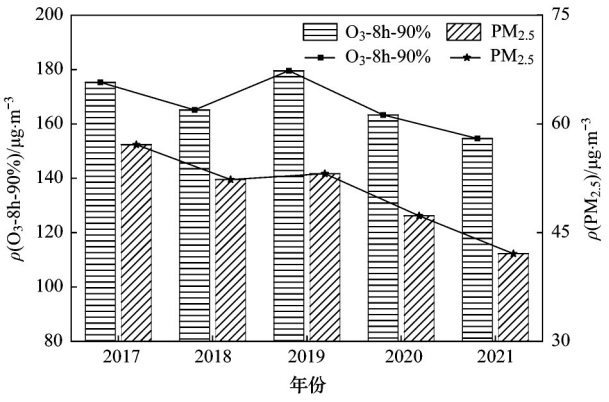


图 2　2017 ~ 2021 年苏皖鲁豫交界区域 $PM_{2.5}$ 和 O_3-8h-90% 浓度的年际变化

Fig. 2　Annual variation in $PM_{2.5}$ and O_3-8h-90% concentrations from 2017 to 2021 in SWLY

如图 3 所示，苏皖鲁豫交界区域 $PM_{2.5}$ 月均浓度变化呈现“U 型”分布，10 月至翌年 3 月北方采暖季污染物排放量增加[3]，加之低温、较低边界层等

不利气象条件的影响[10, 12]，导致$PM_{2.5}$月均浓度较高，其中浓度峰值多出现在1月.3月之后，北方采暖季结束，污染物排放量下降，受气温升高、大气边界层抬升、降雨量增加等有利气象条件的影响，$PM_{2.5}$浓度在7月或8月达到谷值.O_3-8h月均浓度变化呈“M”型分布，峰值出现在6月和9月，且6月O_3-8h浓度明显高于9月，这与该区域6月高温、少雨和强太阳辐射等气象条件相关[10].7月和8月O_3-8h浓度逐渐下降，一方面是该区域太阳辐射强度降低，另一方面是该区域进入雨季，降雨对O_3前体物的去除作用明显[3, 10]，使得本地O_3光化学生成速率降低.

从年际变化来看，2017～2021年1月区域$\rho(PM_{2.5})$平均值分别为101、102、108、102和81 μg·m^{-3}，其中2021年1月$PM_{2.5}$浓度同比降幅最大(20.6%)，这得益于“打赢蓝天保卫战”等系列措施的有效推进[3,36].2017~2021年区域6月$\rho(O_3$-8h-90%)分别为218、208、205、190和213 μg·m^{-3}，除2020年略有降低外，整体呈现持平趋势.2020年6月O_3峰值浓度最低，这可能由于疫情管控期间采取严格的人员隔离措施，机动车活动水平下降，大部分企业生产活动受限[37]，使得O_3前体物(VOCs和NO_x)浓度排放下降，O_3二次生成量减小.

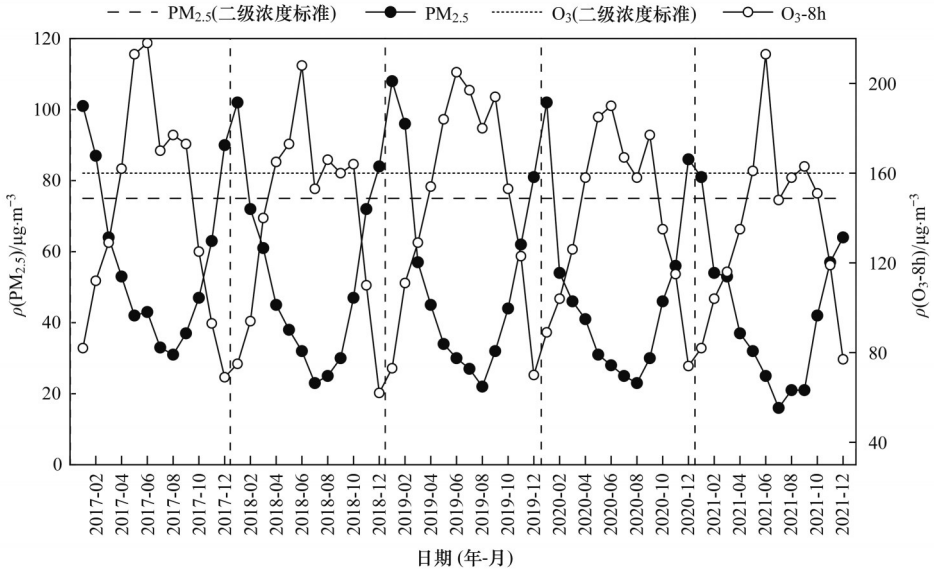


图3 2017～2021年苏皖鲁豫交界区域$PM_{2.5}$和O_3-8h浓度的月变化特征

Fig. 3 Monthly variation in $PM_{2.5}$ and O_3-8h concentrations from 2017 to 2021 in SWLY

2.1.2 $PM_{2.5}$和O_3空间变化特征

图4为2017～2021年苏皖鲁豫交界地区$PM_{2.5}$和O_3-8h-90%浓度的空间分布情况，$\rho(PM_{2.5})$范围为34.4～56.6 μg·m^{-3}，其中山东省沿海城市青岛(34.4 μg·m^{-3})、连云港(39.8 μg·m^{-3})和日照(40.6 μg·m^{-3})的$\rho(PM_{2.5})$较低，而河南省漯河(56.6 μg·m^{-3})、平顶山(56.6 μg·m^{-3})、许昌(55.6 μg·m^{-3})和商丘(54.4 μg·m^{-3})以及山东省枣庄(56.0 μg·m^{-3})和江苏省徐州(55.0 μg·m^{-3})的$\rho(PM_{2.5})$较高.$\rho(O_3$-8h-90%)范围为149.4～188.6 μg·m^{-3}，其中山东省泰安和东营$\rho(O_3$-8h-90%)总体较高，分别为188.6 μg·m^{-3}和185.6 μg·m^{-3}，而山东省沿海城市青岛(149.4

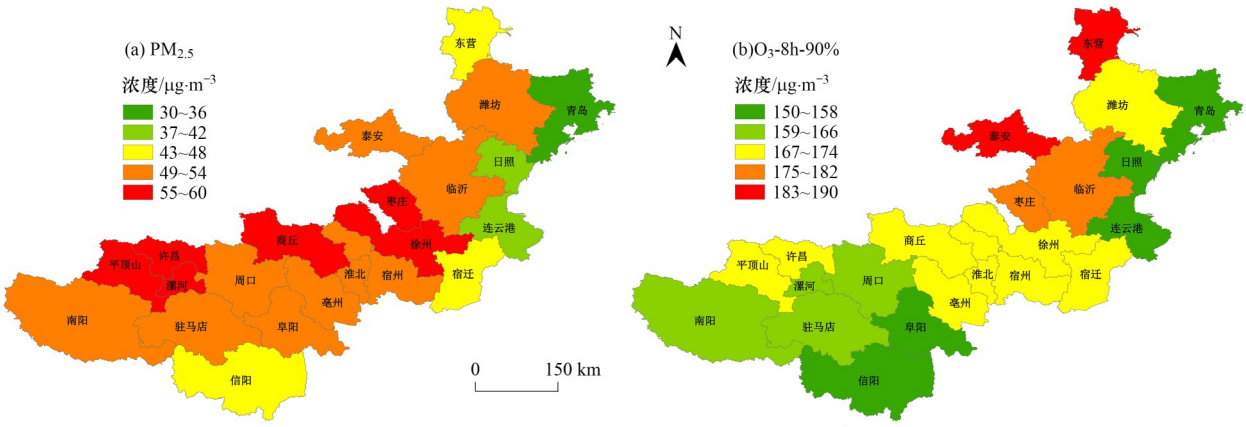


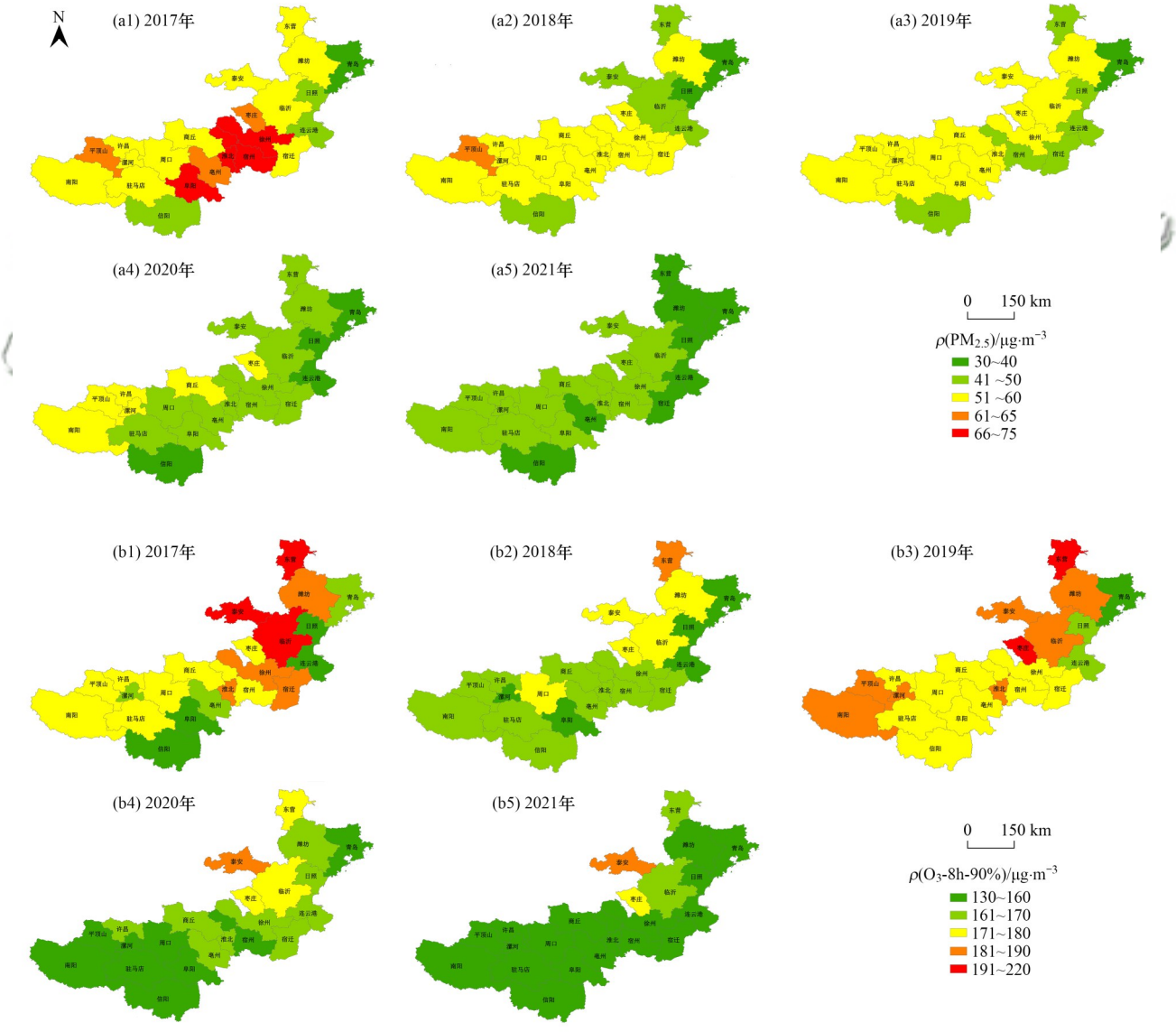
图4 2017～2021年苏皖鲁豫交界区域$PM_{2.5}$和O_3-8h-90%浓度空间分布

