丁 莹,邹 滨,李沈鑫,等.湘江流域近二十年大气 $PM_{2.5}$ 干沉降时空特征及影响机制解析 [J]. 中国环境科学, 2025,45(11):5921-5930.
Ding Y, Zou B, Li S X, et al. Spatial-temporal characteristics and influencing mechanism of $PM_{2.5}$ dry deposition in the Xiangjiang River Basin over the past two decades [J]. China Environmental Science, 2025,45(11):5921-5930.

湘江流域近二十年大气 $PM_{2.5}$ 干沉降时空特征及影响机制解析

丁 莹[1],邹 滨[1],李沈鑫[1*],徐 勇[1,2],刘 宁[3],赵 芳[4],陈 军[4],尤翔宇[5] (1.中南大学地球科学与信息物理学院,湖南 长沙 410083；2.桂林理工大学测绘地理信息学院,广西 桂林 541006；3.国防科技大学气象海洋学院,湖南 长沙 410073；4.湖南省长沙生态环境监测中心,湖南 长沙 410001；5.湖南省环境保护科学研究院,湖南 长沙 410004)

摘要：解析干沉降时空演化过程及影响机制是精准把握污染来源与开展大气污染治理、土壤环境管理、农业污染防治的重要内容,因此,本研究以我国重要粮食产区湘江流域为研究区,综合 2000~2021 年遥感反演 $PM_{2.5}$ 浓度、ERA5 模式再分析气象场、地面大气颗粒物监测等多源数据,采用经验参数公式方法估算区域 $PM_{2.5}$ 干沉降通量,探究流域及“三区”空间干沉降长时序时空演化特征.在此基础上,结合随机森林模型解析干沉降通量影响因素贡献特征,阐明干沉降主要影响机制.结果表明,近 20 年间湘江流域 $PM_{2.5}$ 干沉降通量呈北高南低、中心高四周低格局,城镇空间 $PM_{2.5}$ 干沉降量最高(1.42g/m^2),其次为农业空间(1.06g/m^2),生态空间最低(0.80g/m^2).2000 年以来干沉降通量呈下降趋势,变化率为−0.017g /(m^2·a).$PM_{2.5}$ 浓度高值区域干沉降通量下降趋势较强.民用排放(2.43±0.04)、气温(0.71±0.01)、工业排放(0.69±0.02)及相对湿度(0.59±0.01)是湘江流域干沉降的主控因素,同时影响机制存在空间异质性,应针对不同区域影响要素贡献特征制定大气污染防控措施实现污染精准防控.

关键词：$PM_{2.5}$；干沉降；时空分布；影响机制；湘江流域
中图分类号：X513 **文献标识码**：A **文章编号**：1000-6923(2025)11-5921-10

Spatial-temporal characteristics and influencing mechanism of $PM_{2.5}$ dry deposition in the Xiangjiang River Basin over the past two decades.

DING Ying[1], ZOU Bin[1], LI Shen-xin[1*], XU Yong[1,2], LIU Ning[3], ZHAO Fang[4], CHEN Jun[4], YOU Xiang-yu[5] (1.School of Geosciences and Info-Physics, Central South University, Changsha 410083, China；2.College of Geomatics and Geoinformation, Guilin University of Technology, Guilin 541006, China；3.College of Meteorology and Oceanography, National University of Defense Technology, Changsha 410073, China；4.Changsha Ecological Environmental Monitoring Center of Hunan Province, Changsha 410001, China；5.Hunan Research Academy of Environmental Science, Changsha 410004, China). *China Environmental Science*, 2025,45(11)：5921~5930

Abstract：Analyzing the spatiotemporal variation and influencing mechanisms of dry deposition is crucial for identifying pollution sources, atmospheric pollution control, soil environmental management, and agricultural pollution prevention. Focusing on the Xiangjiang River Basin, a vital grain producing region in China, this study estimated $PM_{2.5}$ dry deposition fluxes using empirical parameterization formulas and multi-source data, including remote sensing $PM_{2.5}$ concentrations, ERA5 reanalysis meteorological data, and ground-based monitoring. The long-term spatiotemporal characteristics of dry deposition across the basin and three zones delineated by three lines for land use (agricultural zones, ecological preservation zones, and urban development zones) were investigated. Furthermore, the random forest model was employed to quantify the contributions of influencing factors and elucidated the dominant mechanisms driving dry deposition. Results show thatthe dry deposition fluxes presented a spatial pattern of high in the north and central areas, low in the south and periphery. Urban development zones had the highest dry deposition flux (1.42g/m^2), followed by agricultural zones (1.06g/m^2) and ecological preservation zones (0.80g/m^2). Since 2000, dry deposition fluxes have shown a declining trend at a rate of −0.017g/(m^2·a), with significant decreases in high $PM_{2.5}$ concentration areas. Residential emissions (2.43±0.04), air temperature (0.71±0.01), industrial emissions (0.69±0.02), and relative humidity (0.59±0.01) were identified as dominant factors influencing $PM_{2.5}$ dry deposition. Considering the spatial heterogeneity of mechanisms in influencing factors, tailored atmospheric pollution control measures are recommended to achieve targeted pollution mitigation.

Key words：$PM_{2.5}$；dry deposition；spatio-temporal distribution；influencing mechanism；Xiangjiang River Basin

近年来,大气污染特征已从传统的煤烟型污染转变为复杂的区域复合型污染,其中细颗粒物($PM_{2.5}$)成为主要污染物之一[1-2].由于其粒径小、表面积大、

收稿日期：2025-04-09
基金项目：国家自然科学基金资助项目(42301497,42271440,42405149)
* 责任作者，讲师, shenxin823@csu.edu.cn

来源多样,易附着有毒、有害物质,且能通过皮肤接触、口腔摄入、呼吸道吸入等途径深入人体系统,诱发如呼吸道和心血管疾病等重大健康问题而备受国内外研究人员关注[3-4].

浓度受排放、传输、扩散及沉降等多种复杂物理、化学机制影响,其时空演化呈高度时空动态特性[5-6].重金属等有害物质在工业生产过程中附着在$PM_{2.5}$表面,通过烟气排放进入大气环境,进而传输、扩散迁移至其它区域,最终通过大气沉降过程进入水体、土壤和植被等其他圈层,加剧生态环境污染并直接或间接对人体健康产生影响[7-9].研究表明,我国2005~2022 年大气沉降过程对土壤镉、砷、汞等重金属元素年输入量贡献高达 57%~72%[10-11].与此同时,有害物质跟随 $PM_{2.5}$ 沉降到土壤和农作物表面,被农作物吸收后对粮食安全具有不可忽视的影响[12].大气沉降过程包括干沉降和湿沉降,其中干沉降作用时间长、范围广,且大多数元素干沉降通量显著大于湿沉降[13-14].鉴于此,阐明 $PM_{2.5}$ 干沉降的时空演化规律,对加强“气-土”介质协同的环境污染精细化防治具有重要意义.

