

DOI: 10.5846/stxb202012263279

张娇, 刘春琼, 吴波, 杜娟, 史凯. COVID-19 疫情期间城郊森林公园 O_3 变化对 NO_2 减排响应的多重分形模式. 生态学报, 2021, 41(24): 9669-9680.

Zhang J, Liu C Q, Wu B, Du J, Shi K. Multifractal pattern of the response of O_3 concentration change to NO_2 emission reduction in suburban forest park during the COVID-19 epidemic. Acta Ecologica Sinica, 2021, 41(24): 9669-9680.

COVID-19 疫情期间城郊森林公园 O_3 变化对 NO_2 减排响应的多重分形模式

张 娇¹, 刘春琼², 吴 波¹, 杜 娟¹, 史 凯^{2,*}

¹ 吉首大学数学与统计学院, 吉首 416000

² 吉首大学生物资源与环境科学学院, 吉首 416000

摘要: COVID-19 疫情的爆发使得大气 NO_2 排放量急剧减少, 张家界城区 O_3 浓度也随之降低, 然而城郊的国家森林公园内 O_3 浓度却有较大幅度升高。旨在基于多重分形去趋势互相关分析(MFDCCA)方法和自组织临界(SOC)理论来揭示疫情期间张家界不同生态功能区大气 O_3 浓度变化对 NO_2 污染急剧减排的不同响应机制。基于张家界 3 个大气监测站点(未央路、永定新区和袁家界)在疫情期间(2020 年 3 月 1 日—5 月 31 日)和非疫情期间(2019 年同期) NO_2 、 O_3 小时平均浓度数据, 首先应用 MFDCCA 方法对 NO_2 和 O_3 互相关性的多尺度特征进行分析。研究结果发现, 各站点 NO_2 和 O_3 之间的互相关性存在较强的长期持续性和多重分形特征。其中, 疫情期间各站点 NO_2 和 O_3 互相关的长期持续性平均增强了 19.4%, 而多重分形性平均减弱 5.7%, 主要原因与疫情期间 NO_2 集中减排引起 O_3 大气化学反应的变化有关。进而, 应用 SOC 理论对 NO_2 和 O_3 之间互相关长期持续性形成的宏观动力机制进行分析。结果发现, 袁家界站点 O_3 演化处于自组织临界状态, SOC 内禀动力机制是导致疫情期间张家界国家森林公园内 O_3 浓度增高的重要非线性动力学机制。而未央路和永定新区站点 O_3 演化处于亚临界状态, 这也是导致城区站点 O_3 浓度减低的主要原因。正确识别森林生态系统中 O_3 演化的自组织临界特征, 对于高浓度 O_3 生成的风险评估具有重要意义, 有助于科学评估人类旅游活动对森林生态系统造成的影响。

关键词: 新型冠状病毒肺炎; 多重分形去趋势互相关分析; 自组织临界理论; 长期持续性特征

Multifractal pattern of the response of O_3 concentration change to NO_2 emission reduction in suburban forest park during the COVID-19 epidemic

ZHANG Jiao¹, LIU Chunqiong², WU Bo¹, DU Juan¹, SHI Kai^{2,*}

¹ College of Mathematics and Statistics, Jishou University, Jishou 416000, China

² College of Biology and Environmental Sciences, Jishou University, Jishou 416000, China

Abstract: With the outbreak of COVID-19 epidemic, the atmospheric NO_2 emission has decreased sharply. This led to the reduction of O_3 level in urban area of Zhangjiajie, but the increase of it in the suburban National Forest Park. Therefore, this study mainly aims to reveal the different responses dynamic mechanism of atmospheric O_3 concentration changes to the sharp reduction of NO_2 pollution in different ecological function areas of Zhangjiajie during the epidemic period (March 1-May 31, 2020) by Multifractal detrended cross-correlation analysis (MFDCCA) and self-organized critical theory (SOC). Based on the hourly average concentration data of NO_2 and O_3 at three monitoring stations in Zhangjiajie (Weiyang Road, Yongding New District, and Yuanjiajie) during the epidemic period (March 1-May 31, 2020) and non-epidemic period

基金项目: 国家自然科学基金项目(52160024); 湖南省自然科学基金项目(2020JJ4504)

收稿日期: 2020-12-26; **网络出版日期:** 2021-08-05

* 通讯作者 Corresponding author. E-mail: einboplure@163.com

(March 1-May 31, 2019), the MFDCCA was used to analyze the multi-scale characteristics of the cross-correlation between NO_2 and O_3 . The results indicated that the cross-correlation between NO_2 and O_3 at each station had strong long-term persistence characteristics and multi-fractal characteristics. The long-term persistence of the cross-correlation between NO_2 and O_3 increased by 19.4% on average, and the multi-fractal decreased by 5.7% on average, which was mainly related to the change of atmospheric chemical reaction of O_3 caused by the centralized emission reduction of NO_2 during the COVID-19 epidemic control period. Furthermore, SOC was applied to analyze the macro dynamic mechanism of long-term persistence for cross-correlation between NO_2 and O_3 . The results showed that the evolution of O_3 at the Yuanjiajie station was in a self-organized critical state, and the SOC intrinsic dynamic mechanism was an important nonlinear dynamic mechanism that led to the increase of O_3 concentration in Zhangjiajie National Forest Park during the epidemic. However, the O_3 evolution of Weiyang Road and Yongding New Area stations did not yet reach the self-organized critical state, and was only in a subcritical state. This was also the main reason for the decrease of O_3 concentration at urban stations. Accurate identification of the self-organized critical characteristics in O_3 evolution is of great significance for risk assessment for the generation of high O_3 concentrations, and it helps to scientifically assess the impact of human tourism activities on the forest ecosystem.

Key Words: COVID-19 epidemic; multifractal detrended cross-correlation analysis; self-organized critical theory; long-term persistence characteristics

2020 年始,新型冠状病毒肺炎(COVID-19)疫情在全世界蔓延^[1-2],中国各地区广泛实施了包括封闭城市在内的严格防控措施,以遏制疫情的蔓延^[3-4]。人类生产生活的急剧减少导致大气污染物人为排放大大降低^[5-6]。因此对生态环境来说,疫情的发生相当于进行了一场代价极为昂贵的污染减排实验,这也为探究自然生态系统中大气污染的本征演化规律提供了极为难得的机会^[7]。

张家界国家森林公园拥有独特的原始自然生态系统和地貌景观,是世界自然遗产地和国家 5A 级风景名胜,成为中外著名的旅游胜地,旅游产业已成为张家界主要的经济支柱产业^[8-9]。旅游旺季期间,随着旅游人数猛增,机动车使用量和餐饮油烟排放都将大大增加,导致二氧化氮(NO_2)污染排放急剧增加。而淡季期间,人类旅游活动的减少使得 NO_2 的排放大大降低。因此张家界大气 NO_2 浓度波动的多尺度变异性特征,尤其是局部极端波动过程,蕴含着人类旅游活动的印迹和信息。同时, NO_2 是臭氧(O_3)的重要前体物之一^[10-11]。直接排入大气中的氮氧化物 NO_x (NO 和 NO_2) 和挥发性有机物(VOCs)等在光照及高温条件下经过一系列复杂光化学反应生成二次污染物 O_3 ^[12-15]。2020 年,由于疫情原因导致春季旅游旺季期间张家界游客锐减,城区与森林公园内 NO_2 浓度也随之降低。因而疫情期间 NO_2 锐减有可能直接影响着城区和森林公园大气 O_3 的污染演变特征。对比分析疫情期间与过去同期大气观测数据,研究张家界不同生态功能区 O_3 浓度变化对疫情期间 NO_2 污染急剧减排的响应特征及演变动力机制,有助于进一步理解张家界不同生态功能区的 O_3 生成机制差异,这将为森林生态系统功能维护及张家界景区污染排放控制策略的制定提供科学依据。