Fig. 4 Spatial distributions of $PM_{2.5}$ and O_3-8h-90% concentrations in SWLY from 2017 to 2021

μg·m^{-3}）、日照（157.4 μg·m^{-3}）和连云港（157.6 μg·m^{-3}）以及西南部城市的$\rho(O_3\text{-}8h\text{-}90\%)$较低.

2017 ~ 2021 年苏皖鲁豫交界区域 $PM_{2.5}$ 浓度的空间变化特征如图 5(a)所示. 2017 年区域中部城市 $PM_{2.5}$ 浓度相对较高，其中安徽省宿州、阜阳、淮北和江苏省徐州的$\rho(PM_{2.5})$年均值在 65 μg·m^{-3} 以上. 2018 年区域 $PM_{2.5}$ 浓度年均值整体下降，其中河南省平顶山 $PM_{2.5}$ 浓度较高. 2019 年区域$\rho(PM_{2.5})$高值主要位于西北部，范围为 51 ~ 60 μg·m^{-3}. 2020 年西部城市$\rho(PM_{2.5})$较高，范围为 51 ~ 60 μg·m^{-3}. 2021 年区域$\rho(PM_{2.5})$低于 50 μg·m^{-3}以下，与 2017 年相比，亳州、淮北、宿州、徐州、东营、潍坊和阜阳的 $PM_{2.5}$ 浓度下降幅度较大，分别为：36.5%、36.4%、36.2%、34.8%、33.3%、32.2% 和 31.8%，而南阳的 $PM_{2.5}$ 浓度下降幅度最小(11.3%). 从年际空间变化来看，区域中部城市的 $PM_{2.5}$ 浓度下降幅度较大(高于 30%)，颗粒物污染治理成效显著.

2017 ~ 2021 年苏皖鲁豫交界区域 O_3-8h-90% 浓度的空间变化特征如图 5(b)所示，区域 O_3-8h-90% 污染呈先降低再升高再降低的趋势. 2017 年泰安、东营、临沂、宿迁、徐州、潍坊和淮北$\rho(O_3\text{-}8h\text{-}90\%)$均超过 180 μg·m^{-3}，相对其他城市较高. 2018 年该区域中东营$\rho(O_3\text{-}8h\text{-}90\%)$为 185 μg·m^{-3}，相对于其他城市最大，但相较 2017 年(192 μg·m^{-3})有所改善. 2019 年该区域 O_3-8h-90% 浓度较 2018 年有明显的升高趋势，高值区位于东北部的东营、枣庄、临沂和泰安[$\rho(O_3\text{-}8h\text{-}90\%)$均超过 190 μg·m^{-3}]. 2020 年中北部地区$\rho(O_3\text{-}8h\text{-}90\%)$较高，最高值为泰安(184 μg·m^{-3}). 除泰安、枣庄、临沂和东营外，2021 年该区域 O_3-8h-90% 浓度整体较低，空气质量等级处于



(a)$PM_{2.5}$，(b)O_3-8h-90%

图 5　2017 ~ 2021 年苏皖鲁豫交界区域 $PM_{2.5}$ 浓度年均值和 O_3-8h-90% 浓度的空间分布特征

Fig. 5　Spatial distributions of annual mean $PM_{2.5}$ concentrations and O_3-8h-90% concentrations in SWLY from 2017 to 2021

良. 与2017年相比，2021年潍坊、徐州、宿迁、驻马店、淮北、许昌、平顶山和南阳的O_3-8h-90%浓度下降幅度较大，分别为：16.7%、16.6%、16.0%、16.0%、15.9%、15.6%、15.6%和15.3%，而连云港市下降幅度最小(0.7%). 从年际空间变化来看，除山东省潍坊以外，该区域中部和南部城市的O_3-8h-90%浓度下降幅度较大(高于15%)，臭氧污染程度明显降低.

综上，2017～2021年该区域$PM_{2.5}$和O_3污染主要集中在区域中部和北部城市，沿海城市的污染程度较低，并且中部城市$PM_{2.5}$和O_3污染程度均改善显著.

2.2 $PM_{2.5}$和O_3复合污染特征

2017～2021年苏皖鲁豫交界区域$PM_{2.5}$和O_3污染特征变化趋势如图6所示，其中$PM_{2.5}$和O_3超标天数均呈现先降低后升高再降低的年变化趋势，而复合污染天数逐年减小. 其中2019年$PM_{2.5}$和O_3污染天数相较于2018年分别增加了247 d和487 d. 自2019年之后，$PM_{2.5}$和O_3超标天数逐渐降低，2021年区域$PM_{2.5}$和O_3超标天数分别为1 032 d和665 d，相较于2017年降低了39.3%和46.1%，较2019年降低了38.5%和53.5%，复合污染天数由2017年的59 d降低至2021年的7 d，下降幅度为88.1%. 2017～2021年O_3和$PM_{2.5}$超标天数的比值显示，该区域$PM_{2.5}$超标频次占主导地位，其中2019年O_3和$PM_{2.5}$超标天数的比值最大(0.85)，表明2019年该区域O_3污染程度相对较高.

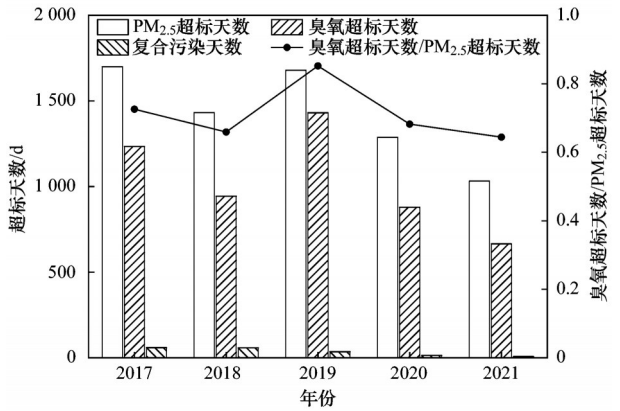


图6 2017～2021年苏皖鲁豫交界区域$PM_{2.5}$和O_3污染天数变化趋势

Fig. 6 Annually changing trend of $PM_{2.5}$ and O_3 pollution days in SWLY from 2017 to 2021

2017～2021年区域城市的复合污染日天数见表1. 2017年东营复合污染天数最多，为12 d，其次是宿州、潍坊、平顶山和徐州，复合污染天数超过4 d，临沂、漯河、南阳、青岛、信阳、周口和驻马店未出现复合污染日. 2018年日照和泰安复合污染日天数相较于2017年减少明显，而2019年仅有漯河、南阳和信阳未出现复合污染日. 从年际变化来看，2020～2021年该区域复合污染天数显著降低，$PM_{2.5}$和O_3复合污染状况稳中向好.