开展$PM_{2.5}$干沉降时空精细监测,在此基础上全面解析其时空演化特征及影响机制是制定污染防治措施的重要基础.当前,大气沉降监测主要采用采样化学分析、数值模拟、遥感监测三类方法[15-16].其中,传统采样化学分析手段存在采样点分布稀疏、探测耗费大、时效性差等问题,难以获得时空连续信息[17-18].数值模式通过表征颗粒物沉降机理实现全空间覆盖动态模拟,但空间分辨率与精度偏低,无法满足空间精细监测需求[19-21].卫星遥感手段具有非接触式、覆盖度广、分辨率高、时效性强的特点,在开展 $PM_{2.5}$ 精细监测解决环境监测新型需求上具有重大应用价值[22].然而,遥感方法对大气沉降过程的探测能力不足制约了其在 $PM_{2.5}$ 沉降监测方面的应用.充分发挥多手段互补优势,集成遥感监测、数值模式、地面观测等多手段或将是破解 $PM_{2.5}$ 干沉降时空精细监测难题的创新尝试.

湘江流域地处长江经济带与华南经济圈的辐射地带,区域内城镇密布、人口集中、经济发达,是中部地区经济发展的核心区域.作为我国重要粮食产区,湘江流域重金属产业历史悠久,土壤及农作物污染问题备受关注.受制于单一监测手段局限性,已有研究尚未充分挖掘湘江流域大气颗粒物长时序干沉降时空演化规律及其影响机制[23-24].综上所述,本文以湘江流域为对象,在采集 2000~2021 年多源遥感 $PM_{2.5}$ 浓度数据、模式模拟气象场等多源、多平台时空数据基础上,运用经验参数公式方法估算区域 $PM_{2.5}$ 干沉降通量,探究其近 20 年长时序时空演化特征,并着重分析城镇空间、农业空间、生态空间(“三区”空间)的分异特征.在此基础上,采用随机森林模型定量解析干沉降通量影响要素贡献度,阐明区域干沉降主要影响机制,解析湘江流域 $PM_{2.5}$ 干沉降长时序时空演化及主控因素影响特征.作为大气颗粒物污染动态变化的主要影响机制,干沉降过程导致的 $PM_{2.5}$ “气-土”迁移同时也是土壤、农作物污染的重要来源,本研究结果有助于加强对区域 $PM_{2.5}$ “气-土”跨圈层传输过程和主要影响机制的时空理解,为大气污染空间差异化治理措施制定提供科学参考.除此之外,本研究为进一步土壤、农业重金属大区域网格化、定量化溯源提供借鉴,有助于土壤和农业污染精准防治效能提升.

1 数据与方法

1.1 研究区域

湘江流域(图 1)位于湖南省东部,包括长沙、湘潭、株洲、衡阳、郴州、永州、娄底、邵阳、岳阳等 9 市 67 个县市区,面积约为 8.5 万 km^2.流域属太平洋季风湿润气候,地貌以山地、丘陵为主,总体呈向北开放的马蹄形地势.流域夏季炎热潮湿,冬季温暖湿润,春秋季节多雨,气候湿热,植被丰茂,森林覆盖率达 54.4%[25].湘江流域是长江中下游重点生态区,也是全国重点产粮区,其粮食生产对于区域乃至全国粮食安全具有重要意义.同时,有色金属产业历史粗放发展模式下,工业废气、废水、废渣排放造成矿区等周边区域环境污染现象严峻,作物生长环境污染导致农产品安全事件频发[12,26].

1.2 数据来源

1.2.1 $PM_{2.5}$ 浓度数据 $PM_{2.5}$ 浓度数据来源于中国高分辨率高质量近地表空气污染物数据集(China HighPM$_{2.5}$,https://zenodo.org/records/6398971)[26-27],空间分辨率为 1km×1km,时间分辨率为日均、月均和年均.该数据集针对遥感气溶胶光学厚度(AOD)缺失问题,以时空-极端随机树模型为核心构建多源

遥感数据缺失填补算法,融合丰富卫星遥感数据、地基观测、大气再分析、排放清单和模式模拟等多模态时空大数据构建长时序中国无缝 $PM_{2.5}$ 浓度数据.$PM_{2.5}$ 格点数据与地基站点实测数据验证结果表明,该数据具有较高精度(验证 R^2=0.92,均方根误差 RMSE=10.76μg/m^3).

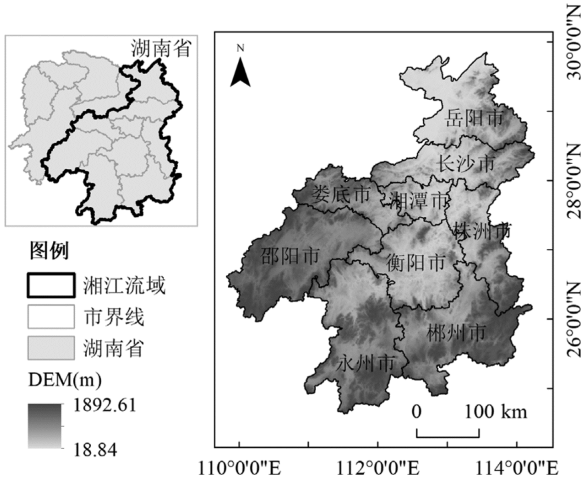


图 1　研究区概况

Fig.1　Study area

审图号:湘 S(2024)061 号

1.2.2　气象数据　大气颗粒物干沉降速率主要依赖于土地利用类型、湍流结构及气象条件等,用于估算干沉降通量的气象要素数据包括 10m 风速、地表摩擦速度,用于随机森林建模的气象要素除 10m 风速和摩擦速度外还包括 2m 气温、相对湿度、地面压力、总降水量及边界层高度.采用 2000~2021 年第五代大气再分析数据集(ERA5−land,https://cds.climate.copernicus.eu/datasets/reanalysis−era5−land?tab=download),空间分辨率为 0.1°×0.1°,时间分辨率为小时.对原始数据进行投影、重采样、研究区域裁剪、均值计算等预处理,得到空间分辨率为 1km,时间分辨率为月均和年均的气象要素数据.其中,10m 风速由 10m 的 u 风分量和 10m 的 v 风分量合成,相对湿度由 2m 气温、地表气压及 2m 露点温度计算得出[28].已有研究结果表明,ERA5 再分析气象数据与地面实测数据一致性较高[29].

1.2.3　地表数据　地表数据包括土地利用数据、归一化植被指数(NDVI)数据及数字高程模型(DEM).2000~2021 年土地利用数据来源于武汉大学发布的中国年度土地覆盖数据集(CLCD,https://zenodo.org/records/5816591)[30],空间分辨率为 30m,时间分辨率为年,原始数据划分为耕地、林地、灌木、草地、水体、冰雪、裸土、建设用地和湿地九类.该数据依托 GEE 平台采用 Landsat TM/ETM/OLI 遥感影像,基于 5463 个目视解译样本通过随机森林分类器得到土地利用分类结果,总体准确率达到 76.45%~82.51%.NDVI 数据选取美国国家航天局发布的中分辨率成像光谱仪(MODIS,https://ladsweb.modaps.eosdis.nasa.gov/search/order/1/MOD13A3—61)MOD13A3 数据产品,空间分辨率及时间分辨率分别为 1km、每月,对原始数据进行镶嵌、重采样、裁剪及均值计算等预处理得出湘江流域月均、年均 NDVI.DEM 采用美国国家航天局发布的 30m 分辨率数字高程模型数据(ASTER GDEM V3,https://search.earthdata.nasa.gov/search?q=ASTER%20GDEM).

