2015~2020年我国主要城市PM_{2.5}和O₃污染时空变化趋势和影响因素

张运江^{1,2}, 雷若媛¹, 崔世杰¹, 王红丽², 陈敏东¹, 盖鑫磊^{1*}

1. 南京信息工程大学环境科学与工程学院, 江苏省大气环境监测与污染控制高技术研究重点实验室, 大气环境与装备技术协同创新中心, 南京 210044;

2. 上海市环境科学研究院, 国家环境保护城市大气复合污染成因与防治重点实验室, 上海 200233

* 联系人, E-mail: caxinra@163.com

2021-07-30 收稿, 2021-10-28 修回, 2021-10-29 接受, 2021-12-01 网络版发表

江苏省基础研究计划(BK20210663)、国家重点研发计划(2018YFC0213802)、国家自然科学基金创新研究群体项目(42021004)、国家环境保护城市大气复合污染成因与防治重点实验室开放基金(CX2020080579)和南京信息工程大学人才启动经费(2021r048)资助

摘要 近些年,我国已采取了系列严格的减排措施,旨在治理大气细颗粒物(PM_{2.5})和臭氧(O₃)污染.本文基于国家空气环境监测网络地面观测数据,侧重分析了我国主要城市PM_{2.5}和O₃时空变化趋势以及影响因素.2015~2020年PM_{2.5}整体呈逐步下降趋势,而O₃在2015~2019年呈整体上升趋势,但在2020年部分地区有下降趋势.结合气象要素数据,利用KZ(Kolmogorov-Zurbenko)滤波耦合逐步多元线性回归,分析了排放与气象条件影响因素对典型城市PM_{2.5}和O₃长期分量趋势的贡献,其中排放对二者的贡献分别约为63%~93%和40%~80%.冬季PM_{2.5}/CO与NO₂/SO₂由负转为正比例关系,表明在当前的减排情景下,氮氧化物对该季节PM_{2.5}主要二次组分形成的贡献潜势可能在增加.O₃与PM_{2.5}相关性系数呈现明显的季节性和空间分布特征,例如夏季普遍高于其他季节,东南部和中东部明显高于西北部地区.此外,二者间的相关性系数与拟合斜率呈正比例关系,其比值在夏季整体呈逐年增加的趋势.这些结果表明,受减排的影响,在PM_{2.5}-O₃相互作用机制中PM_{2.5}对O₃生成的抑制作用可能在呈逐年减弱的趋势.在夏季大气光化学过程较强时段,典型城市O₃与NO₂的拟合曲线在2020年呈现明显的左下偏移,可能反映出本年减排对O₃下降有不可忽略的作用.

关键词 细颗粒物, 臭氧, 时空趋势, 减排, 协同治理

作为世界最大的发展中国家之一,我国随着城市化和工业化快速发展,已逐渐形成超大城市群,如京津冀、长江三角洲(以下简称长三角)、珠江三角洲(以下简称珠三角)等.经济发展取得巨大进步的同时,我国空气污染问题也日益突出,其污染性质变得更复杂,由过去单一煤烟型污染转变为多污染源排放和多种污染物共存且相互影响的复合型大气污染^[1~4].在过去十几年里,以细颗粒物(PM_{2.5})诱导的极端大气污染事件在我

国中东部地区频繁发生,引起了国内外社会的广泛关注^[5~7].PM_{2.5}是指空气动力学当量直径小于或等于2.5 μm,是我国大气中最重要的污染物之一^[8],对人类健康产生着严重的威胁^[9,10].PM_{2.5}的来源和形成过程十分复杂,可来自污染源直接排放(例如黑碳、有机颗粒物、沙尘等),也可由其气态前体物在大气中经二次化学反应而形成(例如硫酸盐、硝酸盐、铵盐、二次有机气溶胶等)^[8].这些典型的二次粒子前体物分别为二

引用格式: 张运江, 雷若媛, 崔世杰, 等. 2015~2020年我国主要城市PM_{2.5}和O₃污染时空变化趋势和影响因素. 科学通报, 2022, 67: 2029~2042

Zhang Y J, Lei R Y, Cui S J, et al. Spatiotemporal trends and impact factors of PM_{2.5} and O₃ pollution in major cities in China during 2015~2020 (in Chinese). Chin Sci Bull, 2022, 67: 2029~2042, doi: 10.1360/TB-2021-0767

氧化硫(SO₂)、氮氧化物(NO_x)、氨气(NH₃)、挥发性有机物(VOCs)^[8]。

近年,我国实施了系列严格的大气污染防治措施,旨在提高空气质量和改善民生。例如2013年我国政府出台了《大气污染防治行动计划》。该项大气污染行动计划明确提出了重点防控任务,其中包括严格的减排措施,明确2013~2017年大气污染防治的计划。2018年我国政府又出台了《打赢蓝天保卫战三年行动计划》,目标经过3年努力,大幅减少主要大气污染物排放总量,进一步改善空气质量,其中重点管控了PM_{2.5}气态前体物SO₂、NO_x、VOCs。Zheng等人^[11]基于自主开发的中国多尺度排放清单模型(MEIC)定量评估了2013~2017年间我国人为排放源的变化趋势,发现在2013~2017年间我国SO₂排放量减少了1640万吨,NO_x排放量减少了800万吨,一次颗粒物排放量减少了350万吨,而VOCs的排放量却增加了11%。Zhang等人^[12]结合了MEIC模型和大气化学传输模式并耦合了大气污染暴露与响应模型,全面系统地评估了我国在2013~2017年间减排措施对空气污染改善的成效,发现在2013~2017年间我国居民的PM_{2.5}暴露水平下降了32%。大气中PM_{2.5}的浓度受到诸多因素影响,比如气象条件(对污染物稀释、扩散和积聚等影响)^[13]和污染物排放量(包括一次颗粒物和二次颗粒物气态前体物)^[12]。近年,很多学者基于大气化学传输模式或数值分析方法探讨了气象条件和排放对我国大气PM_{2.5}污染的贡献,并发现污染源排放是驱动PM_{2.5}长期趋势变化的因子,其平均贡献可高达80%~90%^[12,14~16]。

虽然我国PM_{2.5}污染治理已经取得了显著成效,但是新的大气污染问题逐步凸显,臭氧(O₃)污染正逐渐变为我国所面临的严重空气污染问题之一^[17~19]。对流层大气中O₃主要来源于大气光化学过程,其前体物为NO_x和VOCs^[20]。近年,我国科学家基于全国环境空气质量观测网络的观测数据发现,我国东部大部分地区(如京津冀和长三角),2013~2017年夏季O₃浓度显著增加的趋势主要归因于近年的人为减排^[17,19,21,22]。进一步研究发现,PM_{2.5}通过对HO₂自由基和NO_x的非均相吸收是造成O₃升高趋势的主要机制,即高浓度的PM_{2.5}抑制了O₃的二次生成^[18]。以上研究结果表明,解决我国当前大气污染问题需要针对PM_{2.5}和O₃进行协同管控。