表1 2017～2021年苏皖鲁豫交界区域各城市复合污染日天数/d

Table 1 Co-polluted days in each city in SWLY from 2017 to 2021/d

城市	2017年	2018年	2019年	2020年	2021年
亳州(BZ)	1	4	3	0	0
东营(DY)	12	8	1	2	1
阜阳(FY)	1	3	2	0	0
淮北(HB)	3	2	3	0	0
连云港(LYG)	2	3	1	0	0
临沂(LY)	0	2	3	2	0
漯河(LH)	0	3	0	0	0
南阳(NY)	0	0	0	0	0
平顶山(PDS)	5	1	2	0	0
青岛(QD)	0	0	1	0	0
日照(RZ)	4	0	2	4	0
商丘(ShQ)	3	4	1	0	0
宿迁(SuQ)	2	4	2	0	0
宿州(SZ)	7	3	1	0	0
泰安(TA)	2	0	3	2	1
潍坊(WF)	7	4	1	0	1
信阳(XY)	0	1	0	0	1
徐州(XZ)	5	5	2	0	0
许昌(XC)	1	3	2	0	0
枣庄(ZZ)	4	2	2	4	2
周口(ZK)	0	4	2	0	0
驻马店(ZMD)	0	2	1	0	1

2.3 空间特征分析

2.3.1 全局空间自相关性

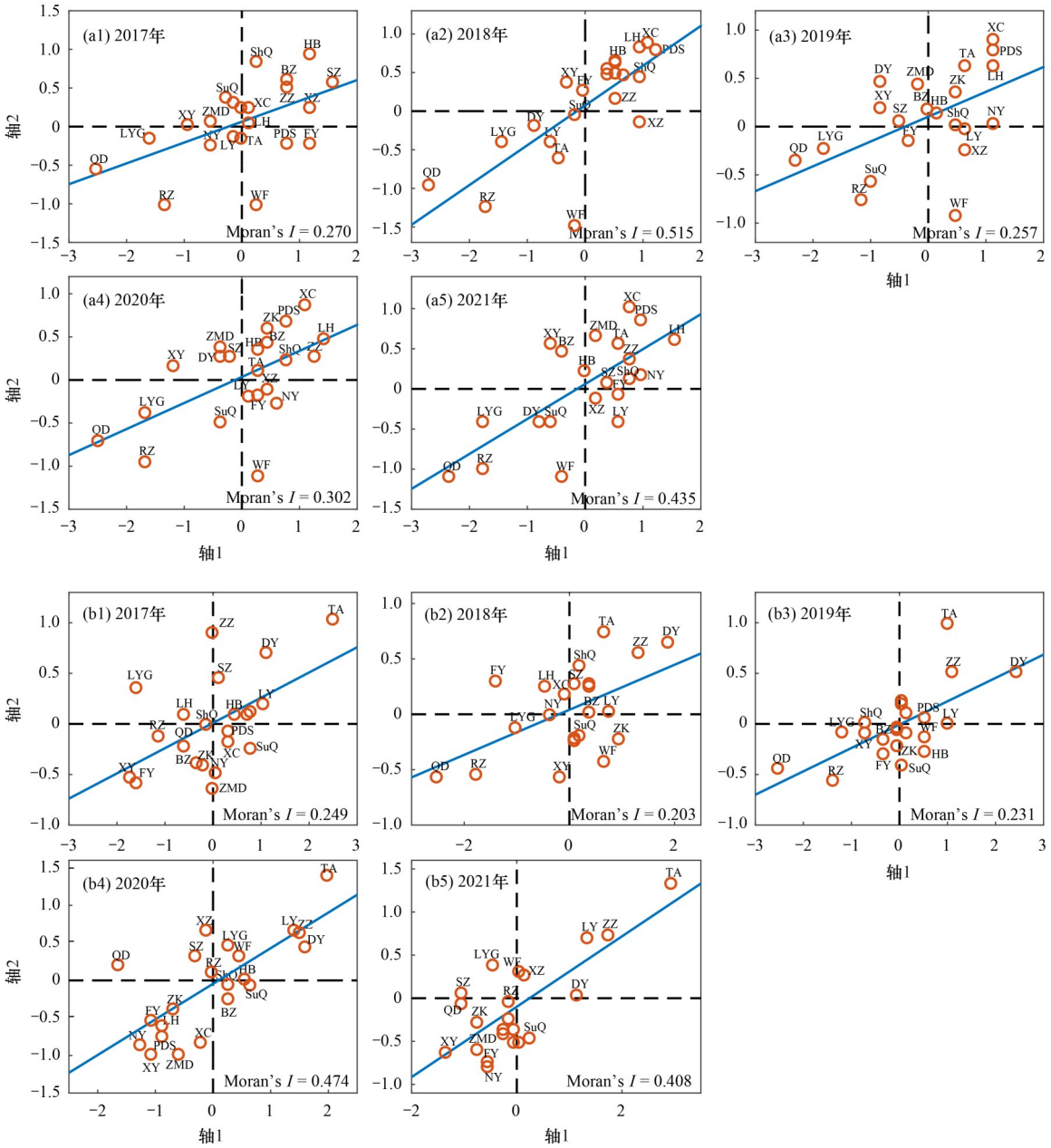
2017～2021年苏皖鲁豫交界区域$PM_{2.5}$和O_3-8h-90%浓度全局空间Moran's *I*指数如表2所示. 2017～2021年该区域城市$PM_{2.5}$浓度Moran's *I*指数先增加后减小再增加，且Moran's *I*指数均大于0，说明该区域城市$PM_{2.5}$浓度具有空间相关性，相关性呈现先增强后减弱再增强的年变化趋势. 2017～2021年该区域城市O_3-8h-90%浓度Moran's *I*指数先减小后增加再减小，且Moran's *I*指数均大于0，说明该区域城市O_3-8h-90%浓度也具有空间相关性，相关性呈现先减弱后增强再减弱的年变化趋势. 2020年和2021年$PM_{2.5}$和O_3-8h-90%浓度Moran's *I*指数相对较大，表明其空间相关性明显增强.

表2 2017～2021年苏皖鲁豫交界区域城市$PM_{2.5}$和O_3-8h-90%浓度全局Moran's *I*指数

Table 2 Global spatial Moran's *I* index of $PM_{2.5}$ and O_3-8h-90% of SWLY from 2017 to 2021

项目	2017年	2018年	2019年	2020年	2021年
$PM_{2.5}$	0.270	0.515	0.257	0.302	0.435
O_3-8h-90%	0.249	0.203	0.231	0.474	0.408

2017 ~ 2021 年苏皖鲁豫交界区域城市 $PM_{2.5}$ 和 O_3-8h-90% 浓度的 LISA 指数散点分布如图 7 和表 3 所示．2017、2018 和 2021 年区域 $PM_{2.5}$ 浓度具有相似性，LISA 指数多位于第一象限和第三象限，说明区域城市 $PM_{2.5}$ 浓度多为高值-高值聚集与低值-低值聚集共存的空间分布模式[17,38]，2019 年区域城市 $PM_{2.5}$ 浓度多为高值-高值聚集、低值-高值聚集和低值-低值聚集分布模式；2020 年区域城市 $PM_{2.5}$ 浓度多为高值-高值聚集和高值-低值聚集分布模式；2020 ~ 2021 年区域城市 $PM_{2.5}$ 浓度高值-高值聚集现象较明显，说明 $PM_{2.5}$ 污染程度受区域影响增强．2017、2019 ~ 2021 年，O_3-8h-90% 浓度 LISA 指数分布显示，区域 O_3-8h-90% 浓度大多处于第一象限和第三象限，说明 O_3-8h-90% 浓度分布呈高值-高值聚集与低值-低值聚集共存的空间分布模式[17,38]，2021 年 O_3-8h-90% 浓度低值-低值聚集的空间分布模式情况增强，说明区域 O_3 污染改善明显．



(a)$PM_{2.5}$，(b)O_3-8h-90%；英文缩写含义见表 1

图 7　2017 ~ 2021 年苏皖鲁豫交界区域城市 $PM_{2.5}$ 和 O_3-8h-90% 浓度的 LISA 指数散点分布

Fig. 7　LISA scatter plots of $PM_{2.5}$ and O_3-8h-90% concentrations in SWLY from 2017 to 2021

2.3.2　空间聚集特征

基于 LISA 指数的 2017 ~ 2021 年苏皖鲁豫交界区域城市群 $PM_{2.5}$ 浓度空间聚集特征如图 8(a)所示，不同年份 $PM_{2.5}$ 浓度空间聚集区域存在差异，除 2020 年未出现高值-高值聚集现象以外，高值聚集有从中部向西部转移的趋势．日照是唯一保持低值-低值聚集

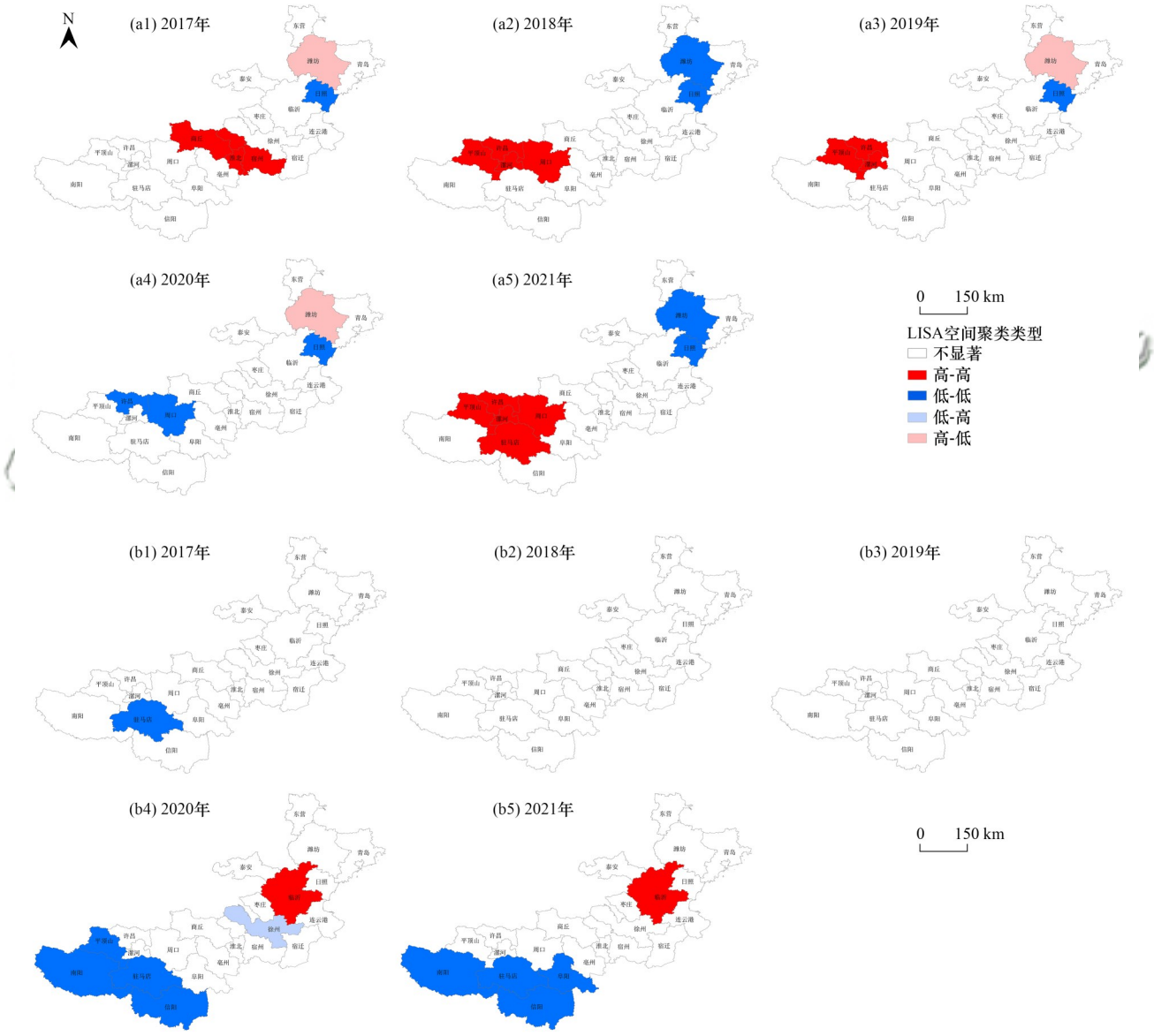
表 3 2017～2021 年 $PM_{2.5}$ 和 O_3-8h-90% 浓度 LISA 指数在不同象限个数分布