1.2.4　排放数据　$PM_{2.5}$ 排放清单数据来自清华大学开发的中国多尺度排放清单模型(MEIC v1.4,http://meicmodel.org.cn/?page_id=560)[31],数据涵盖电力、工业、民用、交通 4 个部门,空间分辨率为 0.25°×0.25°,时间分辨率为月,对原始数据进行重采样、裁剪等预处理得出 1km 分辨率月均及年均排放量数据.

1.2.5　其他辅助数据　“三区三线”是我国国土空间用途管制的核心框架,通过城镇开发边界、永久基本农田保护红线、生态保护红线三条控制线划定城镇空间、农业空间、生态空间.本研究使用的湘江流域“三区三线”矢量数据主要来自于 2018 年永久基本农田划定成果及“三区三线”划定初步成果.大气颗粒物组分数据为湖南省长沙生态环境监测中心提供的大气环境颗粒物组分自动监测站历史数据.组分监测站通过连续、自动采集环境空气中的颗粒物,并采用配置的在线元素监测仪基于 X 射线荧光法检测颗粒物中铁、锌、镉、砷等 24 种无机元素日均浓度水平.长沙市包含马坡岭、环保学院、高新区环保局 3 个站点,分别位于长沙市主城区西部、东部和南部.由于数据可获取性限制,本研究采用 2021 年 $PM_{2.5}$ 中铬(Cr)、砷(As)、铅(Pb)、镉(Cd)、锌(Zn)、镍(Ni)元素含量日均值 5%~95%分位数计算 2021 年年均值.

1.3　研究方法

1.3.1　$PM_{2.5}$ 干沉降速率及通量估算　为厘清湘江

流域 $PM_{2.5}$ 干沉降特征,准确把握区域 $PM_{2.5}$ 干沉降长时序时空演化规律,采用 Zhang 等[32]开发的经验参数模型,借助遥感反演、数值模式模拟等多源数据估算湘江流域 $PM_{2.5}$ 干沉降速率及通量,具体计算方法见式(1)[33]:

$$D_{i,j}=V_{\mathrm{d}}\cdot C_{i,j} \tag{1}$$

式中:$D_{i,j}$ 为网格(i,j)的 $PM_{2.5}$ 干沉降通量;V_{d} 表示网格(i,j)的 $PM_{2.5}$ 干沉降速率,表征干沉降过程的颗粒物去除效率;$C_{i,j}$ 为网格(i,j)的近地面 $PM_{2.5}$ 浓度.

作为干沉降模拟的关键参数,干沉降速率 V_{d} 采用式(2)计算:

$$V_{\mathrm{d}}=V_{\mathrm{g}}+(R_{\mathrm{a}}+R_{\mathrm{s}})^{-1} \tag{2}$$

式中:V_{g} 为颗粒物重力沉降速率,主要依赖于颗粒粒径分布,本研究采用常数 3.7×10^{-5}m/s[33]表征 $PM_{2.5}$ 重力沉降速率;R_{a} 表示冠层上方空气动力学阻力,它影响大气层中颗粒物向植物表面的传输;R_{s} 为表面阻力,R_{a} 和 R_{s} 计算式如下[34]:

$$R_{\mathrm{a}}=u_z/u_*^2 \tag{3}$$

$$R_{\mathrm{s}}=1/V_{\mathrm{ds}}=1/a_1\cdot u_* \tag{4}$$

式中:u_z 和 u_*分别代表高度 10m 处的风速和摩擦速度.式(4)中 R_{s} 参数化为不同地表土地利用类型上摩擦速度的线性函数,其中 a_1 是依赖于地表土地利用类型的经验常数[32].

1.3.2 干沉降通量影响要素贡献度解析 $PM_{2.5}$ 干沉降是受人类活动、气象条件及地表要素等诸多因素动态变化影响的复杂过程,为全面厘清影响因素对湘江流域 $PM_{2.5}$ 干沉降的影响特征,分别采用模拟复杂非线性关系应用广泛的随机森林(RF)[35]、极限学习机(ELM)[36]、极端随机树(ERT)[37]3 种方法拟合月均 $PM_{2.5}$ 干沉降通量.从人为排放、地表条件、气象要素 3 个方面选取 13 个因素作为输入特征.其中,人为排放包括电力排放、工业排放、民用排放和交通排放.地表条件方面选择 DEM 和 NDVI.气象要素包括气温、风速、摩擦速度、相对湿度、地表压力、边界层高度和降水量.为捕捉解释变量和自变量之间的空间非平稳性,以月均、1km 像元为基本时空单位,采用 3×3 移动窗口遍历研究区域,随机选择移动窗口中 90%数据作为训练集,预留剩余 10%数据作为验证集,逐像元构建干沉降通量模拟模型(见公式(5)).随机森林模型设置决策树数量为 100,不设置树的最大深度.极限学习机模型设置隐含层神经元数量为 1000,正则化系数为 0.1.极端随机树模型设置决策树数量为 100,不设置树的最大深度.通过拟合决定系数 R^2、验证决定系数 R^2 评估模型泛化能力,选取拟合性能最佳的模型.最终,基于基尼(Gini)不纯度下降准则[38]计算 13 个要素的特征重要性(VIM),揭示影响因素的贡献力特征及其空间分异规律.VIM 表示变量在模型所有树中节点分裂后 Gini 不纯度的平均改变量,具体计算方式见式(6)~(9).

$$D_{(i\pm1,j\pm1)}\sim F(x^1{}_{(i\pm1,j\pm1)},\cdots,x^{13}{}_{(i\pm1,j\pm1)}) \tag{5}$$

式中:D 为 $PM_{2.5}$ 干沉降通量;(i,j)表示网格行列号;F 为构建的拟合模型;$x^1,\ldots,x^{13}$ 分别表示模型输入特征,包括电力排放、工业排放、民用排放、交通排放、DEM、NDVI、气温、风速、摩擦速度、相对湿度、地表压力、边界层高度和降水量.

$$\mathrm{GI}_m=\sum_{k=1}^{k}\hat{p}_{mk}(1-\hat{p}_{mk}) \tag{6}$$

$$\mathrm{VIM}_{jm}=\mathrm{GI}_m-\mathrm{GI}_l=\mathrm{GI}_r \tag{7}$$

$$\mathrm{VIM}_{nj}=\sum_{m=1}^{M}\mathrm{VIM}_{jm} \tag{8}$$

$$\mathrm{VIM}_j=\frac{1}{n}\sum_{m=1}^{M}\mathrm{VIM}_{ij} \tag{9}$$

式中:GI 为 Gini 不纯度指数;VIM 表示特征重要性;m 表示模型节点,l、r 为节点 m 分裂后的两个新节点;j 为输入变量;k 为样本集的类别数;p_{mk} 为节点 m 样本中属于第 k 类的概率估计值;n 表示模型中决策树的数量.

