

# 长三角城市群臭氧浓度的时空分异及驱动因素

黄小刚<sup>1, 2</sup> 邵天杰<sup>1</sup> 赵景波<sup>1, 3</sup> 曹军骥<sup>3</sup> 宋永永<sup>11</sup>

(1. 陕西师范大学地理科学与旅游学院, 陕西 西安 710119;

2. 山西师范大学地理科学学院, 山西 临汾 041004;

3. 中国科学院地球环境研究所气溶胶化学与

物理重点实验室, 陕西 西安 710061)

**【摘要】:** 运用克里金插值、空间自相关分析、冷热点分析和地理探测等定量分析方法, 对长三角城市群 2015~2017 年  $O_3$  浓度的时空分异特征及驱动因素进行了探讨。结果表明: (1) 2015~2017 年长三角城市群  $O_3$  浓度呈上升趋势,  $O_3$  日最大 8h 滑动平均值第 90 百分位数平均浓度由  $149 \mu g/m^3$  上升到  $166 \mu g/m^3$ , 平均超标率由 9.3% 上升到 12.1%, 以  $O_3$  为首要污染物的天数占超标总天数的比例由 32.3% 上升到 46.4%。(2) 受气温和降水量年际波动的影响, 各年份  $O_3$  月均浓度变化曲线形状不同。但  $O_3$  超标都主要发生在 4~9 月, 超标天数分别占 2015、2016、2017 年的 88.3%、98.2% 和 97.0%。(3) 由于安徽  $O_3$  浓度快速上升, 长三角城市群  $O_3$  浓度空间分布格局由东高西低演变为北高南低, 且同质化增强、异质性减弱。(4) 随着  $O_3$  浓度的上升,  $O_3$  浓度热点区由环太湖地区向南京都市圈扩展, 冷点区在安徽有明显收缩。(5) 地理探测表明, 长三角城市群  $O_3$  浓度空间分异主要受经济规模、城市化和排放源等社会经济因素驱动, 且均呈正向影响。自然因素中的降水量和风速呈负向影响, 分别对  $O_3$  有显著的清除和扩散作用。

**【关键词】:** 臭氧浓度 时空分异 驱动因素 地理探测器

**【中图分类号】:** X511 **【文献标识码】:** A **【文章编号】:** 1004-8227(2019)06-1434-12

自 2013 年《大气污染防治行动计划》实施以来, 我国  $PM_{2.5}$ 、 $PM_{10}$ 、 $NO_2$ 、 $SO_2$  和 CO 等大气污染物的浓度和超标率已明显下降<sup>[1]</sup>, 而臭氧( $O_3$ )浓度却不断上升<sup>[2]</sup>,  $O_3$  已成为影响我国城市空气质量的重要大气污染物。 $O_3$  是强氧化剂和温室气体, 不仅能加速  $SO_2$ 、 $NO_2$ 、VOCs、 $NH_3$  等气态污染物向颗粒物转化, 促使  $PM_{2.5}$  浓度上升, 高浓度  $O_3$  还会对人体健康、植物生长和生态系统造成损害, 甚至对全球气候变化造成不良影响<sup>[3,4]</sup>。近地面  $O_3$  主要来源于  $NO_x$ 、VOCs、CO 等前体物在大气中进行的光化学反应<sup>[5]</sup>。由于各城市前体物排放和光化学反应条件不同,  $O_3$  浓度分布具有空间异质性。而受区域传输的影响, 城市间  $O_3$  浓度又具有空间相关性。科学认识  $O_3$  浓度的时空分异特征, 厘清影响  $O_3$  浓度分布的环境因素, 对科学防控  $O_3$  污染具有重要意义。