然而, O_3 生成是一个复杂的非线性光化学过程^[16-17]。不仅与其前体物 NO_x 和 VOCs 的排放有关,还受到气象条件、地形等下垫面复杂特征的影响,各种影响要素之间相互作用和关联^[18-19],使得 O_3 浓度变化与 NO_2 排放在不同时间尺度下存在高度非线性关系^[20-23]。传统的统计学方法难以精准刻画 O_3 及其前体物之间相互作用的复杂非线性特征。分形方法能从宏观、整体的角度表征和分析大气污染物随时间演化的内在标度规律及其复杂非线性特征^[24-25]。多重分形去趋势互相关分析(MFDCCA)^[26] 是多重分形中重要的分析方法之一,可为研究不同浓度波动下 O_3 与其前体物之间互相关性的复杂非线性演化特征提供新的研究手段。目前,该方法已被应用到大气环境领域中。例如,Zhang 等^[27] 基于 MFDCCA 方法研究发现北京和香港细颗粒物浓度与 4 个气象因子的互相关关系具有多重分形和反长期持续性特征。Shen 等^[28] 基于 MFDCCA 方法研究发现南京市空气污染指数与不同气象因素之间的互相关关系具有不同的长期持续性特征。目前尚未将 MFDCCA

方法应用于研究森林生态系统内 NO₂ 与 O₃ 之间复杂非线性相关关系,应用该方法能有效的提取二者互相关的长期持续性等非线性特征。Bak 等^[29] 创建自组织临界态(SOC)理论为阐释大气系统中污染物浓度演化的长期持续性主导机制提供可靠的工具。因此引入 MFDCCA 和 SOC 理论研究张家界不同生态功能区大气 O₃ 浓度演变对 NO₂ 减排响应特征具有重要意义。

为揭示张家界不同生态功能区 O₃ 浓度变化对疫情期间 NO₂ 污染急剧减排的响应机制,本文以疫情发生期间与过去同期张家界各监测点 NO₂、O₃ 小时平均浓度数据为基础资料,应用 MFDCCA 方法对比分析不同时期 O₃ 和 NO₂ 之间相互作用的多重分形特征,并基于 SOC 理论阐明不同生态功能区 NO₂ 污染急剧减排对 O₃ 生成的非线性动力学影响。以期揭示自然生态系统大气环境质量随人类旅游活动变化响应机制,并科学评估人类旅游活动对自然景区的影响。

1 材料与方法

1.1 研究区域与对象

COVID-19 爆发之后,张家界采取了相对严格的交通管制措施,使得 2020 年 3—5 月旅游旺季期间旅游人数锐减。本文选取 2020 年 3 月 1 日—5 月 31 日疫情期间与 2019 年 3 月 1 日—5 月 31 日非疫情期间张家界不同生态功能区 NO₂、O₃ 小时平均浓度数据为研究资料。数据来源于全国城市空气质量实时发布平台。由于停电、设备故障等非人为原因,研究时段内 NO₂、O₃ 浓度数据有所缺失,故选取数据缺失较少的未央路、永定新区和袁家界站点进行研究,其缺失率均低于 2.25%。其中,未央路监测点位于森林公园景区入口处,车流量较大,私家车和旅游客运汽车尾气排放是主要大气污染源;永定新区位于张家界市区内,交通排放和生活餐饮油烟排放是其主要大气污染源;袁家界监测点位于张家界国家森林公园内,森林覆盖率达 98% 以上,天然植被类型多样化^[9],主要反映了张家界自然植被生态系统大气成分背景特征。此外对于缺失数据,采用缺失数据前一时刻和后一时刻监测浓度值的算术平均值进行填补,如果前后时刻的数据也缺失,使用缺失数据前一天和后一天同时刻的数据取算术平均值代替。3 个站点各年 NO₂ 和 O₃ 研究数据均为 2208 个。

1.2 NO₂ 和 O₃ 时间序列基本统计量

NO₂ 和 O₃ 浓度序列基本统计量如表 1 所示。受疫情影响,2020 年未央路、永定新区和袁家界站点 NO₂ 平均浓度较 2019 年分别下降 47.70%、2.21%、25.10%。这显示出疫情的发生造成了 NO₂ 的急剧减排。未央路站点 NO₂ 的平均浓度减幅远大于其他两个站点,这主要是未央路站点位于森林公园景区入口处,疫情期间旅游人数锐减,使得私家车和旅游客运汽车等尾气排放显著减少。此外,2020 年未央路、永定新区站点 O₃ 平均浓度较 2019 年分别降低 2.79% 和 3.40%,而袁家界站点 O₃ 浓度却升高了 9.70%。COVID-19 期间前所未有的氮氧化物减排反而促进了自然森林生态系统中 O₃ 的生成。从峰度和偏度值来看,NO₂ 和 O₃ 浓度时间演化并不服从正态分布,这暗示着 NO₂ 和 O₃ 浓度波动变化可能源于非线性动力系统。

表 1 各监测站点 2019—2020 年 3 至 5 月 NO₂、O₃ 浓度的基本统计量

Table 1 Basic statistics of NO₂ and O₃ concentrations in spring of 2019—2020 at each monitoring station

站点 Station	年份 Year	NO ₂				O ₃			
		平均值 Mean/ (μg/m ³)	标准差 Standard error	偏度 Skewness	峰度 Kurtosis	平均值 Mean/ (μg/m ³)	标准差 Standard error	偏度 Skewness	峰度 Kurtosis
未央路	2019 年	15.68	9.61	1.29	4.76	49.11	36.18	0.75	2.79
	2020 年	8.20	4.78	2.10	8.62	47.74	28.71	0.88	3.45
永定新区	2019 年	22.14	11.32	1.24	5.05	48.82	35.38	0.66	2.61
	2020 年	21.65	10.79	1.54	6.55	46.87	28.00	0.70	3.11
袁家界	2019 年	4.90	3.81	3.96	31.53	88.17	24.85	0.05	2.56
	2020 年	3.67	2.42	2.03	8.95	96.72	27.79	0.02	2.79

各站点 NO_2 、 O_3 小时平均浓度的日变化规律如图 1 所示,2019 年所有站点 NO_2 日变化均呈现出明显的双峰状“M”型,这是典型人类旅游活动日变化规律造成的。永定新区 NO_2 浓度最高,因为城区内机动车流量大使得交通尾气排放量高于其他站点。袁家界站点 NO_2 浓度总体最低,这是由于张家界国家森林公园内主要采用电动车辆出行,受交通污染影响最小,其 NO_2 主要可能来源于景区外排放源的污染输送。2020 年袁家界站点 NO_2 日变化规律几乎表现为一条直线,基本上不展示出人类旅游活动的影响。

各年各站点 O_3 的日变化均呈现类似的单峰状特征。其中,未央路和永定新区站点 O_3 日变化具有一致性,而袁家界站点 O_3 日变化较为平缓,且浓度值明显高于其他站点。这可能与森林公园内 NO_2 浓度日变化规律较为平缓以及森林系统中天然 VOCs 排放量较大有关。2020 年袁家界站点 O_3 浓度值较高,这是由于疫情期间氮氧化物的减排使得 NO 排放大幅减少,降低了对 O_3 的滴定消耗作用。

由于疫情防控措施的实施,大气污染浓度发生了一定的变化,这说明污染物的排放和空气质量明显受到人类生产生活活动的变化影响。春季旅游旺季期间,张家界平均气温为 $11.8\text{--}12.2^\circ\text{C}$,平均降水量在 $18.1\text{--}22.1\text{ mm}$ 之间,平均风力 3 级左右。在这两个研究时段内,张家界气象条件变化不大。因此通过对比 2019 年和 2020 年 3—5 月期间张家界 3 个站点 O_3 和 NO_2 的多尺度非线性相关作用的变化,可以突出反映疫情导致的人为旅游活动减少对不同生态系统功能区造成的影响。