2 结果与讨论

2.1 $PM_{2.5}$ 干沉降时序演化规律

2000~2021 年湘江流域整体及城镇空间、农业空间、生态空间多年平均近地面 $PM_{2.5}$ 浓度分别为 43.80μg/m^3、51.86μg/m^3、45.44μg/m^3、40.38μg/m^3.近 20 年间,流域整体与“三区”$PM_{2.5}$ 浓度均先升后降,呈现倒“U”字型趋势(图 2).根据年均 $PM_{2.5}$ 浓度变化态势,可将湘江流域大气细颗粒物污染时间变化趋势划分为 3 个阶段.持续上升阶段:2000~2008 年,$PM_{2.5}$ 浓度显著上升,变化斜率为 1.16μg/(m^3·a).该阶段区域经济社会发展迅速,粗放的工业化及城市化进程[39]伴随着颗粒物大量排放造成空气污染持续加剧.平缓波动阶段:2009~2013 年,区域 $PM_{2.5}$ 在 46.82~50.83μg/m^3 区间内波动变化.2007 年长株潭城市群获批全国两型社会建设综合配套改革试验区,开始了湘江流域的大气污染治理,该阶段部分地区

$PM_{2.5}$ 浓度下降[40],但湘江流域区域整体降污成效不明显.剧烈下降阶段:2014~2021 年,$PM_{2.5}$ 浓度显著下降斜率为−3.16μg/(m^3·a).2013 年国家颁布《大气污染防治计划》,提出切实改善空气质量的计划举措,经过一系列具体降污措施的实施,区域大气颗粒物污染状况好转,表明国家、地方各级制定的大气污染防治措施对于缓解湘江流域大气污染具有较好效果.2021 年 $PM_{2.5}$ 浓度达到 20 年间最低值 27.80μg/m^3,低于国家二级标准(35μg/m^3),但距离国家一级标准(15μg/m^3)仍有较大差距.

如图 3 所示,研究区城镇空间沉降通量最高,多年平均达 1.42g/m^2,其次为农业空间,达到 1.06g/m^2 略高于流域整体均值 1.00g/m^2,生态空间最低,仅为 0.80g/m^2.年均干沉降通量变化趋势与 $PM_{2.5}$ 浓度基本一致,均呈现先增后降趋势,流域 2000~2007 和 2013~2021 年变化斜率分别为 0.07g/(m^2·a) 和 −0.08g/(m^2·a).其中,2013 年干沉降通量达到峰值 1.28g/m^2,2021 年降低至谷值 0.58g/m^2.$PM_{2.5}$ 干沉降速率则呈现波动变化,均值范围为 0.06~0.07cm/s,近 20 年来无显著线性变化趋势(P>0.05).值得注意的是,区域整体年均干沉降速率与摩擦速度时间变化趋势相似,表明湘江流域干沉降速率可能主要受气象条件影响,而风速等气象要素受地表土地利用变化、气候变化等多因素交互综合影响[8],因此呈现较为复杂的变化态势.

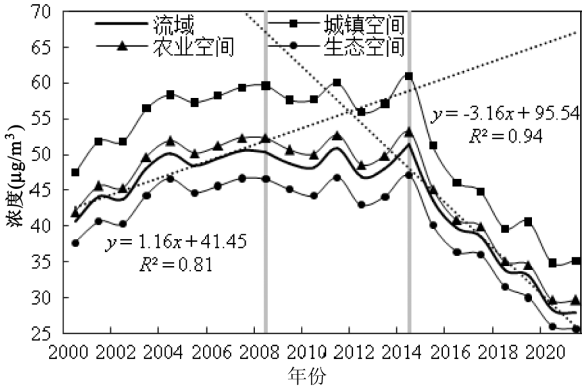


图 2　2000~2021 年湘江流域年均 $PM_{2.5}$ 浓度时序变化

Fig.2　Temporal variation of annual average $PM_{2.5}$ concentration in the Xiangjiang River Basin from 2000 to 2021

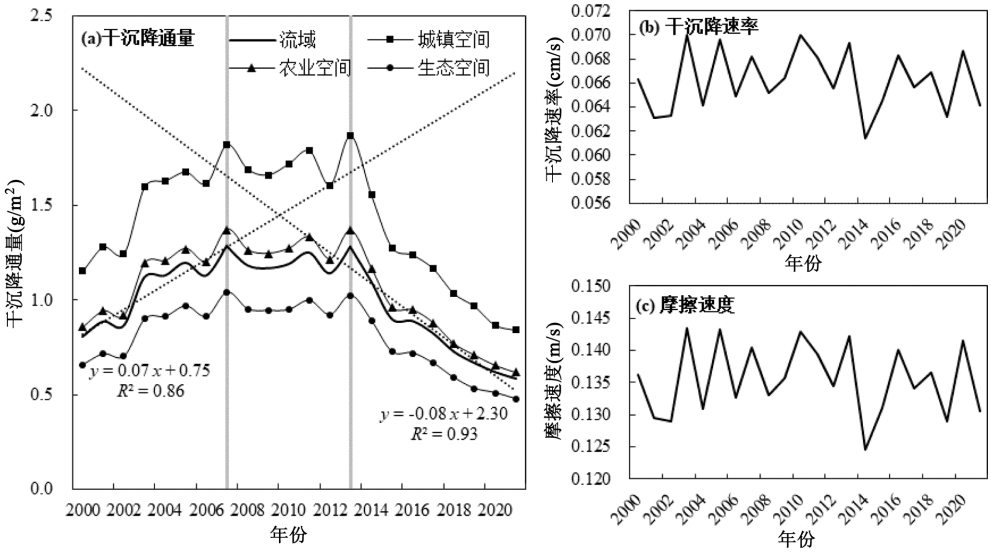


图 3　湘江流域 2000~2021 年年均(a)干沉降通量、(b)干沉降速率及(c)摩擦速度时序变化

Fig.3　Temporal variation of (a) dry deposition flux, (b) dry deposition velocity, and (c) friction velocity in the Xiangjiang River Basin from 2000 to 2021

2.2　$PM_{2.5}$ 干沉降空间变化特征

2000~2021 年湘江流域多年平均 $PM_{2.5}$ 浓度空间分布及年均 $PM_{2.5}$ 浓度变化趋势见图 4.$PM_{2.5}$ 浓度呈现“北高南低、中心高四周低”的空间格局.高值区域主要位于长株潭城市群及岳阳市,$PM_{2.5}$ 浓度以此为中心向四周降低.作为湘江流域经济活动最活跃的区域,长株潭城市群及岳阳市人口与经济活动密集,污染排放量较大,且中心地势低、周边地势高导致污染物扩散困难.低值区则主要位于郴州市南部、株洲市南部、永州市南部及邵阳市西南部.这些

区域为流域经济欠发达地区,人类活动水平低、本地排放较少,且以林地、草地为主要土地利用类型,海拔较高等地理条件有利于颗粒物稀释.变化趋势分析结果显示,2000~2021 年湘江流域所有区域均呈 $PM_{2.5}$ 降低趋势,尤其是城镇空间,平均变化趋势为 −0.78μg/(m^3·a).表明近 20 年间淘汰落后产能、产业结构优化调整、推动绿色转型等大气颗粒物污染减排措施对于缓解区域大气颗粒物污染具有良好效果[41].其中,位于岳阳市西部、长沙市西部、湘潭市西部和娄底市等 $PM_{2.5}$ 浓度高值区域下降趋势显著,大气污染状况改善效果明显.