虽然有些研究已经报道了PM_{2.5}和O₃的年际变化趋势并量化了其驱动因子,包括气象条件、人为排放、PM_{2.5}-O₃相互作用机制等,但对最近几年PM_{2.5}-O₃变化

趋势及其影响因素的认识依然有限。本文集中研究了PM_{2.5}和O₃的年际变化趋势并延展至2020年,理解气象条件和人为排放因素对其趋势变化的影响,研究二者间的相互作用机制,探究了PM_{2.5}和O₃对人为减排的响应特征。本研究对进一步理解近年我国减排措施对改善空气质量的成效有重要的科学意义,尤其在针对最新的2018~2020年的减排措施背景条件下显得尤为重要。

1 数据来源与分析

1.1 数据来源

本文所采用的大气污染物(包括PM_{2.5}、PM₁₀、O₃、NO₂、SO₂、CO)数据来源于国家空气环境监测网络,覆盖360余个城市及地区(图1),数据时间分辨率为1 h。本文重点分析了我国东部城市区域,包括京津冀、长三角、珠三角、湖北地区等。其中京津冀地区包括了约10个典型城市,长三角地区包括约30个城市,珠三角地区包括10余个城市,湖北地区包括10余个城市。典型城市(包括北京、南京、深圳、武汉)近地面小时分辨率气象要素数据(包括气温、相对湿度、风速、大气压、降水量)来源于美国国家气候数据中心。

1.2 数据分析

为了评估排放与气象条件对PM_{2.5}和O₃趋势的影响,本文运用了KZ(Kolmogorov-Zurbenko)滤波耦合了逐步多元线性回归模型,定量分析了排放与气象条件对PM_{2.5}和O₃趋势变化的贡献。KZ滤波是一种低通频滤波器,可以消除高频噪声并分离出低频信号^[23],已被广泛应用到大气环境领域中研究污染物的趋势变化^[24~27]。假设污染物观测浓度时间序列为 $X(t)$,则该原始序列可被KZ滤波分解为

$$X(t) = X_{ST}(t) + X_{SN}(t) + X_{LT}(t), \quad (1)$$

其中, t 代表时间, $X_{ST}(t)$ 是短期分量,主要受到天气系统和短期污染物排放波动的影响; $X_{SN}(t)$ 是季节分量,主要受到季节性循环的影响; $X_{LT}(t)$ 是长期分量,主要受到污染物排放长期趋势和气象条件的影响。KZ滤波器以 m 个数据点为滑动平均窗口长度进行 p 次迭代运算,其计算公式如下:

$$Y_i = \frac{1}{m} \sum_{j=-k}^k X_{i+j}, \quad (2)$$

审图号: GS(2021)7611号

图 1 (网络版彩色)2015~2020年我国PM_{2.5}和MDA8-O₃年平均浓度($\mu\text{g m}^{-3}$)变化

Figure 1 (Color online) Variation of annual average mass concentration ($\mu\text{g m}^{-3}$) of PM_{2.5} and MDA8-O₃ over China during 2015–2020

其中, Y_i 为经过第 i 次滤波后的时间序列, k 为对 X_i 进行滤波时两端滑动窗口的长度($k=(m-1)/2$). 每次滤波计算的结果作为下一次滤波计算的输入项, 进行 p 次迭代计算后, 得到最终的滤波结果 $KZ_{(m,p)}$. 参数 m 和 p 可控制不同时间尺度过程的滤波, $KZ_{(m,p)}$ 将波长小于 N 的滤波宽度去除:

$$m \times \sqrt{p} \leq N. \quad (3)$$

在实践中, $KZ_{(365,3)}$ 可将原始序列中周期小于632 d的长期波动滤除, 获得长期分量; $KZ_{(15,5)}$ 可将原始序列中周期小于33 d的短期波动滤除, 获得基线时间序列

($X_{BL}(t)$)^[25–28]. 综合这两种滤波计算, 3种时间序列分量最终可被计算:

$$X_{BL}(t) = X_{LT}(t) + X_{SN}(t) = KZ_{(15,5)}[X(t)], \quad (4)$$

$$X_{LT}(t) = KZ_{(365,3)}[X(t)], \quad (5)$$

$$X_{SN}(t) = X_{BL}(t) - X_{LT}(t), \quad (6)$$

$$X_{ST}(t) = X(t) - X_{BL}(t). \quad (7)$$

因为长期分量趋势变化中包括了排放(X_{LT}^{EMI})和气象条件(X_{LT}^{MET})主导的趋势, 所以仍需进一步剥离二者的趋势变化. 通过对短期分量和基线分量时间序列分

别建立以气象要素为自变量的多元线性回归模型可以有效地剥离排放和气象条件对趋势变化的影响^[28]. 本研究利用逐步多元线性回归分析方法对日均值(在O₃分析中应用日温度最大值)数据进行建模, 气象要素包括气温、相对湿度、气压、风速、降雨量, 回归模型如下:

$$Xt = \beta_0 + \sum_{i=1}^5 \beta_i MET_i(t) + \varepsilon(t), \quad (8)$$

其中, β_0 和 β_i 为回归系数; MET_i 代表第*i*个气象因子, 其趋势变化受控于气象条件的影响; $\varepsilon(t)$ 为模型残差项, 其趋势变化受控于人为排放的影响. 在计算过程中, 首先对基线分量做多元线性回归分析, 获取基线变量的残差项; 然后对短期分量进行回归分析, 获取短期分量回归的残差项, 最终受人为排放影响的总残差为基线变量残差和短期分量残差之和. 利用KZ_(365,3)对总残差进行滤波分析可获得受人为排放影响的趋势 $X_{LT}^{EMI}(t)$, 计算 $X_{LT}(t)$ 与 $X_{LT}^{EMI}(t)$ 间的差值可获得受气象条件影响的趋势 $X_{LT}^{MET}(t)$. 对比计算2015~2020年 X_{LT}^{EMI} 和 X_{LT}^{MET} 的趋势变化量, 可获得排放和气象条件对污染物长期趋势变化相对贡献的估算值. 表1给出了逐步多元线性回

归分析基线分量的结果示例, 展示了回归模型方程中对应的回归系数, 以及观测值与预测值之间的拟合优度. 本研究利用Mann-Kendall趋势检验法对有关变量的趋势变化进行显著性检验与分析.