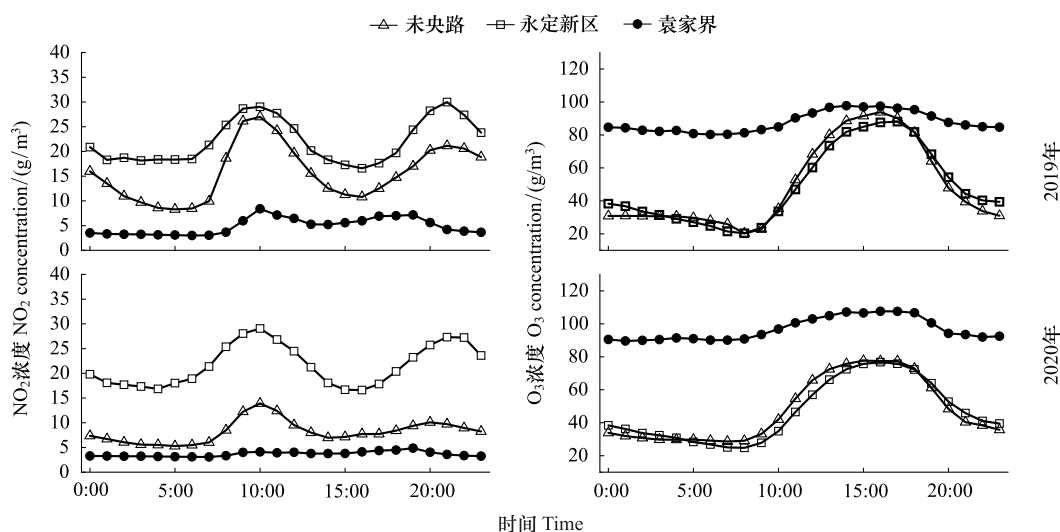


图 1 三个监测点 2019—2020 年春季期间 NO_2 、 O_3 浓度日变化规律

Fig.1 Diurnal variation of NO_2 and O_3 concentrations in three monitoring stations in spring from 2019 to 2020

1.3 研究方法

1.3.1 多重分形去趋势互相关分析(MFDCCA)方法

多重分形去趋势互相关分析(MFDCCA)由 Zhou 等在 DCCA 方法基础上建立的一种新的统计方法,用以识别两组非平稳时间序列之间在不同时间尺度上互相关性的多重分形特征^[27,30]。

首先,通过两组非平稳序列 $x(i)$ 、 $y(i)$ 重构序列 $X(i)$ 和 $Y(i)$:

$$X(i) = \sum_{t=1}^i (x(t) - \bar{x}), Y(i) = \sum_{t=1}^i (y(t) - \bar{y}) \quad i = 1, 2, \dots, N \quad (1)$$

其中 $\bar{x} = \frac{1}{N} \sum_{t=1}^N x(t)$, $\bar{y} = \frac{1}{N} \sum_{t=1}^N y(t)$, N 是时间序列的长度。

其次,将新序列 $X(i)$ 和 $Y(i)$ 划分为互不重叠的等长区间 N_s

$$N_s = \frac{N}{s} \quad (2)$$

其中 s 是时间尺度。

由于序列长度 N 不一定能被 s 整除,为不丢弃数据中任何信息,从序列尾部重复划分一次。故得到 $2N_s$ 个区间。对于每个子区间 v , $v = 1, 2, \dots, 2N_s$, 利用最小二乘线性拟合得到局部趋势 $\bar{X}(i)$ 和 $\bar{Y}(i)$ 。因此每个区间 v 残差的协方差由下式计算,

$$F^2(s, v) = \frac{1}{s} \sum_{i=1}^s |X((v-1)s+i) - \bar{X}(i)| \times |Y((v-1)s+i) - \bar{Y}(i)| \quad (3)$$

此时 $v = 1, 2, \dots, N_s$, 和

$$F^2(s, v) = \frac{1}{s} \sum_{i=1}^s |X(N - (v - N_s)s + i) - \bar{X}(i)| \times |Y(N - (v - N_s)s + i) - \bar{Y}(i)| \quad (4)$$

此时 $v = N_s + 1, N_s + 2, \dots, 2N_s$ 。

然后计算序列 $q(q \neq 0)$ 阶互相关波动函数 $F_q(s)$, 即

$$F_q(s) = \left\{ \frac{1}{2N_s} \sum_{v=1}^{2N_s} [F^2(s, v)]^{q/2} \right\}^{\frac{1}{q}} \quad q \neq 0 \quad (5)$$

$$F_q(s) = \exp \left\{ \frac{1}{4N_s} \sum_{v=1}^{2N_s} \ln [F^2(s, v)] \right\} \quad q = 0 \quad (6)$$

若 $x(i) = y(i)$, 则 MFDDCA 等同于多重分形去趋势波动分析 (MFDFA)。当 $q = 2$ 时, 该算法等效于去趋势互相关分析 (DCCA) 方法。最后, 若 $x(i)$ 和 $y(i)$ 具有长期幂律互相关性, 那么 $s, F_q(s)$ 及广义互相关指数 $h(q)$ 应满足以下幂律关系:

$$F_q(s) \propto s^{h(q)} \quad (7)$$

当 $q = 2$ 时, DCCA 标度指数 $h(2)$ 与 Hurst 指数具有相似的性质。 $h(2) = 0.5$ 表示两序列之间没有互相关关系。 $h(2) > 0.5$ 代表两序列之间呈现出长期幂律互相关性, 即一个变量极大值可能会在未来一定时间尺度内导致另一个变量极大值的产生, 两变量之间的相关性具有长期持续性特征。 $h(2) < 0.5$ 则相反。

如果 $h(q)$ 随着 q 的增加而单调递减, 则表明两序列之间互相关性具有多重分形特征。多重分形的强度可通过 $h(q)$ 的范围来计算,

$$\Delta h = \text{Max}h(q) - \text{Min}h(q) \quad (8)$$

当 Δh 越大, 多重分形性越强。即不同波动程度下, 序列之间互相关性的长期持续性特征具有更强的多时间尺度变异性。与单一分形的长期持续性特征相比, 多重分形结构赋予了多时间尺度上两个序列之间长期互相关作用子集的复杂变异性特征。不同时间尺度上, 两个变量长期互相关作用子集相互嵌套和集聚, 反映着复杂相互作用模式在多时间尺度演化的高度非线性和自相似特征。因此, $h(2)$ 和 Δh 参量为更准确和精细的刻画两个变量相互作用的非线性关系提供了一种异于传统随机过程中正态分布统计量的有效途径。

1.3.2 自组织临界理论 (SOC)

Bak 等^[29]于 1987 年创建自组织临界 (SOC) 理论, 用于解释复杂系统中长期持续性特征的产生动力学机制。SOC 系统包含许多发生非线性和短程近邻相互作用的组元, 在外界物质及能量的输入驱动下, 系统将自发地向临界状态演化。当一个系统达到临界状态时, 系统内各组元相对稳定, 整个系统表现出满足幂律分布的时空关联。外界发生一个微小的局部扰动可能会引发连锁反应, 使该复杂系统发生各种规模的“雪崩”, 从而导致大规模事件的发生, 影响整个系统。这种临界状态下各组元间的非线性动态行为, 服从具有长期持续性及标度不变性的幂律统计分布^[31-32]。因此, 长期持续性特征和幂律统计分布可以作为系统具有 SOC 特性的表征。如果 O₃ 浓度波动演化具有 SOC 特性, 则意味着 O₃ 浓度波动满足幂律统计规律,

$$P(\Delta c) = A \times \Delta c^{-\lambda}, \text{ 即 } \ln(P(\Delta c)) \propto -\lambda \ln(\Delta c) \quad (9)$$