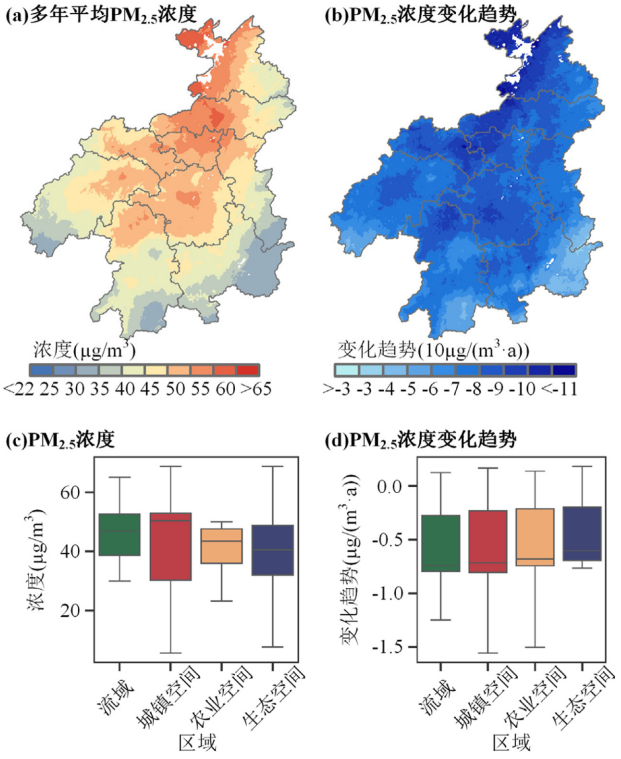


图 4 湘江流域多年平均 $PM_{2.5}$ 浓度及年均 $PM_{2.5}$ 浓度时间变化趋势(P<0.05)

Fig.4 Spatial distribution of multi−year mean $PM_{2.5}$ concentration and temporal trend (P<0.05) of annual average $PM_{2.5}$ concentration in Xiangjiang River Basin

湘江流域 $PM_{2.5}$ 干沉降通量空间分布及变化趋势如图 5 所示.多年平均干沉降通量均值范围为 0.4~2.6g/m^2.在空间上,干沉降通量及干沉降速率分布与 $PM_{2.5}$ 浓度基本一致,呈现出显著空间异质性,由长株潭城市群及岳阳市西部等低海拔区域向外逐步降低,且城镇空间显著高于农业空间及生态空间.高值区域主要集中于长株潭城市群主城区、岳阳市西部及衡阳市中部.低值区域位于湘江流域东部、西部及南部林地覆盖的高海拔区域,可将上述城市列为重点监控区域,加强城镇空间及农业空间大气颗粒物沉降监测及空间精准溯源,从源头预控及过程阻断两方面管控大气沉降途径的土壤、水体污染风险.2000~2021 年期间,湘江流域大部分区域 $PM_{2.5}$ 干沉降通量呈显著下降趋势,平均变化率为−0.017g/(m^2·a).“三区空间”中城镇空间干沉降通量下降趋势最强(−0.026g/(m^2·a)),农业空间次之(−0.018g/(m^2·a)),生态空间最弱(−0.013g/(m^2·a)).显著下降区域主要分布于 $PM_{2.5}$ 浓度高值区域包括岳阳市西部、长沙市中部、湘潭市、衡阳市中部及娄底市东部.

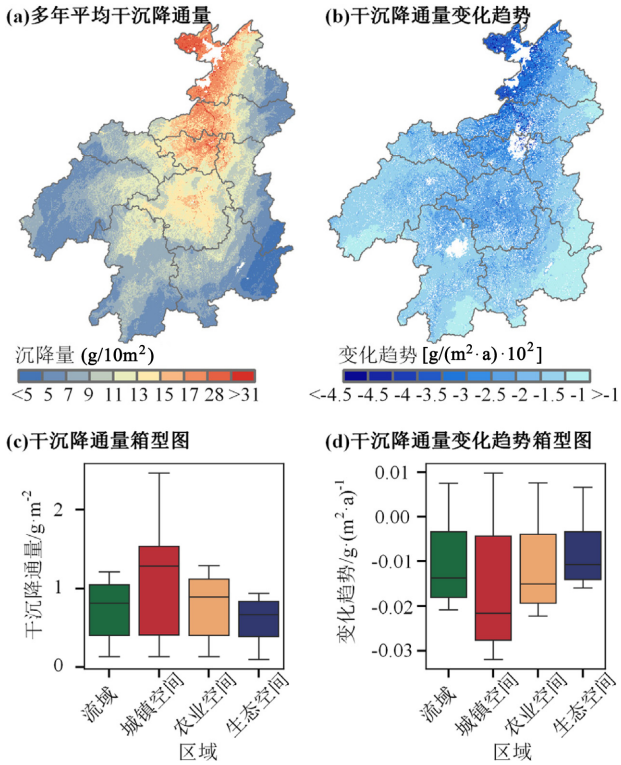


图 5 湘江流域多年平均 $PM_{2.5}$ 干沉降通量及年均 $PM_{2.5}$ 干沉降通量时间变化趋势(P<0.05)

Fig.5 Spatial distribution of multi−year mean dry deposition flux and temporal trend (P<0.05) of annual average dry deposition flux in Xiangjiang River Basin

为进一步分析大气颗粒物重金属沉降特征,根据 2021 年大气颗粒物重金属组分监测数据结合 $PM_{2.5}$ 沉降速率初步估算长沙市市区重金属干沉降通量.结果表明,长沙市 $PM_{2.5}$ 中重金属年均沉降通量大小为 Zn(0.27~2.01)、As(0.24~1.60)、Pb(0.13~

0.65)、Cr(0.26~0.45)、Ni(0.27~0.41)和 Cd(0.09~0.24),与已有研究结果基本吻合[42].三个站点重金属沉降通量差异显著,表明大气颗粒物重金属含量及沉降通量具有较强的空间异质性.