2 结果与讨论

2.1 2015~2020年PM_{2.5}和O₃的时空变化

图1给出了2015~2020年我国大气PM_{2.5}和臭氧日最大8 h平均(MDA8-O₃)的年平均质量浓度的空间分布. 如图1(a)所示, 2015~2020年全国PM_{2.5}整体年平均浓度呈逐年下降趋势. 其中, 我国东部典型城市群地区, 包括京津冀、长三角、珠三角、湖北地区, 2020年PM_{2.5}相比2015年下降率分别约为44%、39%、36%、27%. PM_{2.5}气态前体物NO₂和SO₂也呈逐年下降的趋势, 在京津冀、长三角、珠三角、湖北地区NO₂的下降率分别约为25%、19%、18%、8%, SO₂的下降率分别约为72%、60%、48%、49%. 这些结果可间接表明颗粒物气态前体物的减少对降低空气PM_{2.5}有一定的作用^[29,30], 尤其是大幅度降低SO₂的情景下^[31~33]. 实际上, 我国一次颗粒物(包括一次有机碳和黑碳)及其重要前体物(包括SO₂和NO_x)的人为排放量也呈逐年递减的趋

表1 基于逐步多元线性回归分析基线分量所构建的污染物与各气象因子的回归系数及拟合优度(R^2)^{a)}

Table 1 Regression coefficients and goodness of fit (R^2) between baseline component of air pollutants and meteorological parameters based on stepwise multiple linear regression analysis

污染物	回归系数拟合优度	北京	南京	深圳	武汉
PM _{2.5}	β_0	3230.51*	2005.12*	268.25*	822.68*
	β_T	3.84*	-3.40*	-0.97*	-2.92*
	β_{RH}	1.03*	**	-0.68*	-0.34*
	β_{WS}	-7.41*	-6.93*	-4.58*	-11.75*
	β_{Rain}	-0.34*	-0.07*		
	β_P	-3.11*	-1.86*	-0.15*	-0.66*
	R^2	0.35	0.72	0.63	0.68
MDA8-O ₃	β_0	5949.92*	2839.73*	211.10*	189.80*
	β_T		1.31*	2.58*	3.04*
	β_{RH}	-0.73*	-1.84*	-1.99*	-1.80*
	β_{WS}	-2.33*	8.99*	-16.10*	-10.29*
	β_{Rain}		-0.04*	-0.06*	0.11*
	β_P	-5.71*	-2.60*		
	R^2	0.93	0.85	0.65	0.89

a) 回归系数对应的气象因子包括温度 β_T 、相对湿度 β_{RH} 、风速 β_{WS} 、降雨 β_{Rain} 、大气压 β_P , β_0 为常数项. *表示相关性在95%或其之上的显著性置信区间($P < 0.05$); **表示回归模型中未涉及该气象因子

势^[11,34],这与空气中观测的PM_{2.5}浓度变化趋势一致(图1)。近年,我国学者研究发现,人为减排是主导空气质量变化的关键因素^[14,35]。这些结果表明了我国近年的区域人为减排对进一步持续降低空气中PM_{2.5}浓度有重要的作用。相对高浓度的PM_{2.5}主要集中在我国华北平原地区,例如京津冀。这与人为排放强度的时空分布呈现出一致性^[36,37],进一步表明区域人为减排对降低城市大气PM_{2.5}浓度有直接的关联,我国近年严格的人为减排措施的实施对持续改善空气质量有重要作用。然而,对于我国西部极少数城市和地区(新疆等地区)大气中PM_{2.5}质量浓度并未呈现非常显著的下降趋势,原因可能是,这些城市中大气PM_{2.5}同时也受到非人为排放源(例如沙尘)的影响^[38]。

如图1(b)所示,O₃呈现出与PM_{2.5}不一致的变化趋势,尤其是在2015~2019年,MDA8-O₃整体呈现出明显的上升趋势且高浓度分布面积逐渐增大,其中相对高浓度主要分布在华北平原、长三角等地区。相对2015年,2018年MDA8-O₃在京津冀、长三角、珠三角、湖北地区相对分别增加了约19%、11%、19%、8%。前期基于观测和模型的研究发现,由于减排措施的实施,我国大气PM_{2.5}浓度显著下降是导致大气O₃污染加重的重要原因之一^[17,21]。图2展示出2015~2020年间不同季节MDA8-O₃与PM_{2.5}的相关性以及对应的相关性系数与拟合斜率的关系。二者的相关性呈明显的地区性和季节性特点(图2(a))。在秋冬季,二者的相关性在我国北部地区(如华北平原)整体呈负相关,而在我国南部地区整体呈正相关。这可能主要与PM_{2.5}中二次化学成分的生成机制有关。在我国北部城市,例如北京,很多研究已发现液相化学过程是贡献冬季PM_{2.5}的重要途径^[7,39~42],即可导致PM_{2.5}与MDA8-O₃呈负相关或削弱的相关性。此外,华北地区人为源(如燃煤)^[43,44]与自然源(如沙尘)^[45]的一次排放对PM_{2.5}重要的贡献也可导致MDA8-O₃与PM_{2.5}间较低的相关性。PM_{2.5}与MDA8-O₃的正相关可以表明我国南部地区(例如珠三角)大气光化学过程是PM_{2.5}重要的生成途径。这一现象同样可以被二者在夏季的相关性分布特征所验证。在夏季,我国东南部和中东部地区MDA8-O₃与PM_{2.5}的相关性均呈正相关且相关性系数相比其他季节和地区较高,可能表明夏季二次光化学过程对这些地区大气PM_{2.5}的生成有较重要的作用。在我国西北部城市,MDA8-O₃和PM_{2.5}在每个季节基本呈负相关或较低的正相关,这与沙尘气溶胶光学厚度水平^[46]和沙尘排放^[38,45]的地理分

布高度一致。由此可推断,造成这一现象的原因可能是这些地区受沙尘的重要影响,如沙尘天气中PM_{2.5}一次组分(即沙尘气溶胶)贡献较高^[5,45]。Li等人^[18]发现大气中高浓度PM_{2.5}可以抑制O₃的生成,其二者间的比值较低且相关性也较低,这是因为大气中高浓度的PM_{2.5}可以吸收或消耗大量的大气氧化剂如HO₂,进而抑制O₃的形成。基于PM_{2.5}-O₃的相互作用机制,MDA8h-O₃和PM_{2.5}之间的拟合斜率与相关性系数可间接表征PM_{2.5}对抑制O₃生成的影响。在此基础上,本研究尝试建立了O₃-PM_{2.5}相关性的统计分析方法,探究PM_{2.5}和O₃协同影响的年际变化趋势(图2(b))。如图2(b)所示,每年不同季节、不同城市的MDA8h-O₃和PM_{2.5}之间的拟合斜率与相关性系数整体呈正比例关系。根据二者相关性的空间分布结果(图2(a)),夏季PM_{2.5}抑制O₃生成的影响在西北部 and 北部地区(包括京津冀)可能高于东南部。此外,其拟合斜率与相关性系数间的比值也呈逐年升高的趋势(图2(b)),说明PM_{2.5}对O₃生成的抑制作用可能呈逐年降低的趋势;相反,O₃浓度的升高,大气氧化性随之增强,可促进PM_{2.5}的生成^[20,47,48]并提高PM_{2.5}中二次组分的占比。因为本文缺乏PM_{2.5}化学组分数据,因此无法进一步定量评估PM_{2.5}中二次组分占比的年际变化趋势。