其中 $\Delta c (\Delta c = c_{n+1} - c_n)$ 是 O₃ 浓度波动值, c_n 为 n 时刻 O₃ 浓度, A 为无量纲参量, $P(\Delta c)$ 为 Δc_0 所出现的概率, λ 是衡量标度不变性结构的幂律指数。此时, O₃ 浓度波动大小的发生频率随波动大小呈现幂指数下降, 这种情

况下 O_3 浓度波动没有典型的特征浓度,具有标度不变性特征。这种特征与随机变量的正态分布结构完全不同,在具有正态分布的特征变量中,都存在典型特征值(即平均值)。

如果 O_3 浓度波动还未达到自组织临界状态,而处于亚临界状态时,则不满足幂律统计分布规律。有研究认为,拉伸指数分布是系统处于亚临界状态的特征, O_3 浓度波动分布满足

$$P(\Delta c) = D \times \exp(-B\Delta c^\sigma), \text{ 即 } \ln(\ln(P(\Delta c))) \propto \sigma \ln(\Delta c) \quad (10)$$

其中 B, D 为无量纲参数, σ 为拉伸指数。 O_3 浓度波动的拉伸指数概率分布表明 O_3 浓度演化尚未具有标度不变性结构,类似于正态分布,其某些典型特征浓度值出现的概率相对较大。

2 结果和讨论

2.1 NO_2 和 O_3 互相关的长期持续性特征

首先应用 MFDCCA 方法对 2019 和 2020 年 3 个站点 O_3 和 NO_2 浓度互相关的长期持续性特征进行研究,计算结果如图 2 所示。 $q=2$ 时,各站点 $\ln F_q(s) - \ln(s)$ 均满足线性关系。其斜率拟合结果见表 2 所示。各年各站点 NO_2 和 O_3 互相关性的 $h(2)$ 值均大于 0.5。这意味着 NO_2 和 O_3 互相关性存在较强的长期持续性特征。该特征表现为,在一定时间尺度内 NO_2 和 O_3 之间的互相关函数随时间的衰减不遵循经典的马尔可夫函数(Markov Function),即随时间变化的互相关函数不呈现指数形式的快速衰减模式,而是以一种缓慢衰减的幂律形式进行。这也意味着过去某一时段内 NO_2 浓度的变化模式将在未来一定尺度内持续性的影响着 O_3 的变化趋势。

从表 2 还可发现,2020 年 3 个站点的 $h(2)$ 值显著高于 2019 年。3 个站点增高幅度分别为 33.3%, 17.1% 和 7.7%,这一现象可以结合疫情期间人类活动排放剧减进行理解。

疫情期间交通尾气排放的 NO 也大大减低,造成 O_3 的滴定消耗随之大大减弱。同时, O_3 生成前体物 NO_x 的急剧减少势必减弱了大气光化学反应的程度,这样 O_3 及 NO_2 在大气中将更加持久性的累积存在,从而造成过去某一时刻 NO_2 将更加持续性的影响未来 O_3 浓度变化趋势。这也是 2020 年 NO_2 和 O_3 之间互相关性的长期持续性增强的主要原因。同时,袁家界站点 $h(2)$ 增值明显小于其他两个站点。这是因为和城区相比,森林公园内丰富的植被会排放大量的高活性生物质 VOCs。即使在疫情期间人为源大幅度削减的情况下也可提供丰富的 O_3 生成前体物质以继续维持相对活跃的大气光化学反应,削弱了 O_3 及 NO_2 在大气中的累积效应,导致袁家界站点 $h(2)$ 增值不大。

表 2 各站点 2019 年—2020 年 MFDCCA 计算 $h(2)$ 和 Δh 值

Table 2 The $h(2)$ and Δh calculated by MFDCCA method at different stations in 2019 and 2020

参量 Parameter	年份 Year	未央路	永定新区	袁家界
$h(2)$	2019	0.57	0.70	0.65
	2020	0.76	0.82	0.70
Δh	2019	0.38	0.40	0.58
	2020	0.37	0.39	0.51

MFDCCA:多重分形去趋势互相关分析; $h(2)$:DCCA 标度指数; Δh :多重分形强度

2.2 NO_2 和 O_3 之间互相关性的多重分形特征

根据图 2,各年各站点 $\ln F_q(s) - \ln(s)$ 拟合直线在不同的 q 值下斜率不同,这种不同波动程度下的长期持续性变异性需要进一步利用多重分形方法进行定量刻画。计算结果见图 3。当 q 从 -20 到 20 变化时, $h(q)$ 随着 q 的增大呈单调递减趋势,这表明 NO_2 和 O_3 之间存在不同的非线性依赖关系,具有明显的多重分形性特征。

各站点 NO_2 和 O_3 互相关性的 Δh 计算结果见表 2。各年 Δh 值均大于 0,表明 NO_2 和 O_3 互相关性演化特征具有多重分形本质。从表 2 中可以看出两个显著性的规律。首先,从整体来看,2019 和 2020 年袁家界站点