湘江流域重金属污染严峻,准确把握大气重金属含量及沉降特征是流域重金属污染治理的重要环节.然而,受限于当前监测站点数量不足(截止至2024 年 3 月,湘江流域仅建成 11 个大气环境颗粒物组分自动监测站),尚难以精确感知重金属含量时空动态变化.重金属干沉降通量受污染来源影响显著,未来湘江流域应加强不同典型污染来源场景下大气颗粒物组分及沉降的系统监测,增设不同污染场景组分自动监测站点.在此基础上,通过污染源解析及影响要素贡献特征挖掘,研究顾及污染来源差异的颗粒物重金属含量时空建模方法,模拟大范围大气颗粒物重金属含量分布.融合卫星遥感、数值模式等多源数据估算大气重金属沉降通量分布,解析大气重金属沉降时空动态规律,定量分析重金属沉降途径对土壤、作物的污染变化贡献度以支持空间差异化重金属污染管控策略的制定,精准服务于区域气、土、水重金属污染治理.未来还应发展耦合重点污染源企业烟气重金属排放在线监测与沉降速率动态估算的企业周边区域大范围、低成本大气沉降风险动态评估方法.在此基础上,针对大气沉降异常高值点位结合大气污染精准溯源算法挖掘风险来源企业,服务于重金属污染精准防治能力提升.

2.3　$PM_{2.5}$ 干沉降主要影响机制

十折交叉验证结果表明,RF 模型性能最佳,拟合 R^2>0.96,验证集 R^2>0.86(ELM 模型拟合 R^2>0.60,验证 R^2>0.59;ERT 模型拟合 R^2>0.94,验证 R^2>0.83).RF 模型精度可靠,能充分表征影响因素与干沉降通量间的非线性关系,不存在明显过拟合现象,可用于定量解析影响因素贡献力.如图 6 所示,湘江流域及“三区空间”影响因素对 $PM_{2.5}$ 干沉降通量的贡献力均呈现人为排放(0.53~2.44)>气象要素(0.44~0.86)>地表条件(0.27~0.41)特征.流域影响力均值排名前四的要素分别为民用排放(2.43±0.04)、气温(0.71±0.01)、工业排放(0.69±0.02)和相对湿度(0.59±0.01).鉴于此,湘江流域在制定大气、土壤污染防治策略时应着重考虑以上因素,有关部门应加强对排放源及气象要素的监测及预测能力.人为排放作为颗粒物污染的根本内因显著影响 $PM_{2.5}$ 浓度空间分布,进而直接影响干沉降通量分布格局.已有研究表明,一次污染排放源中工业源及民用源对 $PM_{2.5}$ 污染的贡献最大[43].气象条件中,高温增强大气垂直对流,促进颗粒物扩散,进而降低近地面沉降通量[8],同时加速光化学反应促进二次气溶胶生成间接增加颗粒物浓度.较高的相对湿度利于颗粒物吸湿增长,一方面加强液相和非均项反应使 $PM_{2.5}$ 浓度升高[44],但另一方面粒径增大会显著提升颗粒物干沉降速率[8].

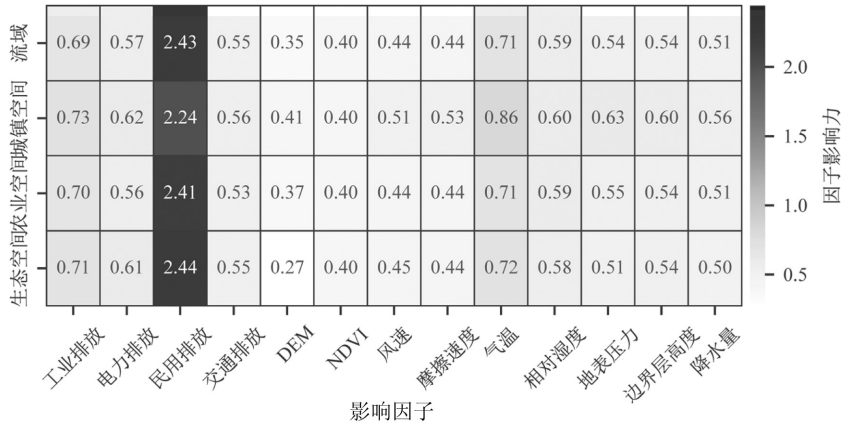


图 6　湘江流域 $PM_{2.5}$ 干沉降通量影响因子影响力均值统计

Fig.6　Statistics on the contribution of influencing factors to the dry deposition flux in the Xiangjiang River Basin

影响因素贡献力空间分布显示(图 7),民用源排放主要影响区域包括娄底市西北部、邵阳市中部及南部、永州市北部及郴州市东南部.受工业源主导的区域有岳阳市中部、长沙市东部、湘潭市、衡阳市南部、邵阳市西部、郴州市南部及永州市中部.除污染源排放外,城镇空间受气温影响最为显著,近地面

气温主要影响区域包括长株潭城市群城区、岳阳市中部、衡阳市城区、永州市中部及南部和郴州市城区.相对湿度影响较大的区域为岳阳市东部、长沙市东部、株洲市中东部、衡阳市东北部、娄底市西部、永州市北部及南部和郴州市西部.$PM_{2.5}$ 干沉降影响机制具有空间差异性,应针对不同区域影响要素贡献特征制定适宜的污染防控措施.值得注意的是,由于排放清单数据空间分辨率较低(0.25°×0.25°),部分区域影响因素贡献力解析结果存在明显“斑块”现象.构建本地化高时空分辨率排放清单是深入开展干沉降机制时空解析,加强大气颗粒物沉降过程机理理解的关键所在.

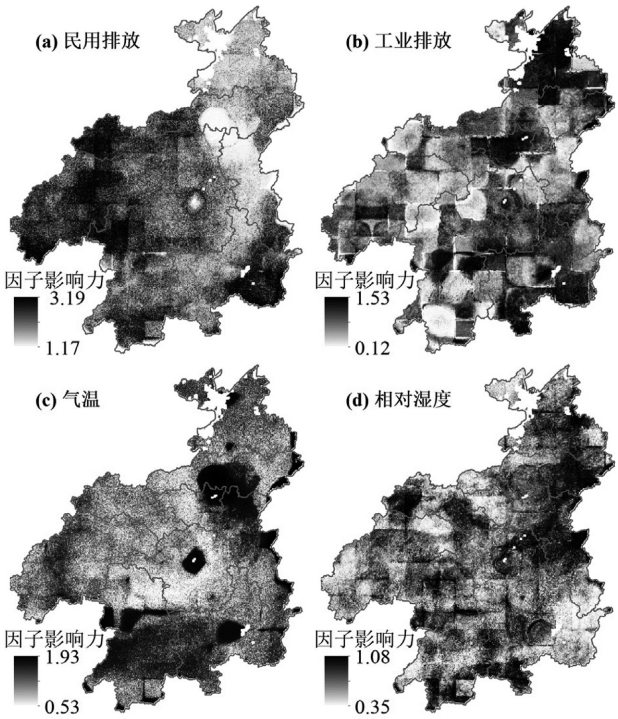


图 7 湘江流域 $PM_{2.5}$ 干沉降通量主控因素影响力空间分布

Fig.7 Spatial distribution of contribution of dominant factors to the dry deposition flux in the Xiangjiang River Basin

与此同时,相较于气象要素,人为大气污染排放更易于管控,然而当前大气颗粒物重金属等组分排放相关研究较少,源头不清导致大气重金属污染溯源与治理难以开展,后续研究应以大气重金属等组分排放动态表征为着力点.随着大气污染治理工作的深入,末端治理空间和直接减排潜力日益减小,在此背景下,治理工作亟待从短期应急管控向长远规划调控转变,其中承载污染排放、沉降结构优化的国土空间规划展现出污染长期调控潜力.未来可以根据干沉降通量空间分布格局及影响机制,深入挖掘城市景观空间格局对大气沉降的影响,研究面向大气污染调控的城市形态及地表景观配置优化策略.