如图1(b)所示,2020年MDA8-O₃整体呈下降的趋势。京津冀和珠三角地区O₃整体下降趋势相对较明显,相对2018年,2020年MDA8-O₃分别下降了约5%和7%。然而在长三角地区,多数城市O₃污染问题依然严重,主要分布在长三角中北部城市。臭氧主要来源于由NO_x和VOCs前体物通过光化学过程所形成的二次污染物。在2018~2020年的减排措施下,这两种O₃前体物的人为排放在我国已呈显著的下降,尤其是在京津冀、长三角、珠三角、湖北地区^[34]。理论上,这些减排对O₃浓度变化有重要的影响。

2.2 人为减排和气象条件对PM_{2.5}变化趋势的影响

图3给出了我国东部典型城市(包括北京、南京、深圳、武汉)2015~2020年PM_{2.5}原始序列、短期分量、季节分量、长期分量以及排放影响和气象影响的趋势。如图3所示,4个城市中PM_{2.5}浓度的原始序列均呈显著性($P < 0.05$)下降趋势,其中下降率依次为北京($-4.94 \mu\text{g m}^{-3} \text{a}^{-1}$)、武汉($-4.72 \mu\text{g m}^{-3} \text{a}^{-1}$)、南京($-3.47 \mu\text{g m}^{-3} \text{a}^{-1}$)、深圳($-1.14 \mu\text{g m}^{-3} \text{a}^{-1}$)。每个城市的短期分量呈现明显的波动,特别在冬季振幅最大。因

图2 (网络版彩色)2015~2020年不同季节MDA8-O₃与PM_{2.5}日平均值的相关性。(a) 每个城市相关性系数 r 的中值;(b) 每年每个季节每个城市的相关性分析结果中拟合斜率与相关性系数 r 的关系

Figure 2 (Color online) Correlation of MDA8-O₃ and daily mean PM_{2.5} in different seasons during 2015–2020. (a) The median value of the correlation coefficient r for individual cities; (b) correlation between the curve fitting slopes and the correlation coefficient r in different years, seasons, and cities

为污染源在短周期内排放变化差异不大, 导致短期分量振幅变化的主要原因是短期的天气变化^[25,28]。值得注意的是, 在北京、南京、武汉地区, 其振幅波动变化尤为突出, 表明短期天气变化对这些地区的PM_{2.5}污染有重要影响。每个城市的季节分量也都呈现明显的季节性循环规律, 冬季至夏季呈下降趋势, 夏季至冬季呈上升趋势, 表明冬季不利的气象条件是加重PM_{2.5}污染的重要因素。特别地, 北京地区冬季有供暖季, 供暖燃

煤排放会加重该地区冬季PM_{2.5}污染水平^[44,49]。此外, 在2015和2016年北京的冬季, PM_{2.5}浓度明显高于随后几年, 这与地面观测到冬季燃煤排放气溶胶的变化趋势一致^[50]。这些结果表明, 北京冬季供暖排放对PM_{2.5}季节分量有重要影响, 但受减排的影响其贡献权重可能降低。每个城市的长期分量均呈显著下降的趋势($P < 0.05$), 但下降率有差异, 依次为: 北京($-7.81 \mu\text{g m}^{-3} \text{ a}^{-1}$)、武汉($-5.58 \mu\text{g m}^{-3} \text{ a}^{-1}$)、南京

图3 (网络版彩色)2015~2020年典型城市PM_{2.5}浓度时间序列趋势分析,包括浓度原始序列、短期分量、季节分量、长期分量以及排放影响、气象影响的趋势

Figure 3 (Color online) Temporal trends in the PM_{2.5} mass concentration in typical cities during 2015–2020, including concentrations of original time series, short-term component, seasonal component, long-term component and the emission and meteorological impacts, respectively

($-4.73 \mu\text{g m}^{-3} \text{a}^{-1}$)、深圳($-1.41 \mu\text{g m}^{-3} \text{a}^{-1}$)。进一步分离排放和气象条件对长期分量的影响,发现每个城市中受污染源排放影响和受气象条件影响的长期分量趋势也都呈显著下降趋势($P < 0.05$),表明近年我国减排和气象条件的长期变化趋势总体均有利于长期PM_{2.5}浓度的降低,也是解释其原始序列显著下降的主要原因。进一步区分排放和气象条件对长期分量的贡献发现,受污染源排放的长期分量占主导地位,4个城市间的贡献约为:82%(北京)、90%(南京)、63%(深圳)、93%(武汉)。这些结果证明了近年我国人为减排是导致这些城市PM_{2.5}长期变化趋势的主要驱动因子,并验证了我国对PM_{2.5}污染治理的显著成效。

为了理解每个分量对PM_{2.5}浓度原始序列的贡献,我们计算了每个分量以及3个分量总和对原始序列的方差贡献率(表2)。如表2所示,每个城市总分量的贡献均为90%以上,表明KZ滤波器分解的各分量趋势变化可以很好地解释原始序列的趋势变化。各个分量中,每

个城市的短期分量贡献均较高(43%~75%),其中北京地区的贡献最大(75%),表明不利的短期气象条件对城市PM_{2.5}浓度变化的贡献最大。各个城市季节分量的贡献为13%~42%。各个城市长期分量的方差贡献相对较小,平均为5%~9%。这些结果表明,短期分量是造成原始序列浓度波动的主要控制因子,即主要受到短期气象条件的影响,这也是导致我国中东部地区冬季PM_{2.5}污染事件频发的关键原因^[2,51,52]。

为了研究PM_{2.5}浓度较高季节(冬季)PM_{2.5}与其气态前体物的关系,我们分析了2015~2020年每年冬季归一化的PM_{2.5}与CO比值(PM_{2.5}/CO)和NO₂与SO₂比值(NO₂/SO₂)间的关系(图4)。因为城市大气中CO主要来源于燃烧源的一次排放,PM_{2.5}/CO比值的增量可近似视为非一次燃烧源PM_{2.5}的增量(或近似视为主要二次颗粒物组分的增量)^[53,54]。在北京、南京、深圳地区,在观测前期(如2015~2017/2018年)PM_{2.5}/CO比值随着NO₂/SO₂比值的升高而降低,而在观测后期(2018~2020年)二者的

表 2 2015~2020年PM_{2.5}和MDA8-O₃原始序列及各分量方差对总方差的贡献

Table 2 The contribution of the variance of original time series and different components to the total variance of PM_{2.5} and DMA8-O₃ during 2015–2020

污染物	城市	方差贡献(%)				
		原始序列	短期分量	季节分量	长期分量	分量之和
PM _{2.5}	北京	100.00	74.88	12.76	7.13	94.77
	南京	100.00	55.97	31.49	6.78	94.23
	深圳	100.00	53.65	33.29	4.57	91.51
	武汉	100.00	42.82	42.21	9.04	94.07
MDA8-O ₃	北京	100.00	28.25	67.63	0.14	96.02
	南京	100.00	41.27	51.74	0.39	93.40
	深圳	100.00	64.16	25.69	1.20	91.04
	武汉	100.00	39.80	52.80	0.69	93.28

图 4 (网络版彩色)2015~2020年典型城市冬季(December-January-February, DJF)归一化的PM_{2.5}/CO比值(原始比值与其期间平均值之比)与NO₂/SO₂比值间的关系. 正(+)和负(-)符号表示对应的相关关系