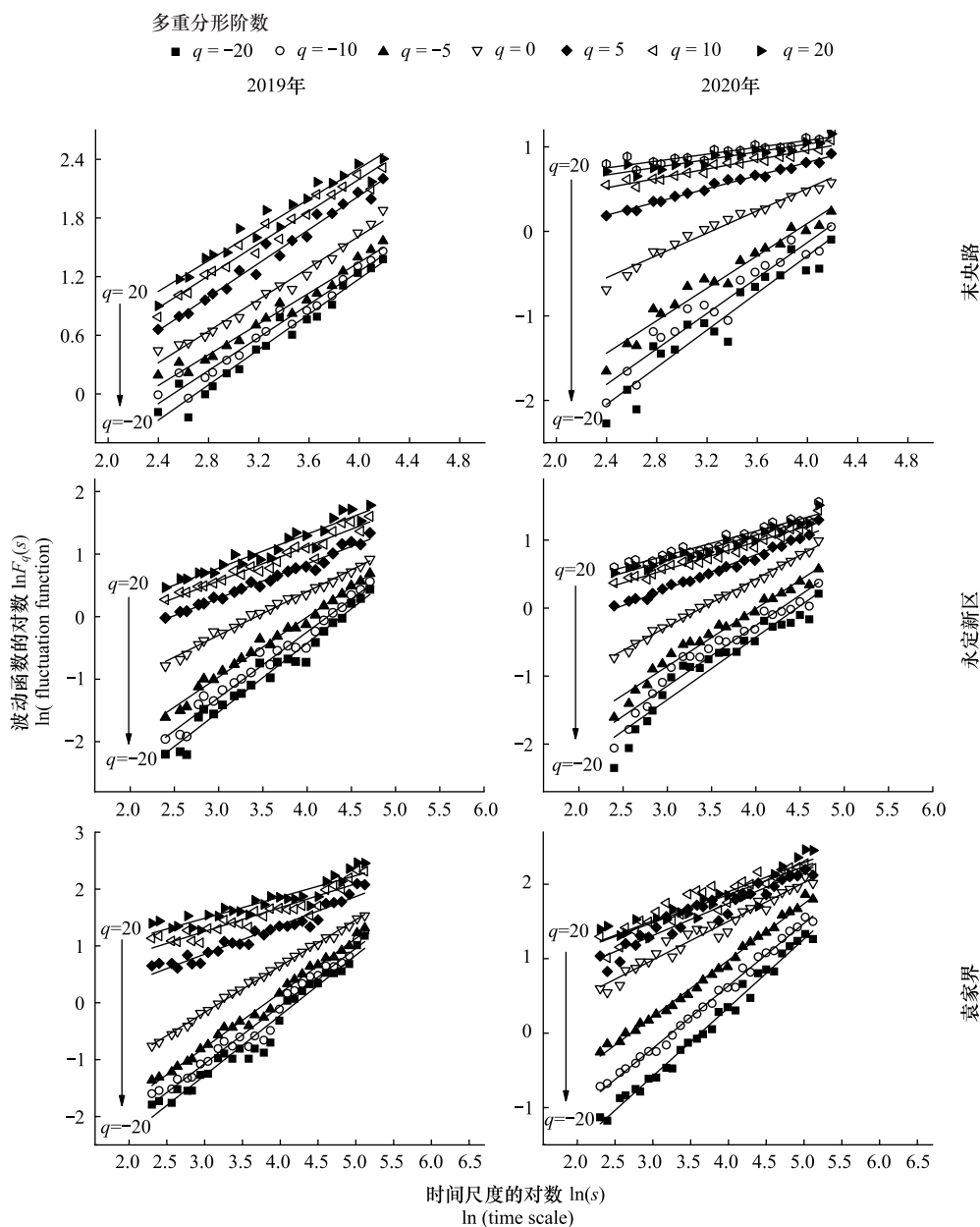


图2 各站点 2019—2020 年 NO₂和 O₃波动 MFDCCA 分析的双对数波动曲线图

Fig.2 The $\ln F_q(s) - \ln(s)$ between O₃ and NO₂ at different stations in 2019 and 2020, Zhangjiajie

Δh 值比其他两个站点高。主要原因在于:袁家界站点植被覆盖率远高于未央路和永定新区站点。丰富的植物排放的植物源挥发性有机化合物(BVOCs)远超过人为源挥发性有机化合物(AVOCs),占总挥发物的90%以上^[33-34]。因此,袁家界站点BVOCs总量往往处于饱和状态,使得其NO₂和O₃之间的相互作用程度增强。另一方面,由于树种、树龄、气温等因素影响,不同树种BVOCs的化学成分、排放速率和排放量也有所不同^[35-37],这将导致NO₂和O₃互相关性的变异性增强,从而袁家界站点 Δh 值比其他站点高。

其次,2020年3个站点的 Δh 值均低于2019年,下降幅度分别为2.6%、2.5%和12.1%。主要原因在于:疫情期间,NO₂和VOCs等前体物浓度的大大减少,减弱了大气光化学反应的程度。这使得NO₂和O₃浓度波动在时间尺度上相对均匀,不同波动程度下二者相互作用的时间变异性减弱,从而2020年各站点 Δh 值相对于2019年有所下降。

为说明 NO_2 和 O_3 互相关的长期持续性在多重分形结构产生过程中的作用,本文进一步对原始 NO_2 和 O_3 序列进行随机重排处理,破坏序列内所有互相关性性质,保留其尖峰胖尾概率分布特征,产生 NO_2 和 O_3 波动的随机重排序列,并用 MFDCCA 方法对其进行分析,计算结果如图 3 所示。当 $q=2$ 时,2019 和 2020 年各站点随机序列的 $h(2)$ 值接近 0.5,表现出完全随机的特征,序列之间不存在内在的相关性。同时,随机和原始序列的多重分形结构差异巨大,这说明 NO_2 与 O_3 之间互相关的长期持续性是导致其多重分形结构形成的重要因素。

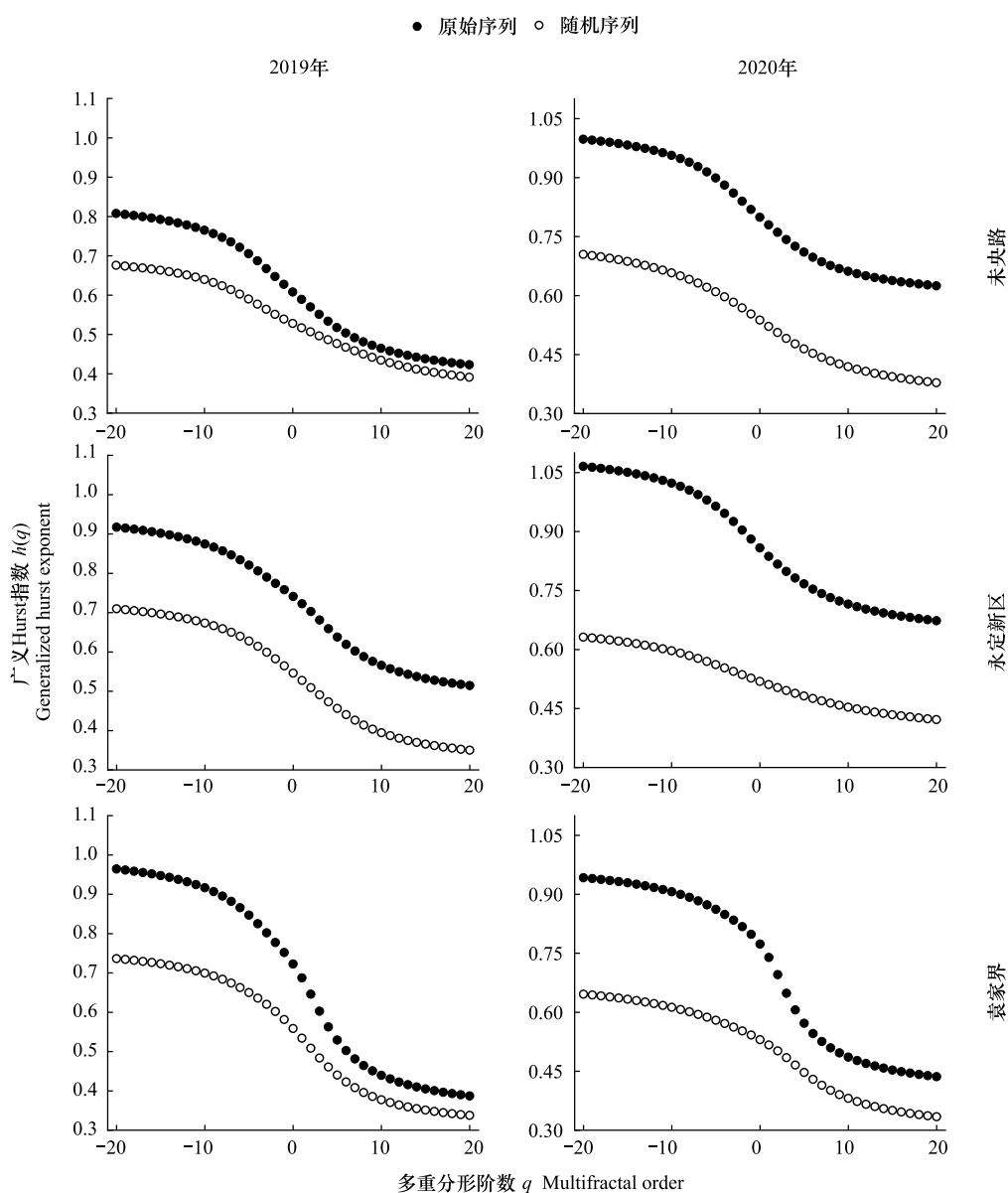


图3 各站点 2019—2020 年 NO_2 和 O_3 波动 q 阶广义 Hurst 指数图

Fig.3 The generalized Hurst index between O_3 and NO_2 at different stations in Zhangjiajie

2.3 O_3 生成的自组织临界机制

上述讨论发现 NO_2 与 O_3 互相关的多时间尺度长期持续性特征对 O_3 的生成发挥重要作用。然而究竟是什么宏观动力机制控制着长期持续性的形成? 为了说明该宏观动力机制,本文首先对 2019 和 2020 年各站点 O_3 浓度波动进行了频度统计分析。图 4 给出了各年各站点 O_3 小时平均浓度波动的累积频率统计分布,具体