长三角地区经济发达, 城市密集, 制造业集中, 是我国大气污染防治重点区域<sup>[6]</sup>。其中,  $O_3$  已成为长三角地区夏季最主要的大气

**作者简介:** 黄小刚(1978-), 男, 博士研究生, 研究方向为生态环境评价与治理。E-mail: huangxg@sxnu.edu.cn; 邵天杰, E-mail: tjshao2010@126.com。

**基金项目:** 中央高校基本科研业务费专项项目(GK201803055); 中国科学院气溶胶化学与物理重点实验室项目(KLACP-2018-01); 国家自然科学基金国际合作重大项目(41210002)。

污染物<sup>[7]</sup>。目前,学者主要基于两类方法研究长三角 O<sub>3</sub> 的影响因素。一是研究不同时空尺度 O<sub>3</sub> 浓度的日变化、月度变化和季节变化规律,并通过相关分析确定气象因素、前体物浓度等对 O<sub>3</sub> 浓度的影响程度,据此提出 O<sub>3</sub> 污染预警指标。如赵旭辉等<sup>[8]</sup>认为,合肥市 O<sub>3</sub> 浓度由四周向中心城区逐渐升高,在风速度小于 3.3m/s、相对湿度在 50%~60%之间、气压小于 1020hpa、气温在 25~28℃ 之间且无降水时 O<sub>3</sub> 浓度往往较高。O<sub>3</sub> 浓度与 NO<sub>2</sub> 浓度、VOCs 浓度分别呈负相关和正相关关系。齐冰等<sup>[9]</sup>指出 4~10 月杭州市 O<sub>3</sub> 浓度较高,O<sub>3</sub> 浓度与紫外辐射、温度呈正相关关系,与相对湿度呈负相关关系。当紫外辐射大于 0.06MJ/m<sup>2</sup>、气温高于 25℃、相对湿度低于 60%时,O<sub>3</sub> 浓度易超标,风向为东风或偏东风时 O<sub>3</sub> 浓度偏高。易睿等<sup>[7]</sup>研究发现,长三角地区 O<sub>3</sub> 污染呈片状分布,上海及周边城市群污染最严重,各城市 O<sub>3</sub> 浓度与汽车保有量、NO<sub>2</sub> 年均浓度有显著的正相关关系。二是通过模式模拟的方法研究 O<sub>3</sub> 生成敏感性<sup>[10]</sup>、O<sub>3</sub> 来源识别<sup>[11]</sup>,及城市化<sup>[12]</sup>、区域传输<sup>[13]</sup> 等对 O<sub>3</sub> 浓度的影响。

现有研究成果为深入分析长三角城市群 O<sub>3</sub> 浓度的时空变化特征及影响因素奠定了理论和方法基础。然而,已有研究多侧重于某一方面因素的分析 and 模拟,很少有学者将社会经济和自然因素纳入 O<sub>3</sub> 浓度影响因素解析的整体研究框架进行综合研究。区域尺度的研究则多以江浙沪组成的长三角地区为主。2016 年 5 月国务院批准实施的《长江三角洲城市群发展规划》已明确将安徽部分城市划入长三角城市群,以长三角城市群为整体来探讨 O<sub>3</sub> 浓度时空分异及驱动因素仍鲜有报道。当前“未来地球计划”和可持续性科学都着重强调自然与人文要素的综合集成<sup>[14]</sup>。因此,本文基于 2015~2017 年长三角城市群 39 个城市的 O<sub>3</sub> 浓度数据,运用克里金插值、空间自相关分析、冷热点分析等方法研究了长三角城市群 O<sub>3</sub> 浓度的时空分异特征,并从自然和社会经济因素两方面构建评价指标,利用地理探测器揭示 O<sub>3</sub> 浓度空间分异的驱动因素,以期为长三角城市群 O<sub>3</sub> 污染防控措施的制定提供决策参考。

## 1 数据来源和研究方法

### 1.1 数据来源和处理

O<sub>3</sub> 浓度数据来源于中国环境监测总站全国城市空气质量实时发布平台(<http://106.37.208.233:20035/>)。O<sub>3</sub> 日评价指标采用 O<sub>3</sub> 日最大 8h 滑动平均值(以下简称 O<sub>3</sub>-8h),年评价指标采用 O<sub>3</sub> 日最大 8h 滑动平均值的第 90 百分位数(以下简称 O<sub>3</sub>-8h-90)。数据统计有效性按《环境空气质量标准》(GB3095-2012)执行,计算 O<sub>3</sub>-8h 时,当日 8 时至 24 时至少有 14 个有效 O<sub>3</sub>-8h 值;计算年度 O<sub>3</sub>-8h-90 时,年内至少有 324 个 O<sub>3</sub>-8h 值,且每月至少有 27 个有效的 O<sub>3</sub>-8h 浓度值(2 月至少有 25 个)。O<sub>3</sub> 日评价和年评价标准按照《环境空气质量指数(AQI)技术规定(试行)》(HJ633-2012)执行,即 0~100 μg/m<sup>3</sup> 为优、101~160 μg/m<sup>3</sup> 为良、161~215 μg/m<sup>3</sup> 为轻度污染、216~265 μg/m<sup>3</sup> 为中度污染、266~800 μg/m<sup>3</sup> 为重度污染、800 μg/m<sup>3</sup> 以上为严重污染。