Figure 4 (Color online) Relationship between the normalized PM_{2.5}/CO (calculated by the ratio between the original values to the mean value in typical cities during 2015–2020) and the NO₂/SO₂ ratio in winter (December-January-February, DJF). Signs of positive (+) and negative (–) indicate the corresponding correlative relationship

比值呈总体正相关. 这可能体现出观测后期PM_{2.5}中二次组分的形成主要受以NO₂为前体物的气溶胶组分(硝

酸盐)主导, 而观测前期可能受到以SO₂为前体物的二次组分(硫酸盐)影响较大^[31,50,55,56], 或许与近年我国区

域人为减排有关。从排放角度,在2013~2020年间我国区域减排中,针对SO₂的减排成效最为显著(尤其是在京津冀地区),而针对NO_x的减排成效相对较低^[11,34]。这可导致我国东部多数城市大气中PM_{2.5}中二次无机组分的相对重要性,即由硫酸盐转向硝酸盐转变^[22,33,55,57]。在武汉地区,在2015~2020年PM_{2.5}/CO比值总体均随着NO₂/SO₂比值升高而增加,这可能体现出在该地区城市氮氧化物对大气PM_{2.5}的贡献潜势权重在逐渐增加^[58]。

2.3 人为减排和气象条件对O₃变化趋势的影响

图5给出了我国东部典型城市(包括北京、南京、深圳、武汉)2015~2020年MDA8-O₃原始序列、短期分量、季节分量、长期分量以及排放影响和气象影响的趋势。基于Mann-Kendall检验发现,这4个城市MDA8-O₃原始序列均呈整体上升趋势,变化速率依次为:1.82 μg m⁻³ a⁻¹(武汉)、1.36 μg m⁻³ a⁻¹(南京)、1.28 μg m⁻³ a⁻¹(深圳)、0.33 μg m⁻³ a⁻¹(北京),其中武汉、南京、深圳地区均通过显著性检验($P < 0.05$),但北京地区未通过显

著性检验($P = 0.61$),表明近年我国臭氧污染呈整体上升的趋势。但值得注意的是,2020年多数城市臭氧在同比下降。每个城市的短期分量呈现明显的波动,且振幅在夏季最大,表明短期天气变化对不同城市臭氧的浓度波动有重要影响。北京、南京、武汉地区的季节分量呈现明显的季节性循环,从冬季至夏季呈上升趋势,说明受季节性循环,例如太阳最强日照时长等,对这些城市臭氧季节分量起到重要的影响。然而,相比其他城市地区,深圳地区的季节分量并未呈现较明显的季节性循环。定量分析每个分量对原始序列的方差贡献发现(表2),每个城市总分量的贡献均高于91%,表明KZ滤波分析可以合理地解释原始序列的趋势变化。其中,短期分量贡献分别约为64%(深圳)、41%(南京)、40%(武汉)、28%(北京);季节分量贡献分别约为:68%(北京)、53%(武汉)、52%(南京)、26%(深圳)。其中,深圳季节分量相对较低,但短期分量贡献较大,表明深圳地区短期的天气变化是臭氧浓度变化的主导因素,而其他城市地区季节分量是主导臭氧原始序列季节性循环

图5 (网络版彩色)2015~2020年典型城市MDA8-O₃浓度时间序列趋势分析,包括浓度原始序列、短期分量、季节分量、长期分量以及受排放影响、气象影响的趋势

Figure 5 (Color online) Temporal trends in the MDA8-O₃ mass concentration in typical cities during 2015–2020, including concentrations of original time series, short-term component, seasonal component, long-term component and the emission and meteorological impacts, respectively

的主要因素. 总体而言, 长期分量的贡献均较低, 平均为0.14%~1.2%. 定量分析污染源排放影响的趋势和气象条件影响的趋势对长期分量的贡献发现, 不同城市间的差别较明显, 污染源排放影响因素的贡献依次约为: 80%(深圳)、55%(北京)、40%(武汉)、25%(南京). 这些结果表明, 在不同城市地区臭氧的长期趋势变化分别受污染源排放和气象条件影响的差异相比 $\text{PM}_{2.5}$ 较明显, 其中在深圳地区污染源排放是主导该地区臭氧长期趋势变化的因素, 而在南京地区气象条件的影响较大.

事实上, 上述有关臭氧趋势变化以及主控因素也体现出了我国针对近地面臭氧污染治理的复杂性. 大气 O_3 的形成对其气态前体物(NO_x 和VOCs)十分敏感且呈非线性关系^[59,60], 所以前体物的变化也对 O_3 的形成产生重要影响. 为了探究 O_3 与其前体物之间的关系, 我们分析了不同典型城市夏季光化学过程较强时段(11:00~16:00) O_3 与 NO_2 之间的关系(图6). 结果显示, 多

数城市(除了深圳2017~2020年外), O_3 与 NO_2 之间的关系总体呈对数正态分布特征. 二者间的关系可被用于间接表征 O_3 对其前体物的响应关系^[19,59,61,62], 当 O_3 随着 NO_2 升高而升高时表明 O_3 的生成对 NO_x 浓度较敏感(近似视为 NO_x -敏感区), 而当 O_3 随着 NO_2 升高而降低时则表明 O_3 的生成对VOCs浓度水平较敏感(近似视为VOCs-敏感区). 基于模拟研究发现, O_3 与 NO_x 间的函数关系拟合线的偏移可被不同VOCs浓度水平所解释^[62]. 如图6所示, 在2015~2020年典型城市(除了南京外) O_3 与 NO_2 间的拟合曲线总体呈逐年向左下方偏移, 其中在2015~2018年间偏移量相对不明显, 但在2020年偏移量相对较明显. 研究结果可能反映出这些城市及其周边区域大气中VOCs和 NO_x 浓度的变化趋势, 即在观测后期(如2020年)VOCs呈现出相比观测前期(如2015~2018年)相对较大幅度的降低趋势. 实际上, 这一推断也与2015~2020年间我国VOCs排放清单数据相吻合^[11,34]. 特别地, 2017~2019年深圳地区 O_3 与 NO_2 间的关系呈线

图6 (网络版彩色)2015~2020年典型城市夏季 O_3 与 NO_2 在光化学较强烈时段(11:00~16:00)的关系. 空心形数据点为每个 NO_2 浓度段 O_3 平均浓度值, 实线为对数正态分布拟合曲线(除深圳2017~2020年线性拟合线外). 横坐标轴为对数尺度坐标刻度

Figure 6 (Color online) Relationship between O_3 and NO_2 during intense photochemical period (11:00~16:00) in summer in typical cities during 2015~2020. Hollow circle indicates the mean concentration of O_3 in every NO_2 concentration bin, and solid line indicates the lognormal distribution curve fit, except for the linear curve fit in Shenzhen during 2017~2020. The abscissa axis of these plots is log-scaled distribution