Table 3 Distribution of LISA indices for $PM_{2.5}$ and O_3-8h-90% concentration in different quadrants from 2017 to 2021

项目	2017 年				2018 年				2019 年				2020 年				2021 年			
象限	一	二	三	四	一	二	三	四	一	二	三	四	一	二	三	四	一	二	三	四
$PM_{2.5}$	8	5	6	3	11	2	8	1	9	5	5	3	9	4	4	5	10	3	6	3
O_3-8h-90%	7	3	8	4	9	3	5	5	8	1	9	4	7	4	8	3	6	2	12	2

现象的城市，2017、2019 和 2021 年潍坊 $PM_{2.5}$ 浓度呈现高值-低值聚集，表明该年份潍坊与周边地区 $PM_{2.5}$ 浓度存在明显差异，这可能是其产业结构的差异所导致[7].

2017～2021 年苏皖鲁豫交界区城市群 O_3-8h-90% 浓度空间聚集特征如图 8(b)所示，与 $PM_{2.5}$ 浓度空间聚集特征不同，O_3-8h-90% 浓度聚集没有明显变化趋势. 2017 年仅驻马店 O_3-8h-90% 浓度呈现低值-低值空间聚集特征，2018 年和 2019 年区域城市群 O_3-8h-90% 浓度无明显的空间聚集特征，2020 年和 2021 年西部偏南城市 O_3-8h-90% 浓度呈现低值-低值空间聚集特征，其中 2020 年徐州呈现低值-高值空间聚集特征，而临沂两年均呈现高值-高值聚集特征.



(a)$PM_{2.5}$, (b)O_3-8h-90%

图 8 2017～2021 年苏皖鲁豫交界区域 $PM_{2.5}$ 和 O_3-8h-90% 浓度空间聚集

Fig. 8 Spatial clustering of $PM_{2.5}$ and O_3-8h-90% concentrations in SWLY from 2017 to 2021

2.4 气象和排放贡献

2018 年实施《打赢蓝天保卫战三年行动计划》以来，我国城市 $PM_{2.5}$ 和 O_3 浓度均发生较大变化，新形势下 $PM_{2.5}$ 和 O_3 污染变化趋势及其影响因素研究尤

为重要，当前对于 $PM_{2.5}$ 和 O_3 变化趋势及其影响因素的研究主要从气象条件和排放源等方面开展[18]. 2017～2021 年苏皖鲁豫交界区域气象条件和排放源对 $PM_{2.5}$ 和 O_3-8h 浓度的影响如图 9 所示，气象条件对区域 $PM_{2.5}$ 和 O_3-8h 浓度的贡献率分别为−1.0% 和 0.7%，排放源贡献率分别为 101.0% 和 99.3%，表明该区域 $PM_{2.5}$ 和 O_3 浓度主要受到污染物排放影响. 从年度变化来看，2017～2021 年气象条件对区域 $PM_{2.5}$ 浓度的贡献率先升高后降低，贡献率分别为−1.6%、1.8%、2.5%、2.3% 和−16.1%，其中 2021 年的气象条件最有利于该区域 $PM_{2.5}$ 污染的改善. 2017～2021 年气象条件对区域 O_3-8h 浓度的贡献率分别为 3.1%、−1.5%、2.1%、−2.3% 和 2.9%，表明气象条件对该区域 O_3-8h 污染的影响程度呈现年际波动变化的特征.

从季度变化来看(表 4)，本研究时段内 4 个季度中气象条件对 $PM_{2.5}$ 浓度的贡献率分别为 26.3%、−26.9%、−68.3% 和 19.2%，其中气象条件对 $PM_{2.5}$ 浓度的贡献率在一、四季度为正值，二、三季度为负值. 气象条件对 O_3-8h 浓度的影响则反之，贡献率分别为−37.1%、13.8%、20.2% 和−25.7%，表现为一、四季度为负值，二、三季度为正值. 结果表明，秋冬季气象条件会加重该区域 $PM_{2.5}$ 污染程度，主要原因是秋冬季温度较低，混合层高度降低及逆温现象的出现，污染物难以消散，形成积累型污染[10,12,36]；春夏季气象条件有利于该区域 O_3 浓度的增加，主要原因是近地面 O_3 主要是 NO_x 和 VOCs 通过光化学反应产生[9,39]，温度上升、太阳辐射增强等因素，导致本地 O_3 生成速率加快[9,13]. 年际变化特征如图 9 所示，2017 年二季度气象条件对 $PM_{2.5}$ 贡献率为 0.2%，而 2018～2021 年二季度气象条件对 $PM_{2.5}$ 影响均为负值，可能原因是 2017 年二季度气象条件较 2018～2021 年较差.

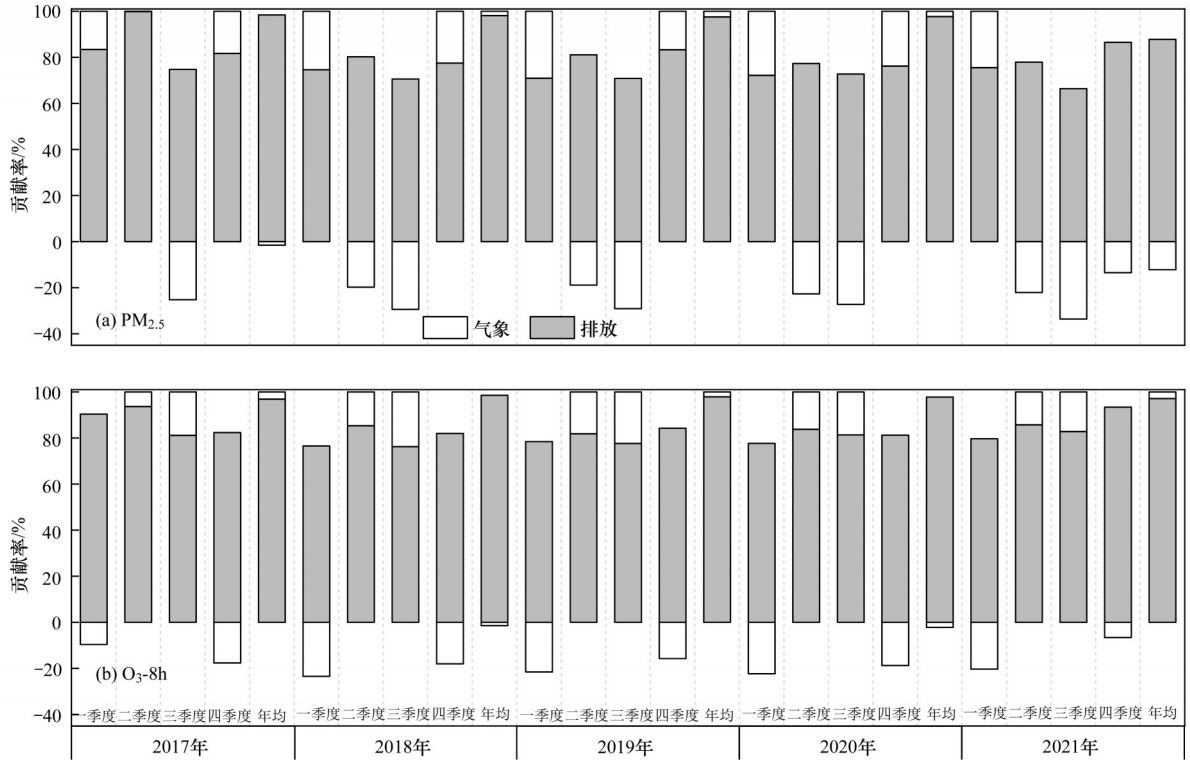


图 9　2017～2021 年苏皖鲁豫交界区域气象条件和排放源对 $PM_{2.5}$ 和 O_3-8h 浓度的贡献

Fig. 9　Contribution of meteorological conditions and emissions on $PM_{2.5}$ and O_3-8h concentrations in SWLY from 2017 to 2021