气象数据来源于“中国气象数据网(<http://data.cma.cn>)”发布的中国地面气候资料日值数据集(V3.0)。社会经济统计数据来源于《2017 年中国城市统计年鉴》,考虑到空气质量监测站一般布设在市区,模型计算使用市辖区统计口径数据<sup>[15]</sup>。地貌类型数据来源于“中国科学院资源环境科学数据中心(<http://www.resdc.cn>)”发布的中国 100 万地貌类型空间分布数据。

根据《长江三角洲城市群发展规划》,长三角城市群包括上海市,江苏省的南京、苏州、无锡、常州、南通、镇江、泰州、扬州、盐城,浙江省的杭州、宁波、绍兴、嘉兴、湖州、金华、舟山、台州,安徽省的合肥、芜湖、马鞍山、铜陵、安庆、池州、宣城、滁州,共 26 个地级市(图 1)。2015~2017 年长三角城市群在全国城市空气质量实时发布平台上发布的监测城市有 41 个(其中有 15 个为县级市)。由于诸暨和张家港部分年份数据缺失较多,为保证数据的可比性,研究 O<sub>3</sub> 时空变化规律时将诸暨和张家港站剔除,实际研究城市为 39 个。由于社会经济统计数据以行政区为统计单元,研究 O<sub>3</sub> 浓度空间分布的驱动因素时,以 26 个地级市为评价单元。

### 1.2 影响因子选择

O<sub>3</sub> 浓度上升的根源在于人类活动排放的 O<sub>3</sub> 前体污染物大量增加,同时自然因素对 O<sub>3</sub> 的生成、传输、清除和沉降有重要影响<sup>[2]</sup>,因此本文从社会经济因素和自然因素两方面来选择评价因子。社会经济因素方面,选取了地区生产总值(X<sub>i</sub>)、规模以上工业总产

值( $X_2$ )、人均地区生产总值( $X_3$ )、二产比重( $X_4$ )、年平均人口( $X_5$ )、建成区面积( $X_6$ )、工业二氧化硫排放量( $X_7$ )、工业烟(粉)尘排放量( $X_8$ )和民用汽车拥有量( $X_9$ )作为探测因子。选择这些指标的原因在于:(1)经济增长对环境污染的综合影响大体可归纳为规模效应、结构效应和技术效应<sup>[16]</sup>,其中地区生产总值、规模以上工业总产值和人均地区生产总值是经济规模的直接体现,而二产比重则是经济结构的典型指标;(2) $O_3$ 前体物的排放与城市人类活动强度有关<sup>[17]</sup>,年平均人口和建成区面积代表了城市化水平,是人类活动强度的重要表现形式;(3)工业二氧化硫排放量、工业烟(粉)尘排放量体现了工业废气的排放量,民用汽车拥有量可反映前体物的交通来源,这3个指标都代表 $O_3$ 前体物的人为排放源。自然因素方面,选择了气温( $X_{10}$ )、日照时数( $X_{11}$ )、降水量( $X_{12}$ )、相对湿度( $X_{13}$ )、风速( $X_{14}$ )、地貌类型( $X_{15}$ )和建成区绿化覆盖率( $X_{16}$ )作为探测因子。选择这些指标的原因在于:气温和日照时数与光化学反应速率有密切关系<sup>[7~9]</sup>,降水量和相对湿度对 $O_3$ 及其前体物的有冲刷、沉降等清除作用<sup>[18]</sup>,风速与污染物区域传输强度密切相关<sup>[8,9]</sup>,地貌类型能影响污染物的传输和扩散<sup>[19]</sup>。此外,生物源排放的VOCs对 $O_3$ 浓度也有一定影响,由于生物源排放主要来自植被<sup>[20]</sup>,故选取建成区绿化覆盖率作为城市生物排放源的代表。