3 结论

3.1 在时间演化方面,湘江流域近 20 年间大气污染形式严峻,多年平均 $PM_{2.5}$ 浓度为 43.80μg/m^3,高于国家二级标准(35 μg/m^3).近 20 年间,年均 $PM_{2.5}$ 浓度变化呈倒“U”字型趋势.干沉降估算结果表明,2000~2021 年干沉降通量呈现先增后降趋势,2000~2007、2013~2021 年变化斜率分别为 0.07g/(m^2·a)、−0.08g/(m^2·a).湘江流域城镇空间沉降通量最高,其次为农业空间,生态空间最低.

3.2 在空间特征方面,$PM_{2.5}$ 浓度及干沉降通量分布均呈“北高南低、中心高四周低”格局.区域整体 $PM_{2.5}$ 浓度呈下降趋势,其中城镇空间下降趋势最强(−0.78μg/(m^3·a)).近 20 年间区域大部分地区干沉降通量下降,流域平均变化率为−0.017g/(m^2·a).显著下降区域主要分布于 $PM_{2.5}$ 浓度高值区域包括岳阳市西部、长沙市中部、湘潭市、衡阳市中部及娄底市东部.

3.3 在影响机制方面,人为排放(0.53~2.44)和气象要素(0.44~0.86)是湘江流域整体及“三区”$PM_{2.5}$ 干沉降的主导因素,其中民用排放(2.43±0.04)、气温(0.71±0.01)、工业排放(0.69±0.02)和相对湿度(0.59±0.0)为贡献力最高的影响因素.$PM_{2.5}$ 干沉降影响机制空间差异显著,湘江流域应针对不同区域影响要素贡献特征制定大气污染防控措施,控制污染跨圈层传输.

参考文献:

[1] 姜 华,高 健,李 红,等.我国大气污染协同防控理论框架初探 [J]. 环境科学研究, 2022,35(3):601−610.
Jiang H, Gao J, Li H, et al. Preliminary research on theoretical framework of cooperative control of air pollution in China [J]. Research of Environmental Sciences, 2022,35(3):601−610.

[2] 付兴宇,程水源,王传达.保定市不同天气型下 $PM_{2.5}$ 和 O_3 复合污染防治策略 [J]. 中国环境科学, 2025,45(7):3582−3592.
Fu X Y, Cheng S Y, Wang C D. Study on prevention and control strategies of $PM_{2.5}$ and O_3 combined pollution under different weather patterns in Baoding City [J]. China Environmental Science, 2025,45(7):3582−3592.

[3] Kim K H, Kabir E, Kabir S. A review on the human health impact of airborne particulate matter [J]. Environment International, 2015,74:

136−143.

[4] Thompson J E. Airborne particulate matter human exposure and health effects [J]. Journal of Occupational and Environmental Medicine, 2018,60(5):392−423.

[5] Wei J, Li Z, Lyapustin A, et al. First close insight into global daily gapless 1km $PM_{2.5}$ pollution, variability, and health impact [J]. Nature Communications, 2023,14(1):8349.

[6] Liu B Y, Wang L L, Zhang L, et al. Evaluating urban and nonurban $PM_{2.5}$ variability under clean air actions in China during 2010~2022 based on a new high−quality dataset [J]. International Journal of Digital Earth, 2024,17(1):2310734.

[7] Wu Q, Wang S, Wang L, et al. Spatial distribution and accumulation of Hg in soil surrounding a Zn/Pb smelter [J]. Science of the Total Environment, 2014,496:668−677.

[8] Mariraj Mohan S. An overview of particulate dry deposition: Measuring methods, deposition velocity and controlling factors [J]. International Journal of Environmental Science and Technology, 2016,13(1):387−402.

[9] 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 [J]. Science China−Earth Sciences, 2019,62(12):1885−1902.

[10] 刘　进,潘月鹏,师华定.华北地区农田土壤镉来源及大气沉降的贡献 [J]. 农业环境科学学报, 2022,41(8):1698−1708.
Liu J, Pan Y P, Shi H D. Atmospheric deposition as a dominant source of cadmium in agricultural soils of north China [J]. Journal of Agro−Environment Science, 2022,41(8):1698−1708.

[11] 杨　雳,董欣平,林　静,等.苏南太湖流域农田土壤重金属输入输出清单构建及风险预警 [J]. 中国环境科学, 2024,44(9):5085−5098.
Yang L, Dong X P, Lin J, et al. Input−output inventory and risk early warning of heavy metal in farmland soil in Taihu Lake Basin, southern Jiangsu [J]. China Environmental Science, 2024,44(9):5085−5098.

[12] 郭朝晖,肖细元,陈同斌,等.湘江中下游农田土壤和蔬菜的重金属污染 [J]. 地理学报, 2008,1:3−11.
Guo Z H, Xiao X Y, Chen T B, et al. Heavy metal pollution of soils and vegetables from midstream and downstream of Xiangjiang River [J]. Acta Geographica Sinica, 2008,1:3−11.

[13] Pan Y P, Wang Y S. Atmospheric wet and dry deposition of trace elements at 10 sites in Northern China [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2015,15(2):951−972.

[14] 王　姝,冯徽徽,邹　滨,等.大气污染沉降监测方法研究进展 [J]. 中国环境科学, 2021,41(11):4961−4972.
Wang S, Feng H H, Zou B, et al. Research progresses on deposition monitoring of air pollution [J]. China Environmental Science, 2021, 41(11):4961−4972.

[15] 林官明,蔡旭晖,胡　敏,等.大气气溶胶干沉降研究进展 [J]. 中国环境科学, 2018,38(9):3211−3220.
Lin G M, Cai X H, Hu M, et al. An overview of atmospheric aerosol dry deposition [J]. China Environmental Science, 2018,38(9):3211−3220.

[16] Pan Y, Liu J, Zhang L, et al. Bulk Deposition and Source Apportionment of Atmospheric Heavy Metals and Metalloids in Agricultural Areas of Rural Beijing during 2016~2020 [J]. Atmosphere, 2021,12(2):283.

[17] Vithanage M, Bandara P C, Novo L A B, et al. Deposition of trace metals associated with atmospheric particulate matter: Environmental fate and health risk assessment [J]. Chemosphere, 2022,303:135051.