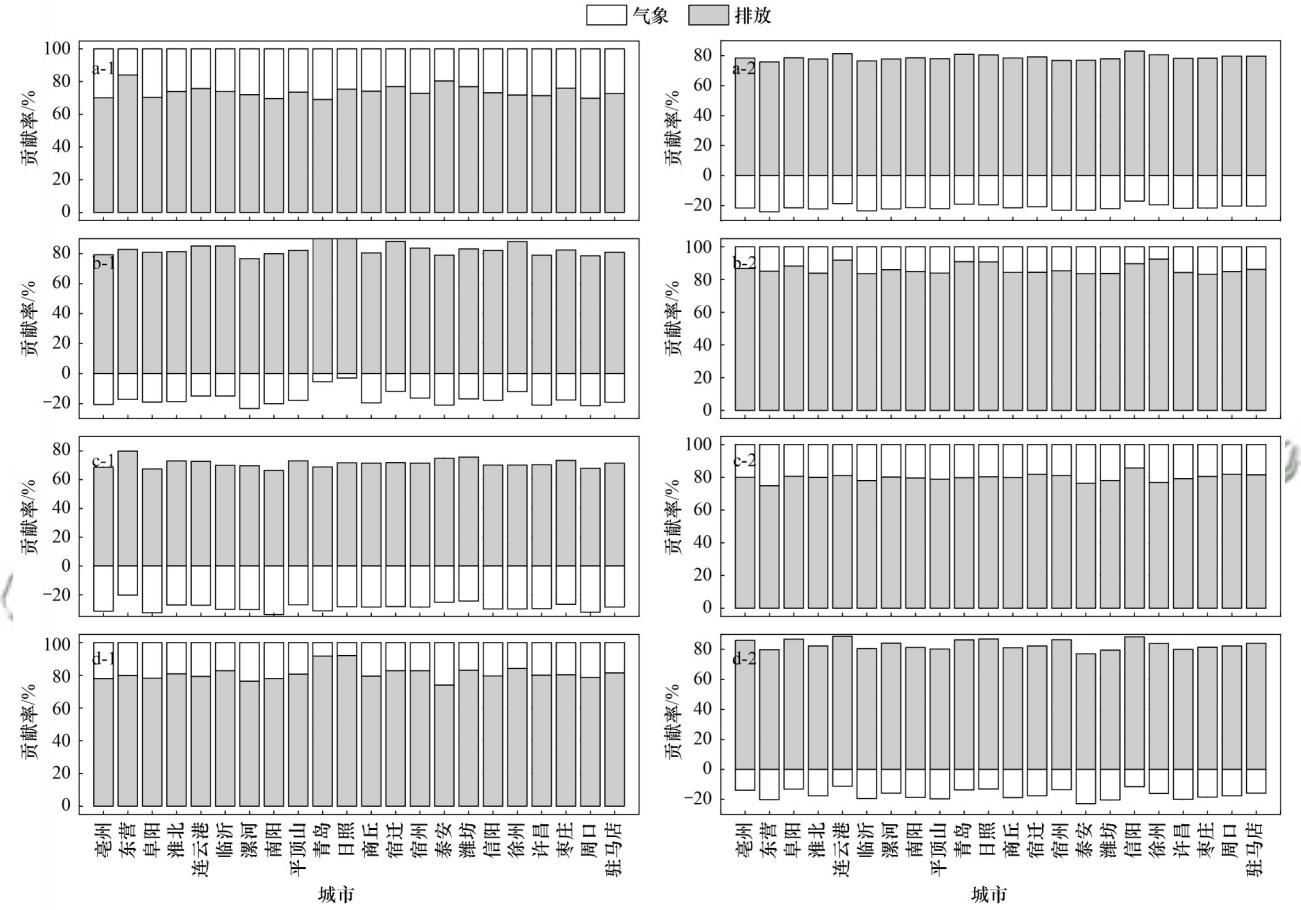
表 4　2017～2021 年苏皖鲁豫交界区域不同季度下气象条件和排放源对 $PM_{2.5}$ 和 O_3-8h 浓度的贡献率/%

Table 4　Contribution of meteorological conditions and emissions on $PM_{2.5}$ and O_3-8h concentrations of SWLY in different seasons from 2017 to 2021/%

污染物	第一季度		第二季度		第三季度		第四季度	
	排放	气象	排放	气象	排放	气象	排放	气象
$PM_{2.5}$	73.7	26.3	126.9	−26.9	168.3	−68.3	80.8	19.2
O_3-8h	137.1	−37.1	86.2	13.8	79.8	20.2	125.7	−25.7

不同季度下气象条件和排放源对各城市 $PM_{2.5}$ 和 O_3-8h 浓度的影响如图 10 所示. 整体来看，一、四季度气象条件对该区域 $PM_{2.5}$ 浓度的贡献率分布在 7.9%～30.9% 之间，排放源对 $PM_{2.5}$ 浓度的贡献率在 69.1%～92.1% 之间；二、三季度气象条件对 $PM_{2.5}$ 浓度的贡献率范围为在−103.5%～−3.1%，排放源

对 $PM_{2.5}$ 浓度的贡献率在 103.1% ~ 203.5% 之间；一、四季度气象条件对 O_3-8h 浓度的贡献率分布在 −46.8% ~ −14.4% 之间，排放源对 O_3-8h 浓度的贡献率在 114.4% ~ 146.8% 之间；二、三季度气象条件对 O_3-8h 浓度的贡献率范围为在 7.5% ~ 25.1%，排放源对 $PM_{2.5}$ 浓度的贡献率在 74.9% ~ 92.5% 之间. 从具体城市来看，第一季度气象条件对青岛(30.9%)、南阳(30.4%)、周口(30.2%)、亳州(29.7%)和阜阳(26.1%)$PM_{2.5}$ 浓度贡献率较高，而东营(84.1%)和泰安(80.4%)$PM_{2.5}$ 浓度受排放源影响较大；第四季度气象条件对泰安 $PM_{2.5}$ 浓度的贡献率最大(25.9%)，而日照和青岛 $PM_{2.5}$ 浓度受排放源影响较大，其贡献率分别为 92.1% 和 91.8%. 第二季度气象条件对枣庄、泰安、临沂、潍坊和淮北 O_3-8h 浓度的贡献率较大(大于 16.0%)，徐州、连云港、青岛和日照的 O_3-8h 浓度受排放源影响较大，贡献率超过 90.0%；第三季度气象条件对 O_3-8h 浓度贡献率较大的城市包括东营(25.1%)、泰安(23.6%)和徐州(23.1%)，而信阳 O_3-8h 浓度受排放源影响最大(85.8%). 上述研究表明，气象条件对该区域不同城市 $PM_{2.5}$ 和 O_3-8h 浓度的影响程度存在较大差异.



a. 第一季度，b. 第二季度，c. 第三季度，d. 第四季度；1. $PM_{2.5}$，2. O_3-8h

图 10 2017 ~ 2021 年苏皖鲁豫交界区域 22 个城市不同季度下象条件和排放源对 $PM_{2.5}$ 和 O_3-8h 浓度的贡献率

Fig. 10 Effects of meteorological conditions and emissions on $PM_{2.5}$ and O_3-8h concentrations in 22 cities of SWLY in different seasons from 2017 to 2021

上述有关苏皖鲁豫交界区域 $PM_{2.5}$ 和 O_3 时空变化特征和影响因素的研究表明，该区域大气污染呈现显著的季节性特征，2020 年和 2021 年区域 $PM_{2.5}$ 和 O_3 浓度空间相关性增强，且区域 $PM_{2.5}$ 和 O_3 浓度主要受到污染物排放影响. 该区域 $PM_{2.5}$ 和 O_3 污染防控可从 3 个方面着手：①针对该域大气污染季节性特征的问题，需开展秋冬季 $PM_{2.5}$ 和夏季 O_3 污染治理，秋冬季重点加强工业源、移动源、扬尘源和生活源一次排放控制[40~43]，推动电力、水泥、钢铁、砖瓦和机动车等重点行业 NO_x 排放治理，夏季重点加强涉 VOCs 重点行业(石油化工、工业涂装、包装印刷以及油品储运销等)深度治理；②针对区域 $PM_{2.5}$ 和 O_3 浓度空间相关性增强的现象，建议加强区域大气污染联防联控，积极推进空气质量预警预报、污染成因研判、污染治理策略制定等区域联防联控一体化技术体系建设；③持续的污染减排仍是该区域 $PM_{2.5}$ 和 O_3 污染改善的重要手段[44]，建议系统谋划区域产业结构升级、能源结构优化、交通结构调整等措

施，除大力消减一次颗粒物排放量以外，重点加强VOCs和NO_x协同控制[45]，有效降低区域二次颗粒物和臭氧浓度生成量，进而有效降低区域$PM_{2.5}$和O_3浓度水平.

3　结论

(1)2017～2021年苏皖鲁豫交界区域$PM_{2.5}$浓度整体呈现逐年下降趋势，$PM_{2.5}$浓度年均降幅为3.5%，$PM_{2.5}$浓度月均值呈现“U型”分布，冬季$PM_{2.5}$浓度仍维持高位.O_3-8h-90%浓度呈现波动下降趋势，O_3-8h浓度月均值变化呈“M型”分布，夏秋季O_3污染程度未有好转.

(2)$PM_{2.5}$-O_3复合污染天数逐年减少，与2017年相比，2021年$PM_{2.5}$-O_3复合污染天数减少了52 d，但$PM_{2.5}$污染仍占主导地位.从空间上看，$PM_{2.5}$和O_3污染区域主要集中在区域中部和北部城市，沿海城市的污染程度较低.从年际空间变化看，区域$PM_{2.5}$和O_3污染程度均有降低，其中中部城市$PM_{2.5}$浓度下降幅度较大，中部和西部城市O_3-8h-90%浓度下降幅度较大.