分布函数关系见表3。袁家界站点 O₃的累积频率统计分布服从类似方程(9)的负幂律分布,O₃演化处于自组织临界状态。此时高浓度 O₃波动和低浓度 O₃波动的出现概率相等。而未央路和永定新区站点的 O₃累积频率统计分布服从类似公式(10)的拉伸指数分布,O₃浓度波动还处于亚临界状态,某些典型特征浓度值出现的概率相对较大。

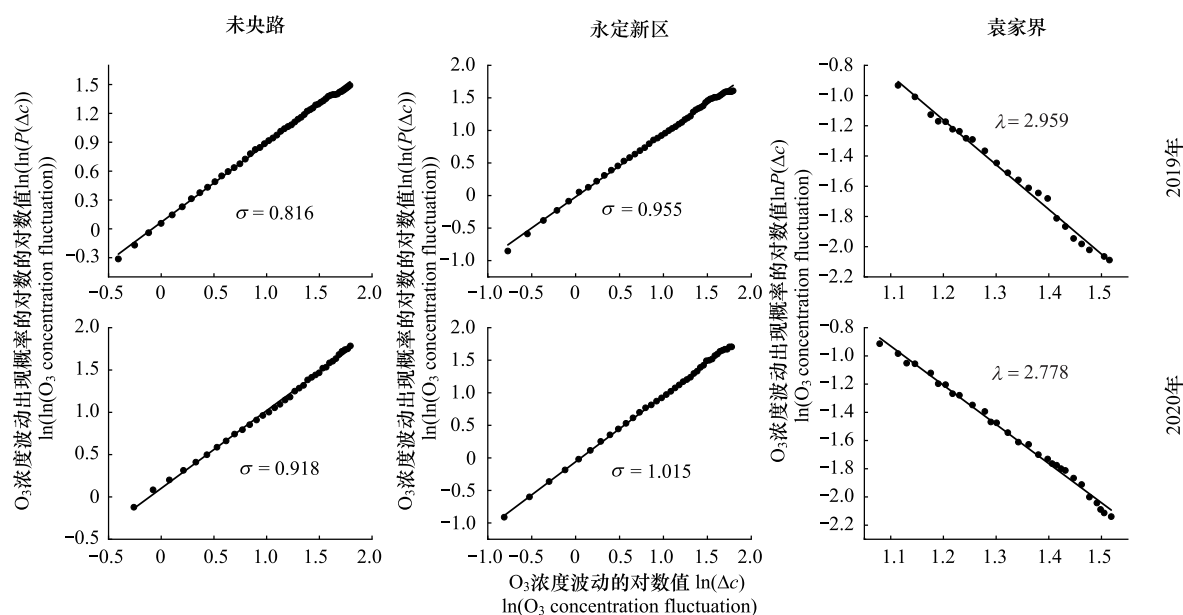


图4 2019和2020年各站点 O₃小时平均浓度波动的累积统计分布

Fig.4 Cumulative distribution of O₃ pollution at different stations in 2019 and 2020

表3 张家界未央路、永定新区、袁家界站点 O₃波动累积统计分布拟合函数关系

Table 3 Cumulative statistical distribution of O₃ fluctuations at Weiyang Road, Yongding New District, and Yuanjiajie Station in Zhangjiajie

站点 Station	年份 Year	拟合关系式 Fitting relational expression		检验结果 Results
未央路	2019	$\ln(\ln(P(\Delta c > \Delta c_0))) \propto 0.816 \times \ln(\Delta c)$	$\sigma = 0.816$	拟合优度 $R^2 = 0.998$, 以 $R^2 > 0.9$ 为评判标准认为服从拉伸指数分布
	2020	$\ln(\ln(P(\Delta c > \Delta c_0))) \propto 0.918 \times \ln(\Delta c)$	$\sigma = 0.918$	拟合优度 $R^2 = 0.998$, 以 $R^2 > 0.9$ 为评判标准认为服从拉伸指数分布
永定新区	2019	$\ln(\ln(P(\Delta c > \Delta c_0))) \propto 0.955 \times \ln(\Delta c)$	$\sigma = 0.955$	拟合优度 $R^2 = 0.998$, 以 $R^2 > 0.9$ 为评判标准认为服从拉伸指数分布
	2020	$\ln(\ln(P(\Delta c > \Delta c_0))) \propto 1.015 \times \ln(\Delta c)$	$\sigma = 1.015$	拟合优度 $R^2 = 0.999$, 以 $R^2 > 0.9$ 为评判标准认为服从拉伸指数分布
袁家界	2019	$\ln(P(\Delta c > \Delta c_0)) \propto -2.959 \times \ln(\Delta c)$	$\lambda = 2.959$	拟合优度 $R^2 = 0.992$, 以 $R^2 > 0.9$ 为评判标准认为服从幂律分布
	2020	$\ln(P(\Delta c > \Delta c_0)) \propto -2.778 \times \ln(\Delta c)$	$\lambda = 2.778$	拟合优度 $R^2 = 0.996$, 以 $R^2 > 0.9$ 为评判标准认为服从幂律分布

袁家界站点 O₃浓度波动是开放、耗散大气巨系统,在前体物质作用下的复杂动力现象,其幂律统计分布的形成与演化既受到微观的大气光化学机制作用,同时也是多尺度宏观系统动力学长期相关作用的结果。

为进一步说明张家界国家森林公园森林生态系统中 O₃浓度波动涌现出负幂律统计分布的 SOC 机制,将 O₃演化与自组织临界的沙堆系统进行类比分析。真实物理沙堆系统是 SOC 的典型范例^[38]。在圆盘上通过逐粒加沙构造沙堆,当沙堆的倾角达到临界状态时,系统中加入的沙粒数量与沙堆崩塌掉落在圆盘之外的沙粒数量总体平衡。新添加的沙粒(系统的输入)可能停留在沙堆上,也有可能引起沙堆表面的小范围滑动,甚至造成更大规模的崩塌。宏观上,沙粒崩塌规模与其出现频率呈现负幂律统计分布^[39-40]。对于森林生态系

统中的 O_3 浓度演化来说,其前体物 VOCs 主要来自于植物排放的 BVOCs, NO_2 主要来自于景区外人类活动中机动车排放。前体物之间的复杂光化学作用造成 O_3 生成,这个过程类似于一个平板,持续投入沙粒,这些输入的物质或能量是森林生态系统中 O_3 演化的直接驱动力。同时,森林大气系统中局域光化学作用导致的 O_3 浓度上升将增强大气氧化能力,加剧光化学反应生成其他光化学产物(如二次气溶胶),该过程使得 O_3 迅速消耗。二次气溶胶也可通过碰并凝结、降水洗刷等作用脱离大气系统。这正如沙堆达到临界倾斜角后,以崩塌方式清除多余沙粒,维持倾斜角的稳定临界状态。这过程中, O_3 与前体物相互作用的长期持续性可视为沙堆系统中局域沙粒之间相互挤压的短程相互作用扩散影响到整个系统的作用机制。最终,森林生态系统中,前体物之间非线性光化学作用持续累积生成的 O_3 在一定时间尺度上并不产生持续稳定的 O_3 浓度波动。相反,却产生类似于沙堆系统的规模大小遵循负幂律分布的非线性浓度波动演化。这样张家界森林生态系统中 O_3 浓度波动演化过程与真实 SOC 沙堆系统在物理原型上非常相似。

对于景区以外的未央路和永定新区站点来说,由于城区森林植被覆盖远低于森林生态系统,再加上树种、树龄、气温等因素的影响,大气系统中 VOCs 的化学成分、排放速率和排放量将远低于森林生态系统,使得城区大气系统中 O_3 前体物难以通过包含更多化学组分的复杂非线性光化学反应让 O_3 浓度波动快速达到临界状态。同时,相对于森林生态系统来说,城区大气环境更容易受到人类活动的干扰。由于 SOC 机制是系统内禀机制,当外界力的干扰达到一定程度时,可能破坏系统内在的 SOC 特征。上述因素导致城市生态系统内的未央路和永定新区站点 O_3 演化尚未达到自组织临界状态,而仅处于亚临界状态。