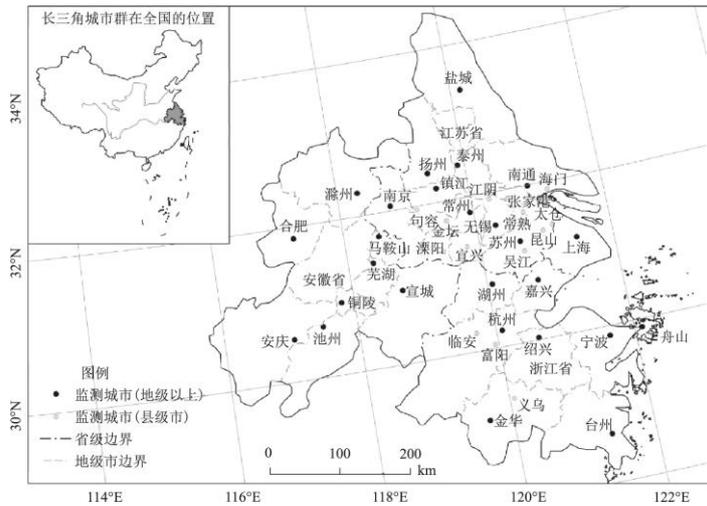


图1 长三角城市群空气质量监测站分布

### 1.3 研究方法

#### 1.3.1 空间插值方法

由于监测数据为点状数据,为了解长三角城市群 $O_3$ 浓度的整体分布格局,采用插值法将 $O_3$ 浓度空间分布插值成连续的表面。常用的空间插值方法有反距离加权法(IDW)、样条函数法(SM)、自然邻域法(NNM)、克里金插值法(OKM)等,其中OKM提供的半变异函数模型有球面、高斯、线形和指数等模型,插值法的具体原理参见文献<sup>[21]</sup>。不同的插值方法应用于不同的研究对象和区域时,插值精度不尽相同。为探寻长三角城市群 $O_3$ 浓度最优的空间插值方法,将 $O_3$ 浓度实测数据代入上述插值方法分别进行插值,并采用交叉验证法对插值精度进行评估。结果发现,采用OKM的球面模型且邻域城市设为12时插值效果较好,基本能反映长三角城市群 $O_3$ 浓度的分布格局。插值过程借助于ArcGIS软件的空间分析模块进行。

#### 1.3.2 空间自相关分析

空间自相关是用于测度某种地理现象或属性与相邻地理现象或属性空间相关程度的一种空间统计方法。本文采用全局Moran's I来测度长三角城市群 $O_3$ 浓度的空间关联程度。计算公式为<sup>[22]</sup>:

$$I = \frac{n \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^n \omega_{ij} (x_i - \bar{x}) (x_j - \bar{x})}{\left( \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^n \omega_{ij} \right) \sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2} \quad (1)$$

式中： $x_i$ 、 $x_j$ 分别为*i*、*j*城市 $O_3$ 浓度值； $\omega_{ij}$ 为空间权重矩阵；*n*为城市个数； $\bar{x}$ 为 $O_3$ 浓度平均值。*I*的取值范围为[-1, 1]， $I > 0$ 表示正相关， $I = 0$ 表示不相关， $I < 0$ 表示负相关， $|I|$ 越大相关性越强。采用Z检验对全局Moran's I进行显著性检验。

### 1.3.3 冷热点分析

使用Getis-Ord  $G_i^*$ 来探测 $O_3$ 浓度空间分布的高值簇(热点区)和低值簇(冷点区)的空间分布,计算公式为<sup>[23]</sup>:

$$G_i^*(d) = \frac{\sum_{j=1}^n \omega_{ij} x_j - \bar{X} \sum_{j=1}^n \omega_{ij}}{S \sqrt{\frac{[n \sum_{j=1}^n \omega_{ij}^2 - (\sum_{j=1}^n \omega_{ij})^2]}{n-1}}} \quad (2)$$