(3)区域$PM_{2.5}$和O_3-8h-90%浓度具有空间相关性，且在2020年和2021年其空间相关性明显增强.$PM_{2.5}$浓度主要表现为高值-高值聚集或低值-低值聚集现象，且高值-高值聚集有从中部向西部转移的现象.2020年和2021年，O_3-8h-90%浓度表现为高值-高值聚集或低值-低值聚集现象，高值-高值聚集分布在西南部的河南省城市，而低值-低值聚集为山东省临沂.

(4)气象条件和排放源影响分析表明，2017～2021年区域$PM_{2.5}$和O_3-8h浓度主要受到污染物排放影响，表明污染物减排是驱动该区域空气质量改善的主要因素.气象条件对区域$PM_{2.5}$浓度的贡献为−16.1%～2.5%，2021年的气象条件最有利于该区域$PM_{2.5}$污染的改善.气象条件对区域O_3-8h浓度的贡献为−2.3%～2.9%，呈现年际波动变化的特征.气象条件对$PM_{2.5}$浓度的贡献在一、四季度为正值，二、三季度为负值，而对O_3-8h浓度的影响则反之，且对于不同城市$PM_{2.5}$和O_3-8h浓度的影响程度存在较大差异.

参考文献：

[1] 王君悦，刘朝顺.基于WRF-Chem的长三角地区$PM_{2.5}$和O_3污染协同控制研究[J].环境科学学报，2022，**42**(7)：32-42.
Wang J Y，Liu C S. Study on the synergistic control of $PM_{2.5}$ and O_3 pollution in the Yangtze River Delta region based on WRF-Chem model[J]. Acta Scientiae Circumstantiae，2022，**42**(7)：32-42.

[2] Li K，Jacob D J，Liao H，*et al*. Anthropogenic drivers of 2013～2017 trends in summer surface ozone in China[J]. Proceedings of the National Academy of Sciences，2019，**116**(2)：422-427.

[3] 宋小涵，燕丽，刘伟，等.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[J].环境科学，2023，**44**(4)：1841-1851.
Song X H，Yan L，Liu W，*et al*. Spatiotemporal distribution characteristics of co-pollution of $PM_{2.5}$ and ozone oyer BTH with surrounding area from 2015 to 2021[J]. Environmental Science，2023，**44**(4)：1841-1851.

[4] 牛笑笑，钟艳梅，杨璐，等.2015～2020年中国城市$PM_{2.5}$-O_3复合污染时空演变特征[J].环境科学，2023，**44**(4)：1830-1840.
Niu X X，Zhong Y M，Yang L，*et al*. Spatiotemporal evolution characteristics of $PM_{2.5}$-O_3 compound pollution in Chinese cities from 2015 to 2020[J]. Environmental Science，2023，**44**(4)：1830-1840.

[5] 李沈鑫，邹滨，张凤英，等.$PM_{2.5}$和O_3污染协同防控区的遥感精细划定与分析[J].环境科学，2022，**43**(10)：4293-4304.
Li S X，Zou B，Zhang F Y，*et al*. Regionalization and analysis of $PM_{2.5}$ and O_3 synergetic prevention and control areas based on remote sensing data[J]. Environmental Science，2022，**43**(10)：4293-4304.

[6] Wang L，Zhao B X，Zhang Y，*et al*. Correlation between surface $PM_{2.5}$ and O_3 in eastern China during 2015-2019：Spatiotemporal variations and meteorological impacts [J]. Atmospheric Environment，2023，**295**，doi：10.1016/j.atmosenv.2022.119520.

[7] 周志衡，周廷刚，秦宁.中原城市群$PM_{2.5}$浓度驱动因子联动效应及非线性影响[J].环境科学，2022，**43**(12)：5344-5353.
Zhou Z H，Zhou T G，Qin N. Linkage effect and nonlinear impact of $PM_{2.5}$ concentration driving factors in central plains urban agglomeration[J]. Environmental Science，2022，**43**(12)：5344-5353.

[8] Zhao H，Chen K Y，Liu Z，*et al*. Coordinated control of $PM_{2.5}$ and O_3 is urgently needed in China after implementation of the “air pollution prevention and control action plan”[J]. Chemosphere，2021，**270**，doi：10.1016/j.chemosphere.2020.129441.

[9] 秦人洁，张洁琼，王雅倩，等.2019.基于KZ滤波法的河北省$PM_{2.5}$和O_3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 O_3 concentrations in Hebei Province based on KZ filter [J]. Acta Scientiae Circumstantiae，2019，**39**(3)：821-831.

[10] 张淼，丁椿，孟赫，等.山东省环境空气中$PM_{2.5}$与O_3的复合污染特征与时空变化趋势[J].环境科学研究，2023，**36**(2)：246-259.
Zhang M，Ding C，Meng H，*et al*. Characteristics and spatiotemporal variation of $PM_{2.5}$ and O_3 in Shandong province[J]. Research of Environmental Sciences，2023，**36**(2)：246-259.

[11] 肖致美，李源，孔君，等.天津市$PM_{2.5}$-O_3复合污染特征及气象影响分析[J].环境科学，2022，**43**(6)：2928-2936.
Xiao Z M，Li Y，Kong J，*et al*. Characteristics and meteorological factors of $PM_{2.5}$-O_3 compound pollution in Tianjin [J]. Environmental Science，2022，**43**(6)：2928-2936.

[12] 陈兵红，靳全锋，柴红玲，等.浙江省大气$PM_{2.5}$时空分布及相关因子分析[J].环境科学学报，2021，**41**(3)：817-829.
Chen B H，Jin Q F，Chai H L，*et al*. Spatiotemporal distribution and correlation factors of $PM_{2.5}$ concentrations in Zhejiang Province [J]. Acta Scientiae Circumstantiae，2021，**41**(3)：817-829.

[13] 栗泽苑，杨雷峰，华道柱，等.2013-2018年中国近地面臭氧浓度空间分布特征及其与气象因子的关系[J].环境科学研究，2021，**34**(9)：2094-2104.
Li Z Y，Yang L F，Hua D Z，*et al*. Spatial pattern of surface ozone and its relationship with meteorological variables in China during 2013-2018 [J]. Research of Environmental Sciences，2021，**34**(9)：2094-2104.

[14] 南国卫，孙虎，朱一梅.陕西省$PM_{2.5}$时空分布规律及其影响因素[J].环境科学研究，2018，**31**(5)：834-843.
Nan G W，Sun H，Zhu Y M. Spatial and temporal characteristics of $PM_{2.5}$ in Shaanxi Province and its driving factors[J]. Research of Environmental Sciences，2018，**31**(5)：834-843.

[15] 刘贤赵，张国桥，杨文涛，等.长株潭城市群$PM_{2.5}$和O_3浓度时空分布特征及影响因素分析[J].环境科学，2022，**43**(12)：5354-5366.
Liu X Z，Zhang G Q，Yang W T，*et al*. Analysis of spatiotemporal distribution characteristics and influencing factors of $PM_{2.5}$ and O_3 in Changsha-Zhuzhou-Xiangtan urban agglomeration，China [J]. Environmental Science，2022，**43**(12)：5354-5366.

[16] Yan D，Lei Y L，Shi Y K，*et al*. Evolution of the spatiotemporal pattern of $PM_{2.5}$ concentrations in China-a case study from the Beijing-Tianjin-Hebei Region [J]. Atmospheric Environment，