性,并随NO₂的增加而降低,体现出这些时段深圳O₃的生成主要处于VOCs敏感区,为此进一步减排深圳地区VOCs对治理该地区的O₃污染有一定作用。

3 结论

近些年,我国政府相继出台了一系列有史以来最为严格的人为减排措施,包括2013年的《大气污染防治计划》和2018年的《打赢蓝天保卫战三年行动计划》,旨在改善环境空气质量,尤其是针对我国城市群极端污染天气频繁发生的区域,包括京津冀、长三角、珠三角等。本文基于地面观测数据和气象资料,重点分析了2015~2020年我国东部主要城市大气PM_{2.5}和O₃的时空变化趋势以及影响因素,主要结论如下。

(1) 高浓度PM_{2.5}主要集中分布在华北平原地区。2015~2020年我国PM_{2.5}年平均浓度整体呈逐年持续下降的趋势,且高浓度区域也呈逐年缩小的趋势,其中京津冀地区下降幅度最大。相比2015年,该地区2020年PM_{2.5}下降了约44%,其次为长三角地区下降了约39%,珠三角地区下降了约36%。典型城市大气PM_{2.5}长期分量均呈显著性下降趋势,其中人为减排是驱动PM_{2.5}长期趋势变化的主要因素,其贡献约为63%~93%。在北京和南京地区,冬季PM_{2.5}/CO与NO₂/SO₂之间关系由

2015~2018年间的负相关转变为2019~2020年正相关,说明受减排的影响,NO_x对大气二次PM_{2.5}组分形成的贡献势在增加。

(2) 高浓度MDA8-O₃主要分布在华北平原地区。2015~2019年MDA8-O₃整体呈上升趋势,但在2020年,部分地区MDA8-O₃呈现同比下降的趋势。不同地区典型城市污染源排放和气象条件因素对臭氧长期分量变化的贡献差异明显,其中排放影响因素贡献约为40%~80%。典型城市(除南京外)夏季O₃-NO₂间的关系曲线在2020年呈现明显的左下方偏移,反映出该年度VOCs-NO_x的减排可能对降低O₃有一定的作用。

(3) O₃-PM_{2.5}的相关性呈现明显的季节性和空间分布特征。冬季二者在偏北部呈负相关,偏南部呈正相关,验证了我国偏北部地区液相化学过程和一次排放(例如沙尘)对偏北部地区PM_{2.5}贡献的重要性;夏季的相关性系数明显高于其他季节并呈区域性特征,且中东部和东南部较高,表明区域二次光化学过程对这些地区夏季PM_{2.5}的生成有较重要的作用。基于已被验证的夏季PM_{2.5}-O₃相互作用机制^[18],本研究发现,城市间O₃与PM_{2.5}的拟合斜率与其相关性系数呈正比例关系,且其比值在夏季呈逐年增加的趋势,可能表征出受减排影响,PM_{2.5}对O₃生成的抑制作用呈逐年递减的趋势。

致谢 文中涉及的地图经自然资源部地图技术审查中心审查,审图号为GS(2021)7611号。

参考文献

- 1 Zhu T. Air pollution in China: Scientific challenges and policy implications. *Natl Sci Rev*, 2018, 4: 800–800
- 2 An Z, Huang R J, Zhang R, et al. Severe haze in northern China: A synergy of anthropogenic emissions and atmospheric processes. *Proc Natl Acad Sci USA*, 2019, 116: 8657–8666
- 3 Hu M, Guo S, Peng J, et al. Insight into characteristics and sources of PM_{2.5} in the Beijing-Tianjin-Hebei region, China. *Natl Sci Rev*, 2015, 2: 257–258
- 4 Zhang X Y, Sun J Y, Wang Y Q, et al. Factors contributing to haze and fog in China (in Chinese). *Chin Sci Bull*, 2013, 58: 1178–1187 [张小曳, 孙俊英, 王亚强, 等. 我国雾-霾成因及其治理的思考. 科学通报, 2013, 58: 1178–1187]
- 5 Huang R J, Zhang Y, Bozzetti C, et al. High secondary aerosol contribution to particulate pollution during haze events in China. *Nature*, 2014, 514: 218–222
- 6 Guo S, Hu M, Zamora M L, et al. Elucidating severe urban haze formation in China. *Proc Natl Acad Sci USA*, 2014, 111: 17373–17378
- 7 Wang G, Zhang R, Gomez M E, et al. Persistent sulfate formation from London Fog to Chinese haze. *Proc Natl Acad Sci USA*, 2016, 113: 13630–13635
- 8 Zhang R, Wang G, Guo S, et al. Formation of urban fine particulate matter. *Chem Rev*, 2015, 115: 3803–3855
- 9 Geng G, Zheng Y, Zhang Q, et al. Drivers of PM_{2.5} air pollution deaths in China 2002–2017. *Nat Geosci*, 2021, 14: 645–650
- 10 Guo X B, Wei H Y. Progress on the health effects of ambient PM_{2.5} pollution (in Chinese). *Chin Sci Bull*, 2013, 58: 1171–1177 [郭新彪, 魏红英. 大气PM_{2.5}对健康影响的研究进展. 科学通报, 2013, 58: 1171–1177]
- 11 Zheng B, Tong D, Li M, et al. Trends in China's anthropogenic emissions since 2010 as the consequence of clean air actions. *Atmos Chem Phys*, 2018, 18: 14095–14111