式中： $x_j$ 为*j*城市 $O_3$ 浓度值； $\omega_{ij}$ 为空间权重矩阵；*S*是标准差； $\bar{x}$ 为 $O_3$ 浓度平均值；*n*为城市个数。 $G_i^*$ 计算结果即为Z值，如果 $G_i^*$ 为正值且显著，则为热点， $G_i^*$ 为负值且显著，为冷点。

### 1.3.4 地理探测器

采用地理探测器探测 $O_3$ 浓度的空间分异性，以及某探测因子*X*在多大程度上解释了 $O_3$ 浓度的空间分异。用*q*值度量,计算公式为<sup>[24]</sup>:

$$q = 1 - \frac{\sum_{h=1}^L N_h \sigma_h^2}{N \sigma^2} \quad (3)$$

式中： $h=1, 2, \dots, L$ 为某探测因子*X*分区； $N_h$ 和*N*分别为*h*分区和全区城市个数； $\sigma_h^2$ 和 $\sigma^2$ 分别是分区*h*和全区 $O_3$ 浓度的方差。*q*的值为[0, 1]，*q*值越大说明因子*X*对 $O_3$ 浓度空间分异的解释力越强。

## 2 结果与讨论

### 2.1 $O_3$ 浓度的时间演变特征

2015~2017年长三角城市群 $O_3$ 浓度呈上升趋势(图2)。 $O_3$ -8h-90平均值由2015年的 $149 \mu g/m^3$ ,上升到2016和2017年的154和 $166 \mu g/m^3$ 。2017年有28个城市 $O_3$ 浓度比2015年高,占有效监测城市的71.8%,7个城市出现下降,占20.5%,3个城市保持不变,占7.7%。由图2可知,2015~2017年 $O_3$ -8h-90浓度整体上移, $O_3$ -8h-90 $\leq 120 \mu g/m^3$ 的城市由2015年的8个(占比20.5%),减少到

2016 的 4 个(占比 10.3%)和 2017 年的 2 个(占比 5.1%),其中 2015 年年评价指标为优( $O_3-8h-90 \leq 100 \mu g/m^3$ )的城市有 3 个(占比 7.7%),2016 和 2017 年均未出现优的城市。 $O_3-8h-90 \geq 161 \mu g/m^3$ (即年评价指标标超)的城市由 2015 年的 21 个(占比 53.8%),回落到 2016 年的 11 个(占比 28.2%)后,2017 年又迅速增加到 25 个(占比 64.1%)。由此可见,2015~2017 年低浓度城市  $O_3$  浓度不断抬升,高浓度城市在 2016 出现回落后,2017 年又快速上升。 $O_3$  浓度的上升,可能与气温和降水有关。2015~2017 年全国连续高温,平均气温比常年高  $0.94^\circ C$ 、 $0.81^\circ C$ 、 $0.84^\circ C$ ,为 2008 年以来全国气温最高的 3 年<sup>[25]</sup>。长三角城市群气温则连年上升,年均气温由 2015 年的  $16.7^\circ C$ ,上升到 2016 年的  $17.2^\circ C$  和 2017 年的  $17.3^\circ C$ 。高温能加速光化学反应,可能是促使长三角城市群  $O_3$  浓度持续上升的重要原因。另外,2017 年平均降水量仅为 1282.0mm,远低于 2015 年的 1626.3mm 和 2016 年的 1776.0mm,降水对  $O_3$  的抑制作用减弱,导致 2017 年  $O_3$  浓度上升更快。