2018, **183**: 225-233.
[17] 曾德珩, 陈春江. 成渝城市群 $PM_{2.5}$ 的时空分布及其影响因素研究[J]. 环境科学研究, 2019, **32**(11): 1834-1843.
Zeng D H, Chen C J. Spatial-temporal characteristics and influence factors of $PM_{2.5}$ concentrations in Chengdu-Chongqing urban agglomeration[J]. Research of Environmental Sciences, 2019, **32**(11): 1834-1843.
[18] 肖致美, 李亚菲, 高璟赟, 等. 2013~2020年天津市 $PM_{2.5}$-O_3 污染变化趋势和影响因素分析[J]. 环境科学, 2023, **44**(8): 4211-4219.
Xiao Z M, Li Y F, Gao J Y, *et al*. Analysis of change trend and influencing factors of $PM_{2.5}$-O_3 pollution in Tianjin from 2013 to 2020[J]. Environmental Sciences, 2023, **44**(8): 4211-4219.
[19] Zhang Q, Zheng Y X, Tong D, *et al*. Drivers of improved $PM_{2.5}$ air quality in China from 2013 to 2017[J]. Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America, 2019, **116**(49): 24463-24469.
[20] Zhai S X, Jacob D J, Wang X, *et al*. Fine particulate matter ($PM_{2.5}$) trends in China, 2013-2018: Separating contributions from anthropogenic emissions and meteorology [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2019, **19**(16): 11031-11041.
[21] Cheng J, Su J P, Cui T, *et al*. Dominant role of emission reduction in $PM_{2.5}$ air quality improvement in Beijing during 2013-2017: a model-based decomposition analysis [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2019, **19**(9): 6125-6146.
[22] 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.
[23] Chen X K, Jiang Z, Shen Y N, *et al*. Chinese regulations are working—Why is surface ozone over industrialized areas still high? Applying lessons from Northeast US air quality evolution [J]. Geophysical Research Letters, 2021, **48**(14), doi: 10.1029/2021GL092816.
[24] Rao S T, Zurbenko I G. Detecting and tracking changes in ozone air quality[J]. Air & Waste, 1994, **44**(9): 1089-1092.
[25] Mousavinezhad S, Choi Y, Pouyaei A, *et al*. A comprehensive investigation of surface ozone pollution in China, 2015-2019: Separating the contributions from meteorology and precursor emissions[J]. Atmospheric Research, 2021, **257**, doi: 10.1016/j.atmosres.2021.105599.
[26] 黎煜满, 李磊, 谢洁岚, 等. 基于KZ滤波法的韶关市 O_3 不同时间尺度变化特征分析研究[J]. 环境科学学报, 2023, **43**(1): 128-139.
Li Y M, Li L, Xie J L, *et al*. Study on variation characteristics of O_3 at different time scales in Shaoguan city based on KZ filter method [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2023, **43**(1): 128-139.
[27] Gao S, Bai Z P, Liang S, *et al*. Simulation of surface ozone over Hebei Province, China using Kolmogorov-Zurbenko and artificial neural network (KZ-ANN) combined model [J]. Atmospheric Environment, 2021, **261**, doi: 10.1016/j.atmosenv.2021.118599.
[28] 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.
[29] 荆琦, 盛立芳, 张玮航, 等. 2018-2021年京津冀及周边地区"2+26"城市 $PM_{2.5}$ 与 O_3 污染特征及气象影响[J]. 环境科学研究, 2023, **36**(5): 875-886.
Jing Q, Sheng L F, Zhang W H, *et al*. Characteristics of $PM_{2.5}$ and O_3 pollution and related meteorological impacts in '2+26' cities of Beijing-Tianjin-Hebei and Its Surrounding Areas from 2018 to 2021 [J]. Research of Environmental Sciences, 2023, **36**(5): 875-886.
[30] 汪旭颖, 严刚, 雷宇, 等. 苏皖鲁豫交界地区大气污染形势和问题分析[J]. 环境保护, 2020, **48**(17): 45-48.
Wang X Y, Yan G, Lei Y, *et al*. The status and problems of air pollution of the border area of Jiangsu, Anhui, Shandong and Henan[J]. Environmental Protection, 2020, **48**(17): 45-48.
[31] 王治非, 刘伟, 付华轩, 等. 济南市和青岛市2014—2021年臭氧浓度变化特征及其气象影响因素[J]. 环境科学研究, 2023, **36**(4): 673-683.
Wang Z F, Liu W, Fu H X, *et al*. Characteristics of ozone and their relationship with meteorological factors from 2014 to 2021 in Ji'nan and Qingdao, China [J]. Research of Environmental Sciences, 2023, **36**(4): 673-683.
[32] 周磊, 武建军, 贾瑞静, 等. 京津冀 $PM_{2.5}$ 时空分布特征及其污染风险因素[J]. 环境科学研究, 2016, **29**(4): 483-493.
Zhou L, Wu J J, Jia R J, *et al*. Investigation of temporal-spatial characteristics and underlying risk factors of $PM_{2.5}$ pollution in Beijing-Tianjin-Hebei Area [J]. Research of Environmental Sciences, 2016, **29**(4): 483-493.
[33] Eskridge R E, Ku J Y, Rao S T, *et al*. Separating different scales of motion in time series of meteorological variables [J]. Bulletin of the American Meteorological Society, 1997, **78**(7): 1473-1483.
[34] 赵域圻, 杨婷, 王自发, 等. 基于KZ滤波的京津冀2013~2018年大气污染治理效果分析[J]. 气候与环境研究, 2020, **25**(5): 499-509.
Zhao Y Q, Yang T, Wang Z F, *et al*. Effectiveness of air pollution control efforts in Beijing-Tianjin-Hebei region during 2013-2018 based on the Kolmogorov-Zurbenko filter [J]. Climatic and Environmental Research, 2020, **25**(5): 499-509.
[35] Fang C S, Qiu J X, Li J, *et al*. Analysis of the meteorological impact on $PM_{2.5}$ pollution in Changchun based on KZ filter and WRF-CMAQ[J]. Atmospheric Environment, 2022, **271**, doi: 10.1016/j.atmosenv.2021.118924.
[36] 孙峰, 姚欢, 刘保献, 等. 2013-2019年京津冀及周边地区 $PM_{2.5}$ 重污染特征[J]. 中国环境监测, 2021, **37**(4): 46-53.
Sun F, Yao H, Liu B X, *et al*. Characteristics of $PM_{2.5}$ heavy pollution in Beijing-Tianjin-Hebei and surrounding areas from 2013 to 2019[J]. Environmental Monitoring in China, 2021, **37**(4): 46-53.
[37] 胡珊瑚, 邢巧, 吴晓晨, 等. COVID-19管控期间海口市 $PM_{2.5}$ 和 O_3 污染特征[J]. 环境科学学报, 2023, **43**(4): 70-78.
Hu S H, Xing Q, Wu X C, *et al*. Characteristics of $PM_{2.5}$ and O_3 during COVID-19 lockdown in Haikou city [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2023, **43**(4): 70-78.
[38] 徐雯丽, 陈强强. 黄河流域城市 $PM_{2.5}$ 时空分异特征及污染物解析[J]. 环境科学研究, 2023, **36**(4): 637-648.
Xu W L, Chen Q Q. Spatial-temporal variation characteristics and Pollutants analysis of urban $PM_{2.5}$ in the Yellow River Basin[J]. Research of Environmental Sciences, 2023, **36**(4): 637-648.
[39] Yamaji K, Li J, Uno I, *et al*. Impact of open crop residual burning on air quality over central eastern China during the Mount Tai experiment 2006 (MTX2006) [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2010, **10**(15): 7353-7368.
[40] Lin G, Fu J Y, Jiang D, *et al*. Spatio-temporal variation of $PM_{2.5}$ concentrations and their relationship with geographic and socioeconomic factors in China [J]. International Journal of Environmental Research and Public Health, 2014, **11**(1): 173-186.
[41] Han L J, Zhou W Q, Li W F. Fine particulate $PM_{2.5}$ dynamics during rapid urbanization in Beijing, 1973-2013 [J]. Scientific Reports, 2016, **6**, doi: 10.1038/srep23604.
[42] Hattori S, Iizuka Y, Alexander B, *et al*. Isotopic evidence for acidity-driven enhancement of sulfate formation after SO_2 emission control[J]. Science Advances, 2021, **7**(19), doi: 10.1126/sciadv.abd4610.
[43] 陈培林, 郭蓉, 王勤耕. "大气十条"实施期间南京市 $PM_{2.5}$ 化学组成与来源的演变特征[J]. 环境科学, 2023, **44**(1): 1-10.
Chen P L, Guo R, Wang Q G. Evolution of $PM_{2.5}$ chemical composition and sources in Nanjing during the implementation of the APPCAP[J]. Environmental Science, 2023, **44**(1): 1-10.
[44] 刘保献, 李倩, 孙瑞雯, 等. 2018~2020年北京市大气 $PM_{2.5}$ 污染特征及改善原因[J]. 环境科学, 2023, **44**(5): 2409-2420.
Liu B X, Li Q, Sun R W, *et al*. Pollution characteristics and factors influencing the reduction in ambient $PM_{2.5}$ in Beijing from 2018 to 2020[J]. Environmental Science, 2023, **44**(5): 2409-2420.
[45] 孙雪松, 张蕊, 王裕, 等. 北京市城区秋季 O_3 污染过程 VOCs 污染特征及反应活性[J]. 环境科学, 2023, **44**(2): 691-698.
Sun X S, Zhang R, Wang Y, *et al*. Ambient VOCs characteristics and reactivity during O_3 pollution in autumn in urban Beijing[J]. Environmental Science, 2023, **44**(2): 691-698.

HUANJING KEXUE

Environmental Science (monthly)

Vol. 45 No. 4

Apr. 15, 2024

CONTENTS

Spatio-temporal Evolution, Dynamic Transition, and Convergence Trend of Urban Carbon Emission Intensity in China ····· YANG Qing-ke, WANG Lei, ZHU Gao-li, *et al.* (1869)

Spatio-temporal Evolution and Trend Prediction of Transport Carbon Emission Efficiency ····· ZHENG Yan, JIANG Xue-mei, XIAO Yu-jie (1879)

Research on Carbon Emission Decoupling Factors Based on STIRPAT Model and LMDI Decomposition ····· ZHANG Jiang-yan (1888)

Carbon Peak Pathways of Industrial Parks Based on the LEAP Model: A Case Study of a National Development Zone in Nanjing ····· LI Hui-peng, LI Li, YIN Yin, *et al.* (1898)

Accounting and Analysis of Carbon Emissions in Universities: A Case Study of Beijing A University ····· CAO Rui, FENG Li, ZHANG Li-qiu (1907)

Synergy Effects and Driving Factors of Pollution and Carbon Emission Reduction in Manufacturing Industry in Beijing ····· YU Shan, HAN Yu-hua, MU Jie, *et al.* (1917)

Carbon Emissions Trading Prices and Total Factor Productivity: Evidence from China ····· WU Xue-ping (1926)

Analysis of Spatio-temporal Distribution Characteristics and Influencing Factors of $PM_{2.5}$ and PM_{10} in Chinese Cities ····· LI Jiang-su, DUAN Liang-rong, ZHANG Tian-jiao (1938)

Spatial-temporal Characteristics and Influencing Factors of $PM_{2.5}$ and Ozone in the Border Area of Jiangsu, Anhui, Shangdong, and Henan from 2017 to 2021 ····· CHEN Wei, XU Xue-zhe, LIU Wen-qing (1950)

Analysis of the Characteristics and Causes of $PM_{2.5}$ and O_3 Pollution in Xi'an During the Epidemic Lockdown Period ····· YUAN Xiao-hong, ZHANG Qiang, LI Qi, *et al.* (1963)

$PM_{2.5}$ Chemical Composition and Spatial Variability in the Five Cities of Southern Jiangsu During Fall and Winter ····· FENG Wei, DING Feng, SHANG Yue, *et al.* (1975)

Source Apportionment of Fine Particles in Xianning, Hubei ····· LUO Yi, ZHU Kuan-guang, CHEN Pu-long, *et al.* (1983)

Spillover Benefits of Ammonia Emission Reduction in Xingtai Area to the Improvement of Atmospheric $PM_{2.5}$ Concentration in the Beijing-Tianjin-Hebei Region ····· BIAN Ze-jun, WEN Chao-yu, LANG Jian-lei, *et al.* (1994)