[18] Zhao J, Zhang Y, Xu H, et al. Trace elements from ocean−going vessels in East Asia: Vanadium and nickel emissions and their impacts on air quality [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2021,126(8):e2020JD033984.

[19] Angeles Gonzalez M, Vivanco M G, Palomino I, et al. Modelling some heavy metals air concentration in Europe [J]. Water Air and Soil Pollution, 2012,223(8):5227−5242.

[20] 周广强,许建明,殷长秦,等.CMA−GFS 驱动长三角主要大气污染物数值预报 [J]. 中国环境科学, 2025,45(7):3593−3603.
Zhou G Q, Xu J M, Ying C Y, et al. Numerical prediction of major atmospheric pollutants over the Yangtze River Delta region driven by CMA−GFS [J]. China Environmental Science, 2025,45(7):3593−3603.

[21] 李正强,谢一凇,张　莹,等.大气气溶胶成分遥感研究进展 [J]. 遥感学报, 2019,23(3):359−373.
Li Z Q, Xie Y S, Zhang Y, et al. Advance in the remote sensing of atmospheric aerosol composition [J]. Journal of Remote Sensing, 2019,23(3):359−373.

[22] Yu P Y, Shao X Y, Wang M D, et al. Effects of atmospheric deposition on heavy metal contamination in paddy field systems under different functional areas in ChangZhuTan, Hunan Province, China [J]. Science of the Total Environment, 2024,933:172953.

[23] Liao B H, Guo Z H, Probst A, et al. Soil heavy metal contamination and acid deposition: experimental approach on two forest soils in Hunan, Southern China [J]. Geoderma, 2005,127(1/2):91−103.

[24] 罗　佳,黎　蕾,姜　芸,等.湖南省森林生态系统服务功能价值评估 [J]. 生态科学, 2022,41(4):70−77.
Luo J, Li L, Jiang Y, et al. Evaluation of service function of forest ecosystem in Hunan province [J]. Ecological Science, 2022,41(4): 70−77.

[25] 许友泽,刘锦军,成应向,等.湘江底泥重金属污染特征与生态风险评价 [J]. 环境化学, 2016,35(1):189−198.
Xu Y Z, Liu J J, Cheng Y X, et al. Characteristics and ecological risk assessment of heavy metals contamination in sediments of the Xiangjiang River [J]. Environmental Chemistry, 2016,35(1):189−198.

[26] Wei J, Li Z, Lyapustin A, et al. Reconstructing 1−km−resolution high−quality $PM_{2.5}$ data records from 2000 to 2018 in China: spatiotemporal variations and policy implications [J]. Remote Sensing of Environment, 2021,252:112136.

[27] Wei J, Li Z, Cribb M, et al. Improved 1km resolution $PM_{2.5}$ estimates across China using enhanced space−time extremely randomized trees [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2020,20(6):3273−3289.

[28] Bolton D. The computation of equivalent potential temperature [J]. Monthly Weather Review, 1980,108(7):1046−1053.

[29] Ramon J, Lledo L, Torralba V, et al. What global reanalysis best represents near−surface winds? [J]. Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society, 2019,145(724):3236−3251.

[30] Yang J, Huang X. The 30m annual land cover dataset and its dynamics in China from 1990 to 2019 [J]. Earth System Science Data, 2021,13 (8):3907−3925.

[31] Li M, Liu H, Geng G, et al. Anthropogenic emission inventories in

China: A review [J]. National Science Review, 2018,5(4):603−603.

[32] Zhang L, He Z. Technical Note: An empirical algorithm estimating dry deposition velocity of fine, coarse and giant particles [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2014,14(7):3729−3737.

[33] Lestari P, Oskouie A K, Noll K E. Size distribution and dry deposition of particulate mass, sulfate and nitrate in an urban area [J]. Atmospheric Environment, 2003,37(18):2507−2516.

[34] García De Jalón S, Burgess P J, Curiel Yuste J, et al. Dry deposition of air pollutants on trees at regional scale: A case study in the Basque Country [J]. Agricultural and Forest Meteorology, 2019,278:107648.

[35] Breiman L. Random forests [J]. Machine Learning, 2001,45(1):5−32.

[36] Huang G, Zhu Q, Siew C. Extreme learning machine: a new learning scheme of feedforward neural networks [C]. Budapest, Hungary: IEEE, 2004:985−990.

[37] Geurts P, Ernst D, Wehenkel L. Extremely randomized trees [J]. Machine Learning, 2006,63(1):3−42.

[38] Strobl C, Boulesteix A L, Zeileis A, et al. Bias in random forest variable importance measures: Illustrations, sources and a solution [J]. Bmc Bioinformatics, 2007,8:25.

[39] 杨 伶,邓 敏,王金龙,等.近 40 年来洞庭湖流域土地利用及生态风险时空演变分析 [J]. 生态学报, 2021,41(10):3929−3939.
Yang L, Deng M, Wang J L, et al. Spatial−temporal evolution of land use and ecological risk in Dongting Lake Basin during 1980~2018 [J]. Acta Ecologica Sinica, 2021,41(10):3929−3939.

[40] 丁 莹,冯徽徽,邹 滨,等.长株潭城市群气溶胶时空分布与传输规律 [J]. 中国环境科学, 2020,40(5):1906−1914.
Ding Y, Feng H H, Zou B, et al. Spatial−temporal distribution and transport characteristic of aerosol in Changsha−Zhuzhou−Xiangtan urban agglomeration [J]. China Environmental Science, 2020,40(5):1906−1914.

[41] 艾洪山,周正清,李 科.湖南省大气污染防治特护期政策对经济增长的影响 [J]. 中国人口·资源与环境, 2022,32(10):35−49.
Ai H S, Zhou Z Q, Li K. Impact of the policy of air pollution prevention special period on economic growth in Hunan Province [J]. China Population, Resources and Environment, 2022,32(10):35−49.

[42] 陈其永,郜允兵,倪润祥,等.2000~2018 年我国大气重金属沉降通量时空变化特征 [J]. 环境科学, 2022,43(9):4413−4424.
Chen Q Y, Gao Y B, Ni R X, et al. Temporal and spatial variation characteristics of heavy metal in atmospheric deposition in China from 2000 to 2018 [J]. Environmental Science, 2022,43(9):4413−4424.

[43] 吴文景,常 兴,邢 佳,等.京津冀地区主要排放源减排对 $PM_{2.5}$ 污染改善贡献评估 [J]. 环境科学, 2017,38(3):867−875.
Wu W J, Chang X, Xing J, et al. Assessment of $PM_{2.5}$ pollution mitigation due to emission reduction from main emission sources in the Bejing−Tianjin−Hebei region [J]. Environmental Science, 2017, 38(3):867−875.

[44] 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 [J]. 中国科学:地球科学, 2020,50(4):483−500.
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 [J]. Science China Earth Sciences, 2020,50(4):483−500.

作者简介: 丁 莹(1996−),女,新疆乌鲁木齐人,博士研究生,主要从事大气污染遥感研究.发表论文 10 余篇.YingDing@csu.edu.cn.