- 12 Zhang Q, Zheng Y, Tong D, et al. Drivers of improved PM_{2.5} air quality in China from 2013 to 2017. *Proc Natl Acad Sci USA*, 2019, 116: 24463–24469
- 13 Zhang X Y, Xu X D, Ding Y H, et al. The impact of meteorological changes from 2013 to 2017 on PM_{2.5} mass reduction in key regions in China. *Sci China Earth Sci*, 2019, 62: 1885–1902 [张小曳, 徐祥德, 丁一汇, 等. 2013–2017年气象条件变化对中国重点地区PM_{2.5}质量浓度下降的影响. *中国科学: 地球科学*, 2020, 50: 483–500]
- 14 Cheng J, Su J, 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. *Atmos Chem Phys*, 2019, 19: 6125–6146
- 15 Chen Z, Chen D, Kwan M P, et al. The control of anthropogenic emissions contributed to 80% of the decrease in PM_{2.5} concentrations in Beijing from 2013 to 2017. *Atmos Chem Phys*, 2019, 19: 13519–13533
- 16 Zhai S, 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. *Atmos Chem Phys*, 2019, 19: 11031–11041
- 17 Li K, Jacob D J, Liao H, et al. Anthropogenic drivers of 2013–2017 trends in summer surface ozone in China. *Proc Natl Acad Sci USA*, 2019, 116: 422–427
- 18 Li K, Jacob D J, Liao H, et al. A two-pollutant strategy for improving ozone and particulate air quality in China. *Nat Geosci*, 2019, 12: 906–910
- 19 Chen X, Jiang Z, Shen Y, et al. Chinese regulations are working—Why is surface ozone over industrialized areas still high? Applying lessons from Northeast US air quality evolution. *Geophys Res Lett*, 2021, 48: e2021GL092816
- 20 Lu K, Guo S, Tan Z, et al. Exploring atmospheric free-radical chemistry in China: The self-cleansing capacity and the formation of secondary air pollution. *Natl Sci Rev*, 2019, 6: 579–594
- 21 Li K, Jacob D J, Shen L, et al. Increases in surface ozone pollution in China from 2013 to 2019: Anthropogenic and meteorological influences. *Atmos Chem Phys*, 2020, 20: 11423–11433
- 22 Wang Y, Gao W, Wang S, et al. Contrasting trends of PM_{2.5} and surface-ozone concentrations in China from 2013 to 2017. *Natl Sci Rev*, 2020, 7: 1331–1339
- 23 Yang W, Zurbenko I. Kolmogorov-Zurbenko filters. *WIREs Comp Stat*, 2010, 2: 340–351
- 24 Lu H C, Chang T S. Meteorologically adjusted trends of daily maximum ozone concentrations in Taipei, Taiwan. *Atmos Environ*, 2005, 39: 6491–6501
- 25 Seo J, Park D S R, Kim J Y, et al. Effects of meteorology and emissions on urban air quality: A quantitative statistical approach to long-term records (1999–2016) in Seoul, South Korea. *Atmos Chem Phys*, 2018, 18: 16121–16137
- 26 Zheng H, Kong S, Zheng M, et al. A 5.5-year observations of black carbon aerosol at a megacity in Central China: Levels, sources, and variation trends. *Atmos Environ*, 2020, 232: 117581
- 27 Cheng N, Cheng B, Li S, et al. Effects of meteorology and emission reduction measures on air pollution in Beijing during heating seasons. *Atmos Pollut Res*, 2019, 10: 971–979
- 28 Wise E K, Comrie A C. Extending the Kolmogorov-Zurbenko filter: Application to ozone, particulate matter, and meteorological trends. *J Air Waste Manage Assoc*, 2005, 55: 1208–1216
- 29 Wang Y S, Li W J, Gao W K, et al. Trends in particulate matter and its chemical compositions in China from 2013–2017. *Sci China Earth Sci*, 2019, 62: 1857–1871 [王跃思, 李文杰, 高文康, 等. 2013–2017年中国重点区域颗粒物质量浓度和化学成分变化趋势. *中国科学: 地球科学*, 2020, 50: 453–468]
- 30 Geng G N, Xiao Q Y, Zheng Y X, et al. Impact of China's Air Pollution Prevention and Control Action Plan on PM_{2.5} chemical composition over eastern China. *Sci China Earth Sci*, 2019, 62: 1872–1884 [耿冠楠, 肖清扬, 郑逸璇, 等. 实施《大气污染防治行动计划》对中国东部地区PM_{2.5}化学成分的影响. *中国科学: 地球科学*, 2020, 50: 469–482]
- 31 Ding A, Huang X, Nie W, et al. Significant reduction of PM_{2.5} in eastern China due to regional-scale emission control: Evidence from SORPES in 2011–2018. *Atmos Chem Phys*, 2019, 19: 11791–11801
- 32 Li H, Cheng J, Zhang Q, et al. Rapid transition in winter aerosol composition in Beijing from 2014 to 2017: Response to clean air actions. *Atmos Chem Phys*, 2019, 19: 11485–11499
- 33 Sun Y, Lei L, Zhou W, et al. A chemical cocktail during the COVID-19 outbreak in Beijing, China: Insights from six-year aerosol particle composition measurements during the Chinese New Year holiday. *Sci Total Environ*, 2020, 742: 140739
- 34 Zheng B, Zhang Q, Geng G, et al. Changes in China's anthropogenic emissions and air quality during the COVID-19 pandemic in 2020. *Earth Syst Sci Data*, 2021, 13: 2895–2907
- 35 Li C, Hammer M S, Zheng B, et al. Accelerated reduction of air pollutants in China, 2017–2020. *Sci Total Environ*, 2021, 803: 150011
- 36 Koukouli M E, Theys N, Ding J, et al. Updated SO₂ emission estimates over China using OMI/Aura observations. *Atmos Meas Tech*, 2018, 11: 1817–1832
- 37 Zheng B, Cheng J, Geng G, et al. Mapping anthropogenic emissions in China at 1 km spatial resolution and its application in air quality modeling.

- [Sci Bull](#), 2021, 66: 612–620
- 38 Xie X, Duan A, Shi Z, et al. Modulation of springtime surface sensible heating over the Tibetan Plateau on the interannual variability of East Asian dust cycle. [Atmos Chem Phys](#), 2020, 20: 11143–11159
- 39 Wang J, Ye J, Zhang Q, et al. Aqueous production of secondary organic aerosol from fossil-fuel emissions in winter Beijing haze. [Proc Natl Acad Sci USA](#), 2021, 118: e2022179118
- 40 Cheng Y, Zheng G, Wei C, et al. Reactive nitrogen chemistry in aerosol water as a source of sulfate during haze events in China. [Sci Adv](#), 2016, 2: e1601530
- 41 Sun Y, Du W, Fu P, et al. Primary and secondary aerosols in Beijing in winter: Sources, variations and processes. [Atmos Chem Phys](#), 2016, 16: 8309–8329
- 42 Liu Y, Wu Z, Wang Y, et al. Submicrometer particles are in the liquid state during heavy haze episodes in the urban atmosphere of Beijing, China. [Environ Sci Technol Lett](#), 2017, 4: 427–432
- 43 Hu W W, Hu M, Yuan B, et al. Insights on organic aerosol aging and the influence of coal combustion at a regional receptor site of central eastern China. [Atmos Chem Phys](#), 2013, 13: 10095–10112
- 44 Sun Y, Xu W, Zhang Q, et al. Source apportionment of organic aerosol from 2-year highly time-resolved measurements by an aerosol chemical speciation monitor in Beijing, China. [Atmos Chem Phys](#), 2018, 18: 8469–8489
- 45 Tian R, Ma X, Zhao J. A revised mineral dust emission scheme in GEOS-Chem: Improvements in dust simulations over China. [Atmos Chem Phys](#), 2021, 21: 4319–4337
- 46 Kok J F, Adebisi A A, Albani S, et al. Contribution of the world's main dust source regions to the global cycle of desert dust. [Atmos Chem Phys](#), 2021, 21: 8169–8193
- 47 Yang Y, Wang Y, Huang W, et al. Parameterized atmospheric oxidation capacity and speciated OH reactivity over a suburban site in the North China Plain: A comparative study between summer and winter. [Sci Total Environ](#), 2021, 773: 145264
- 48 Liu Z, Wang Y, Hu B, et al. Elucidating the quantitative characterization of atmospheric oxidation capacity in Beijing, China. [Sci Total Environ](#), 2021, 771: 145306
- 49 Hu W, Hu M, Hu W W, et al. Seasonal variations in high time-resolved chemical compositions, sources, and evolution of atmospheric submicron aerosols in the megacity Beijing. [Atmos Chem Phys](#), 2017, 17: 9979–10000
- 50 Li J, Gao W, Cao L, et al. Significant changes in autumn and winter aerosol composition and sources in Beijing from 2012 to 2018: Effects of clean air actions. [Environ Pollut](#), 2021, 268: 115855
- 51 Sun Y, Chen C, Zhang Y, et al. Rapid formation and evolution of an extreme haze episode in northern China during winter 2015. [Sci Rep](#) 2016, 6: 27151
- 52 Huang X, Ding A, Wang Z, et al. Amplified transboundary transport of haze by aerosol-boundary layer interaction in China. [Nat Geosci](#), 2020, 13: 428–434
- 53 Huang X, Ding A, Gao J, et al. Enhanced secondary pollution offset reduction of primary emissions during COVID-19 lockdown in China. [Natl Sci Rev](#), 2021, 8: nwaal37
- 54 Wu J, Zhang Y, Wang T, et al. Rapid improvement in air quality due to aerosol-pollution control during 2012–2018: An evidence observed in Kunshan in the Yangtze River Delta, China. [Atmos Pollut Res](#), 2019, 11: 693–701
- 55 Zhai S, Jacob D J, Wang X, et al. Control of particulate nitrate air pollution in China. [Nat Geosci](#), 2021, 14: 389–395
- 56 Chu B, Ma Q, Liu J, et al. Air pollutant correlations in China: Secondary air pollutant responses to NO_x and SO₂ control. [Environ Sci Technol Lett](#), 2020, 7: 695–700
- 57 Li H, Zhang Q, Zheng B, et al. Nitrate-driven urban haze pollution during summertime over the North China Plain. [Atmos Chem Phys](#), 2018, 18: 5293–5306
- 58 Yao L, Kong S, Zheng H, et al. Co-benefits of reducing PM_{2.5} and improving visibility by COVID-19 lockdown in Wuhan. [npj Clim Atmos Sci](#), 2021, 4: 40
- 59 Sillman S, He D. Some theoretical results concerning O₃-NO_x-VOC chemistry and NO_x-VOC indicators. [J Geophys Res](#), 2002, 107: 4659
- 60 Shao M, Wang W, Yuan B, et al. Quantifying the role of PM_{2.5} dropping in variations of ground-level ozone: Inter-comparison between Beijing and Los Angeles. [Sci Total Environ](#), 2021, 788: 147712
- 61 Chen S, Wang H C, Lu K D, et al. The trend of surface ozone in Beijing from 2013 to 2019: Indications of the persisting strong atmospheric oxidation capacity. [Atmos Environ](#), 2020, 242: 117801
- 62 Schroeder J R, Crawford J H, Fried A, et al. New insights into the column CH₂O/NO₂ ratio as an indicator of near-surface ozone sensitivity. [J Geophys Res Atmos](#), 2017, 122: 8885–8907