从复杂性理论来看,森林生态系统中 O_3 浓度波动的长期动态可表征为多因素局部相互作用、相互影响所导致的宏观动力学效应。一方面, O_3 浓度波动表现为城市特定污染排放(包括人类旅游活动过程中交通、餐饮等污染排放)和自然环境要素(包括地形、气象、太阳辐射等)的综合影响,这些影响要素具有一定程度的确定性。另一方面,在开放的、耗散的大气光化学系统中,影响 O_3 生成的因素之间相互作用非常复杂,在不同时间尺度上具有长期持续的非线性相关影响,因而导致 O_3 生成在一定时间尺度上表现为不规则、非线性的变化。这些都是复杂系统的基本特性。长时间尺度宏观来看,各种确定性和不确定性的影响因素对森林生态系统中 O_3 的生成产生了宏观“有序”的统计结构,即前述 O_3 演化的幂律指数 λ 及其与前体物相互作用的 DCCA 标度指数 $h(2)$ 和多重分形强度 Δh 。这些有序性的统计结构越稳定说明自组织演化的动力作用越强。根据 2.1 节的讨论,2020 年袁家界站点 NO_2 和 O_3 之间互相关性的长期持续性较 2019 年显著增强,这就使得 2020 年森林生态系统中 O_3 演化的自组织临界动力机制增强,从而导致高浓度 O_3 的涌现,这是造成 2020 年袁家界站点 O_3 浓度上升的主要动力原因。而其余站点由于仅达到亚临界状态,就无法通过 SOC 机制涌现形成高浓度 O_3 。因此利用 SOC 动力机制可以更清晰的阐明 2020 年疫情期间张家界国家森林公园内 O_3 浓度增高而城区站点 O_3 浓度减低的动力学原因。

高浓度的 O_3 具有很强的氧化性,会对森林生态系统中各种野生动植物造成生理伤害^[41-43]。众多学者已在野外观测到森林生态系统受到高浓度 O_3 危害的症状^[44-46]。疫情期间张家界城郊型森林公园中 O_3 浓度对 NO_2 集中减排响应的 SOC 机制的准确识别,这对于高浓度 O_3 的风险评估,有助于科学评估人类旅游活动对森林生态系统造成的影响。

3 结论

本研究基于 2020 年 3 月 1 日—5 月 31 日疫情期间与 2019 年 3 月 1 日—5 月 31 日非疫情期间张家界不同生态功能区 NO_2 、 O_3 小时平均浓度观测数据,探究了 O_3 浓度变化对疫情期间 NO_2 污染急剧减排的响应机制,结果表明:

(1) 张家界森林及城区 O_3 和 NO_2 浓度波动的多时间尺度互相关性均存在较强的长期持续性特征,相对于 2019 年,2020 年各站点 NO_2 和 O_3 之间互相关性的长期持续性分别增强 33.3%、17.1% 和 7.7%,说明 NO_2 在大气中将更加持久性的影响未来 O_3 的浓度演化。

(2)张家界各站点 NO₂和 O₃之间互相关性存在显著的多重分形特征,其多重分形性的产生根源主要来自二者之间互相关性演化的长期持续性动力机制。2020 年各站点 NO₂和 O₃之间互相关性的多重分形强度分别下降了 2.6%、2.5%和 12.1%,说明疫情期间 NO₂和 O₃之间互相关性的时间变异性减弱。

(3)袁家界站点 O₃浓度波动具有负幂律统计分布结构,未央路和永定新区站点 O₃频率统计分布服从拉伸指数分布。这表明森林生态系统中 O₃演化处于自组织临界状态,而城区生态系统内 O₃演化还处于亚临界状态。在 NO₂急剧减排的情况下,该内禀机制使得张家界国家森林公园内 O₃浓度增高,而城区站点 O₃浓度减低。准确识别 NO₂减排下 O₃演化的自组织临界特征,将有助于科学评估未来高浓度 O₃的发生风险。

参考文献 (References):

- [1] 赵雪, 沈楠驰, 李令军, 武高峰, 陶静, 赵文吉. COVID-19 疫情期间京津冀大气污染物变化及影响因素分析. 环境科学, 2021, 42(3): 1205-1214.
- [2] Tian H Y, Liu Y H, Li Y D, Wu C H, Chen B, Kraemer M U G, Li B Y, Cai J, Xu B, Yang Q Q, Wang B, Yang P, Cui Y J, Song Y M, Zheng P, Wang Q Y, Bjornstad O N, Yang R F, Grenfell B T, Pybus O G, Dye C. An investigation of transmission control measures during the first 50 days of the COVID-19 epidemic in China. Science, 2020, 368(6491): 638-642.
- [3] Wilder-Smith A, Freedman D O. Isolation, quarantine, social distancing and community containment: pivotal role for old-style public health measures in the novel coronavirus (2019-nCoV) outbreak. Journal of Travel Medicine, 2020, 27(2): taaa020.
- [4] Hashim B M, Al-Naseri S K, Al-Maliki A, Al-Ansari N. Impact of COVID-19 lockdown on NO₂, O₃, PM_{2.5} and PM₁₀ concentrations and assessing air quality changes in Baghdad, Iraq. Science of the Total Environment, 2020, 754: 141978.
- [5] Sun Y L, Lei L, Zhou W, Chen C, He Y, Sun J X, Li Z J, Xu W Q, Wang Q Q, Ji D S, Fu P Q, Wang Z F, Worsnop D R. 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. Science of the Total Environment, 2020, 742: 140739.
- [6] Wang Q, Su M. Drivers of decoupling economic growth from carbon emission-an empirical analysis of 192 countries using decoupling model and decomposition method. Environmental Impact Assessment Review, 2020, 81: 106356.
- [7] Le T H, Wang Y, Liu L, Yang J N, Yung Y L, Li G H, Seinfeld J H. Unexpected air pollution with marked emission reductions during the COVID-19 outbreak in China. Science, 2020, 369(6504): 702-706.
- [8] Tang C C, Zhong L S, Ng P. Factors that influence the tourism industry's carbon emissions: a tourism area life cycle model perspective. Energy Policy, 2017, 109: 704-718.
- [9] Chen H J. Complementing conventional environmental impact assessments of tourism with ecosystem service valuation: a case study of the Wulingyuan Scenic Area, China. Ecosystem Services, 2020, 43: 101100.
- [10] He Z R, Wang X M, Ling Z H, Zhao J, Guo H, Shao M, Wang Z. Contributions of different anthropogenic volatile organic compound sources to ozone formation at a receptor site in the Pearl River Delta region and its policy implications. Atmospheric Chemistry and Physics, 2019, 19(13): 8801-8816.
- [11] Bauwens M, Compennolle S, Stavrakou T, Müller J F, van Gent J, Eskes H, Levelt P F, Van der A R, Veeckind J P, Vlietinck J, Yu H, Zehner C. Impact of coronavirus outbreak on NO₂ pollution assessed using TROPOMI and OMI observations. Geophysical Research Letters, 2020, 47(11): e2020GL087978.
- [12] Liu C Q, Zhang X H, Wang Q G, Shi K. Role of PM_{2.5} in the photodegradation of the atmospheric benzene. Environmental Pollution, 2019, 247: 447-456.
- [13] Sicard P, de Marco A, Agathokleous E, Feng Z Z, Xu X B, Paoletti E, Rodriguez J J D, Calatayud V. Amplified ozone pollution in cities during the COVID-19 lockdown. Science of the Total Environment, 2020, 735: 139542.
- [14] 高平, 庄立跃, 王龙, 陈瑜萍, 闫慧, 沈劲, 范丽雅, 叶代启. 广州地区秋季不同站点类型地面臭氧变化特征与影响因子. 环境科学, 2020, 41(8): 3527-3538.
- [15] 罗瑞雪, 刘保双, 梁丹妮, 毕晓辉, 张裕芬, 冯银厂. 天津市郊夏季的臭氧变化特征及其前体物 VOCs 的来源解析. 环境科学, 2021, 42(1): 75-87.
- [16] Dong Q L, Wang Y, Li P Z. Multifractal behavior of an air pollutant time series and the relevance to the predictability. Environmental Pollution, 2017, 222: 444-457.
- [17] Kroll J H, Heald C L, Cappa C D, Farmer D K, Fry J L, Murphy J G, Steiner A L. The complex chemical effects of COVID-19 shutdowns on air quality. Nature Chemistry, 2020, 12(9): 777-779.