Characteristics, Risk Assessment, and Sources of the Polluted Metallic Elements in $PM_{2.5}$ During Winter in Liaocheng City ····· ZHANG Jing-qiao, ZHU Yao, CAO Ting, *et al.* (2003)

Composition Characteristics of Typical VOCs Sources in the Highland City of Lhasa ····· GUO Shu-zheng, YE Chun-xiang, LIN Wei-li, *et al.* (2011)

VOCs Pollution Characteristics and Health Risk Assessment in Typical Industrial Parks in Beijing: Environmental Impact of High and New Technology Industries ····· WANG Jie, YAO Zhen, WANG Min-yan, *et al.* (2019)

Analysis of a Typical Ozone Pollution Process in the Chengdu Plain Under the Influence of High Temperature Extremes ····· LEI Li-juan, ZHANG Yi, LUO Yi-na, *et al.* (2028)

Presence, Behavior, and Risk of Antiviral Drugs in the Aqueous Environment ····· GE Lin-ke, LI Xuan-yan, CAO Sheng-kai, *et al.* (2039)

Spatio-temporal Variation and Probability Health Risk of Heavy Metals in Surface Water of Xiaolangdi Reservoir in the Yellow River ····· WANG Liang, DENG Xue-jiao, WANG Xiao-lei, *et al.* (2054)

Hydrochemical Characteristics and Control Factors of Strontium Enrichment of the Duoqu River Basin in Eastern Xizang ····· LI Jing-jie, LIAN Sheng, WANG Ming-guo, *et al.* (2067)

Characteristics of Stable Isotopes in Precipitation and Its Moisture Sources in the Inland Regions of Northwest China ····· ZHANG Yan-yan, XIN Cun-lin, GUO Xiao-yan, *et al.* (2080)

Recharge Source and Evolution Process of Karst Groundwater in Tai'an Urban Area Based on Hydrochemistry and Hydrogen and Oxygen Isotopes ····· MENG Ling-hua (2096)

Hydrochemical Characteristics and Influencing Factors of Surface Water and Groundwater in the Mountainous Area of Danjiang River Basin ····· ZHANG Zi-yan, FU Yong-peng, WANG Ning-tao, *et al.* (2107)

Hydrochemical Characteristics and Control Factors of Groundwater in Yuanyangchi Irrigation Area, Jinta Basin ····· WANG Xiao-yan, HAN Shuang-bao, ZHANG Meng-nan, *et al.* (2118)

Hydrochemical Characteristics and Health Risk Assessment of Shallow Groundwater in the Plain Zone of Deyang City ····· LIU Nan, CHEN Meng, GAO Dong-dong, *et al.* (2129)

Spatial and Temporal Distribution of Microplastics in the Sediments of Typical Urban River Network ····· XU Wan-lu, FAN Yi-fan, QIAN Xin (2142)

Construction of Nitrogen Emission Inventory at Sub-basin Scale and Analysis of Key Sources in Fuxian Lake Watershed ····· WANG Yan-jie, LIANG Qi-bin, WANG Yan-xia, *et al.* (2150)

Preparation of Lanthanum Crosslinked Calcium Peroxide/Sepiolite/Sodium Alginate Composite Hydrogels and Their Elimination Performance for Endogenous Phosphorus ····· QU Si-tong, SHAN Su-jie, WANG Chong-ming, *et al.* (2160)

Formation Mechanism, Structural Characteristics of Ultrafine Mineral Particles, and Their Environmental Effects ····· LIU Zhen-hai, ZHANG Zhan-hua, YUAN Yu-xin, *et al.* (2171)

Research Progress in Application of Biochar-immobilized Bacteria Composites in Environmental Remediation ····· SUN Shu-yu, HUANG Meng-xin, KONG Qiang, *et al.* (2185)

Effect of Microplastics on Ammonia Nitrogen Adsorption by Zeolite in Water and Its Mechanism ····· LIAN Jian-jun, XIE Shi-ting, WU Pei, *et al.* (2195)

Mechanism of Ultraviolet Aging Effect on the Adsorption of Ciprofloxacin by Nano-biochar ····· MA Feng-feng, XUE Zhi-yi, ZHAO Bao-wei (2203)

Response of Phytoplankton Communities and Environmental Factors Under the Influence of Land Use in the Wuding River Basin ····· GUO Shan-song, HU En, DING Yi-tong, *et al.* (2211)

Bacterial Community Diversity and Functional Gene Abundance of Culturable Bacteria in the Wetland of Poyang Lake ····· YU Jiang, WANG Chun, LONG Yong, *et al.* (2223)

Bacterial Community Structure and Its Relationship with Heavy Metals in Sediments of Diannong River ····· LIU Shuang-yu, MENG Jun-jie, QIU Xiao-cong, *et al.* (2233)

Impacts of Treated Wastewater on Bacterial and Fungal Microbial Communities in Receiving Rivers ····· GUO You-shun, YU Zhong, HAO Wen-bin, *et al.* (2246)

Metagenomics Reveals the Characteristics and Functions of Bacterial Community in the Advanced Wastewater Treatment Process ····· HU Jian-shuang, WANG Yan, ZHOU Zheng, *et al.* (2259)

Spatio-temporal Characteristics of Habitat Quality and Natural-human Driven Mechanism in Dabie Mountain Area ····· ZHENG Ya-ping, ZHANG Jun-hua, TIAN Hui-wen, *et al.* (2268)

Hyperspectral Inversion of Soil Organic Matter Content Based on Continuous Wavelet Transform, SHAP, and XGBoost ····· YE Miao, ZHU Lin, LIU Xu-dong, *et al.* (2280)

Effects of Straw Retention, Film Mulching, and Nitrogen Input on Soil Quality in Dryland Wheat Field ····· YE Zi-zhuang, WANG Song-yan, LU Xiao, *et al.* (2292)

Effects of Long-term Application of Organic Fertilizer on the Occurrence and Migration Characteristics of Soil Microplastics ····· WANG Chang-yuan, MA Xiao-chi, GUO De-jie, *et al.* (2304)

Effect of Different Soil Salinities on N_2O Emission: A Meta-analysis ····· HUANG Yi-hua, SHE Dong-li, SHI Zhen-qi, *et al.* (2313)

Assessment and Prediction of Carbon Storage Based on Land Use/Land Cover Dynamics in the Guangdong-Hong Kong-Macao Greater Bay Area ····· ZHENG Hui-ling, ZHENG Hui-feng (2321)

Simulation of Temporal and Spatial Changes in Ecosystem Carbon Storage in Funiu Mountains Based on InVEST Model ····· ZHANG Zhe, SHI Zhen-qin, ZHU Wen-bo, *et al.* (2332)

Relationship Between Microbial Nutrient Limitation and Soil Organic Carbon Fraction During Shelterbelts Construction ····· XU Feng-jing, HUANG Yi-mei, HUANG Qian, *et al.* (2342)

Characteristics and Driving Forces of Organic Carbon Mineralization in Brown Soil with Long-term Straw Returning ····· ZHAO Yu-hang, YIN Hao-kai, HU Xue-chun, *et al.* (2353)

Effects of Winter Green Manure Mulching on Soil Aggregates, Organic Carbon, and AMF Diversity ····· LU Ze-rang, CHEN Jia-yu, LI Zhi-xian, *et al.* (2363)

Spatial and Temporal Distribution of Nitrogen in the Liaohe River Basin and Its Responses to Land Use and Rainfall ····· ZHOU Bo, LI Xiao-guang, TONG Si-chen, *et al.* (2373)

Nitrous Oxide Emissions from Ponds in Typical Agricultural Catchment with Intensive Agricultural Activity ····· ZHANG Xin-yue, XIAO Qi-tao, XIE Hui, *et al.* (2385)

Effects of Biochar Combined with Different Types of Nitrogen Fertilizers on Denitrification Bacteria Community in Vegetable Soil ····· LIU Xiao-wan, LIU Xing-ren, GAO Shang-jie, *et al.* (2394)

Investigation of Soil Microbial Characteristics During Stand Development in *Pinus tabuliformis* Forest in Taiyue Mountain ····· MA Yi-shu, CAO Ya-xin, NIU Min, *et al.* (2406)

Simulation of Heavy Metal Content in Soil Based on Sparse Sample Sites ····· ZHANG Jia-qi, PAN Yu-chun, GAO Shi-chen, *et al.* (2417)

Identification Priority Source of Heavy Metal Pollution in Greenspace Soils Based on Source-specific Ecological and Human Health Risk Analysis in the Yellow River Custom Tourist Line of Lanzhou ····· LI Jun, LI Xu, LI Kai-ming, *et al.* (2428)

Heavy Metal Accumulation and Assessment of Potential Ecological Risk Caused by Soil pH Changes in Different Types of Purple Soils in Southwest China ····· ZHANG Hai-lin, ZHANG Yu, WANG Ding, *et al.* (2440)

Assessment and Source Analysis of Heavy Metal Pollution in Arable Land Around an Iron Ore Mining Area in Chongqing ····· LIAO Ze-yuan, LI Jie-qin, SHEN Zhi-jie, *et al.* (2450)

Health Risk Assessment of Heavy Metals in Farmland Soils and Crops Around Metal Mines ····· WEI Hong-bin, LUO Ming, XIANG Lei, *et al.* (2461)

Effect of Red Mud-based Nano Zero-valent Iron on Remediation of Polymetallic Contaminated Soil ····· LIU Long-yu, YANG Shi-li, ZHAO Huang-shi-yu, *et al.* (2474)

Effects of Zinc Application on Cadmium Accumulation in Alkaline Soil-Wheat Seedling Systems ····· ZHANG Yao, WANG Tian-qi, NIU Shuo, *et al.* (2480)