Summary for “2015–2020年我国主要城市PM_{2.5}和O₃污染时空变化趋势和影响因素”

Spatiotemporal trends and impact factors of PM_{2.5} and O₃ pollution in major cities in China during 2015–2020

Yunjiang Zhang^{1,2}, Ruoyuan Lei¹, Shijie Cui¹, Hongli Wang², Mindong Chen¹ & Xinlei Ge^{1*}¹ Collaborative Innovation Center of Atmospheric Environment and Equipment Technology, Jiangsu Key Laboratory of Atmospheric Environment Monitoring and Pollution Control, School of Environmental Science and Engineering, Nanjing University of Information Science and Technology, Nanjing 210044, China;² State Environmental Protection Key Laboratory of Formation and Prevention of Urban Air Pollution Complex, Shanghai Academy of Environmental Sciences, Shanghai 200233, China* Corresponding author, E-mail: caxinra@163.com

In recent years, China has taken a series of strict emission reduction measures to mitigate fine particulate matter (PM_{2.5}) and ozone (O₃) air pollution. Based on the near-surface observation data obtained from the national air environmental monitoring network during 2015–2020, we investigated the temporal and spatial variation trends of urban PM_{2.5} and O₃ air pollution in China and their impact factors. The PM_{2.5} showed an obvious year-round decrease trend during 2015–2020, which demonstrates a continuous improvement of the PM_{2.5} pollution issue in China during the past six years. In contrast, an increasing trend in O₃ was observed during 2015–2019, but it showed a decreased trend in some regions in 2020. This mainly reflects a possible negative feedback of recent anthropogenic emission reduction on tropospheric O₃ pollution. By combining meteorological data (including wind speed, air temperature, relative humidity, atmospheric pressure, and precipitation) and using KZ (Kolmogorov-Zurbenko) filter coupled with stepwise multiple linear regression analysis, the impact factors (i.e., emissions and meteorological conditions) on the trends of PM_{2.5} and O₃ were analyzed for some typical cities (including Beijing, Nanjing, Wuhan, and Shenzhen). The results showed that anthropogenic emission reduction contributed 63%–93% and 40%–80% to the long-term trend components of PM_{2.5} and O₃, respectively. The changes in the relationship between the ratios PM_{2.5}/CO versus NO₂/SO₂ from negative to positive were observed in the typical cities, which could indicate the enhanced contribution potential of nitrogen oxides to the main secondary component formation of PM_{2.5} under the current emission reduction scenarios. These results indicate that both emissions and meteorological conditions could influence the long-term trends of atmospheric PM_{2.5} and O₃. Especially, anthropogenic emission could be a major driver of substantial improvement in PM_{2.5} air quality in China, which therefore further demonstrates the positive feedback of the new emission reduction measures (e.g., the ones during 2018–2020) on PM_{2.5} air pollution control during recent years. To investigate the potential interaction between PM_{2.5} and O₃ pollution under the emission scenario during the past years, we analyzed the correlation coefficients between O₃ and PM_{2.5} over China in different seasons. The correlation coefficient patterns showed obvious seasonal and spatial distribution characteristics. For example, the correlation coefficients in summer were generally higher than that in other seasons, and those in the southeast and the middle east were significantly higher than that in the northwest. In winter, they were negatively correlated in the north and northwest and positively correlated in the south, which might suggest the importance of the contribution of liquid-phase chemical processes and/or primary emissions (such as dust) to PM_{2.5} pollution in the north and northwest of China. The high correlation coefficients in summer could highlight that the photochemical process played an important role in the secondary formation of PM_{2.5} in those regions. Moreover, the correlation coefficients between them were positively proportional to the fitting slope. These results might reflect that the inhibitory effect of PM_{2.5} on O₃ formation in the PM_{2.5}-O₃ interaction mechanism might be weakening due to the impact of emission reduction. During the period of intense atmospheric photochemical process in typical cities in summer, the O₃ concentration presented a non-linear relationship with NO₂. In this case, the fitting curve of O₃ and NO₂ showed an obvious downward-left offset in 2020. These results may reflect a non-linear response of O₃ formation to its precursors emission control and a non-negligible effect of emission reduction on the O₃ decline in 2020.

fine particulate matter, ozone, spatiotemporal trends, emission reduction, cooperative governance

doi: [10.1360/TB-2021-0767](https://doi.org/10.1360/TB-2021-0767)