- [18] Lee C K, Juang L C, Wang C C, Liao Y Y, Yu C C, Liu Y C, Ho D S. Scaling characteristics in ozone concentration time series (OCTS). *Chemosphere*, 2006, 62(6): 934-946.
- [19] Shen C H, Huang Y, Yan Y N. An analysis of multifractal characteristics of API time series in Nanjing, China. *Physica A: Statistical Mechanics and Its Applications*, 2016, 451: 171-179.
- [20] Dentener F, Stevenson D, Ellingsen K, van Noije T, Schultz M, Amann M, Atherton C, Bell N, Bergmann D, Bey I, Bouwman L, Butler T, Cofala J, Collins B, Drevet J, Doherty R, Eickhout B, Eskes H, Fiore A, Gauss M, Hauglustaine D, Horowitz L, Isaksen I S A, Josse B, Lawrence M, Krol M, Lamarque J F, Montanaro V, Müller J F, Peuch V H, Pitari G, Pyle J, Rast S, Rodriguez J, Sanderson M, Savage N H, Shindell D, Strahan S, Szopa S, Sudo K, van Dingenen R, Wild O, Zeng G. The global atmospheric environment for the next generation. *Environmental Science & Technology*, 2006, 40(11): 3586-3594.
- [21] Li K, Jacob D J, Liao H, Zhu J, Shah V, Shen L, Bates K H, Zhang Q, Zhai S X. A two-pollutant strategy for improving ozone and particulate air quality in China. *Nature Geoscience*, 2019, 12(11): 906-910.
- [22] 罗恢泓, 袁自冰, 郑君瑜, 段玉森, 杨雷峰, 黄志炯, 黄晓波, 林小华, 贾光林, 李文石. 上海夏季臭氧生成机制时空变化特征及其影响因素研究. *环境科学学报*, 2019, 39(1): 154-168.
- [23] 李光耀, 陈强, 郭文凯, 张瑞欣, 夏佳琦. 基于正交试验的臭氧及其前体物的非线性响应及控制方案. *环境科学*, 2021, 42(2): 616-623.
- [24] 杜华强, 汤孟平, 周国模, 徐文兵, 刘恩斌, 施拥军. 天目山物种多样性尺度依赖及其与空间格局关系的多重分形. *生态学报*, 2007, 27(12): 5038-5049.
- [25] 高歆, 吴国玺, 杜根远, 李长坡, 申怀飞. 面向城市热环境格局时空演变的多重分形模式——以郑州市为例. *生态学报*, 2015, 35(20): 6774-6787.
- [26] Zhou W X. Multifractal detrended cross-correlation analysis for two nonstationary signals. *Physical Review E*, 2008, 77(6): 066211.
- [27] Zhang C, Ni Z W, Ni L P. Multifractal detrended cross-correlation analysis between PM_{2.5} and meteorological factors. *Physica A: Statistical Mechanics and its Applications*, 2015, 438: 114-123.
- [28] Shen C H, Li C L, Si Y L. A detrended cross-correlation analysis of meteorological and API data in Nanjing, China. *Physica A: Statistical Mechanics and its Applications*, 2015, 419: 417-428.
- [29] Bak P, Tang C, Wiesenfeld K. Self-organized criticality: an explanation of the $1/f$ noise. *Physical Review Letters*, 1987, 59(4): 381-384.
- [30] Podobnik B, Stanley H E. Detrended cross-correlation analysis: a new method for analyzing two nonstationary time series. *Physical Review Letters*, 2008, 100(8): 084102.
- [31] Shi K, Liu C Q. Self-organized criticality of air pollution. *Atmospheric Environment*, 2009, 43(21): 3301-3304.
- [32] 苏蓉, 史凯, 黄正文, 刘春琼, 艾南山, 王侯. 基于自组织临界性的上海 PM₁₀ 污染预警与风险评价. *中国环境科学*, 2010, 30(7): 888-892.
- [33] 谢扬飏, 邵敏, 陆思华, 刘莹. 北京市园林绿地植被挥发性有机物排放的估算. *中国环境科学*, 2007, 27(4): 498-502.
- [34] 宋媛媛, 张艳燕, 王勤耕, 安俊岭. 基于遥感资料的中国东部地区植被 VOCs 排放强度研究. *环境科学学报*, 2012, 32(9): 2216-2227.
- [35] 白建辉, Baker B, Johnson C, 李庆军, 王永峰, 赵崇奖, Klinger L, Guenther A, Greenberg J. 西双版纳热带森林挥发性有机物的观测研究. *中国环境科学*, 2004, 24(2): 142-146.
- [36] 张钢锋, 谢绍东. 基于树种蓄积量的中国森林 VOC 排放估算. *环境科学*, 2009, 30(10): 2816-2822.
- [37] 常杰, 任远, 史琰, 朱铁梅, 焦荔, 洪盛茂, 傅承新, 葛滢. 亚热带城乡复合系统 BVOC 排放清单——以台州地区为例. *生态学报*, 2012, 32(2): 641-649.
- [38] Shi K, Liu C Q, Huang Y. Multifractal processes and self-organized criticality of PM_{2.5} during a typical haze period in Chengdu, China. *Aerosol and Air Quality Research*, 2015, 15(3): 926-934.
- [39] 史凯, 刘春琼, 吴生虎. 大气 PM₁₀ 跨界输送的自组织动力机制——以舟山市为例. *环境科学学报*, 2014, 34(5): 1125-1132.
- [40] 史凯. 成都市一次重度灰霾期间大气 PM_{2.5} 的自组织临界特性. *环境科学学报*, 2014, 34(10): 2645-2653.
- [41] Hu E Z, Gao F, Xin Y, Jia H X, Li K H, Hu J J, Feng Z Z. Concentration- and flux-based ozone dose-response relationships for five poplar clones grown in North China. *Environmental Pollution*, 2015, 207: 21-30.
- [42] Li P, Calatayud V, Gao F, Uddling J, Feng Z Z. Differences in ozone sensitivity among woody species are related to leaf morphology and antioxidant levels. *Tree Physiology*, 2016, 36(9): 1105-1116.
- [43] 李品, 冯兆忠, 尚博, 袁相洋, 代碌碌, 徐彦森. 6 种绿化树种的气孔特性与臭氧剂量的响应关系. *生态学报*, 2018, 38(8): 2710-2721.
- [44] 万五星, 夏亚军, 张红星, 王娇, 王效科. 北京远郊区臭氧污染及其对敏感植物叶片的伤害. *生态学报*, 2013, 33(4): 1098-1105.
- [45] 列淦文, 叶龙华, 薛立. 臭氧胁迫对植物主要生理功能的影响. *生态学报*, 2014, 34(2): 294-306.
- [46] 冯兆忠, 袁相洋. 臭氧浓度升高对植物源挥发性有机化合物(BVOCs)影响的研究进展. *环境科学*, 2018, 39(11): 5257-5265.