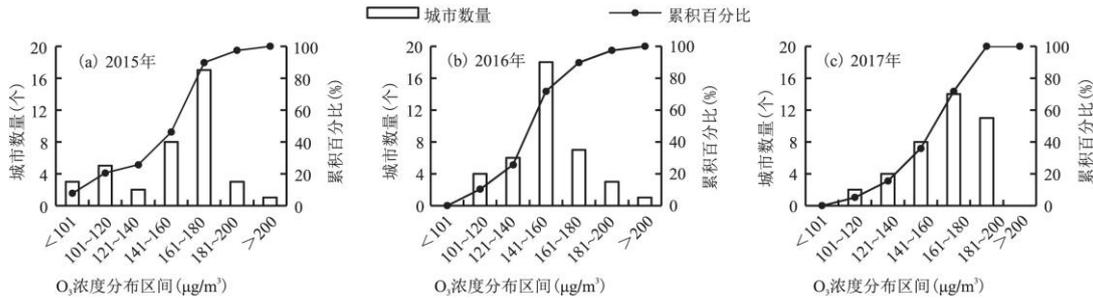


图 2 2015~2017 年长三角城市群  $O_3-8h-90$  浓度统计直方图

2015~2017 年长三角城市群年均超标天数分别为 33.8、31.8 和 44.2d,超标率分别为 9.3%、8.7%和 12.1%。2016 年  $O_3$  浓度较 2015 年高,但是超标率却有所下降,主要是因为 2016 年  $O_3$  浓度的升高主要由低浓度城市整体抬升引起,而高浓度城市  $O_3$  浓度却有所回落。低浓度城市  $O_3$  浓度虽然整体抬升,但超标率仍较小,而高浓度城市  $O_3$  的回落却使超标率明显下降。由图 3 可以看出,2015~2016 年,由于高浓度城市  $O_3$  浓度的回落,超标天数在 40d 以上的城市比例已由 48.7%下降到 28.2%。2017 年随着  $O_3$  浓度的进一步上升, $O_3$  超标率迅速上升,各城市超标天数整体上移,超标天数大于 40d 的城市比例达到了 61.5%。

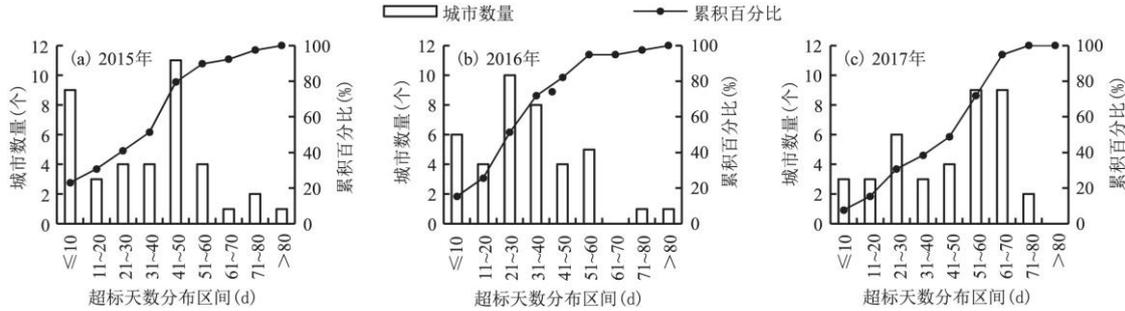


图 3 2015~2017 年  $O_3$  超标天数统计直方图

长三角城市群  $O_3$  浓度月变化曲线多呈“M”形(图 4)。1~5 月  $O_3$  浓度随气温的升高而升高,5 月达到第一个峰值。此后由于梅雨的到来, $O_3$  浓度开始下降,在 6 月(2016 年)或 7 月(2015 年)降低到谷值后, $O_3$  浓度再一次上升,至 8 月(2016 年)或 9 月(2015 年)达到第二个峰值。10~12 月  $O_3$  浓度随着气温的下降而下降,完成了一年的周期变化。受气温和降水量年际波动的影响,不同年份  $O_3$  月均浓度最大值、峰值和谷值出现的月份有所不同。2015 年  $O_3$  月均浓度在 9 月出现最大值,就与降水偏小有关,降水量为 101.3mm,仅为 2016、2017 年同期的 42.7%和 58.5%。2015、2016 年入梅时间明显偏早(分别为 5 月 26 日、5 月 25 日),出梅时间显著偏晚(分别为 7 月 27 日和 7 月 21 日),梅雨期降雨量显著偏多(分别为 578.6、662.1mm)<sup>[25]</sup>,因此 2015 和 2016 年梅雨期的谷

值特征非常明显,月变化曲线呈典型的“M”形。而2017年入梅(于6月4日)和出梅时间(7月11日)均偏早,梅雨期降雨量(362.8mm)虽较常年多6%<sup>[25]</sup>,但因7月气温明显偏高, $O_3$ 月均浓度在梅雨期未出现谷值,月变化曲线呈倒“V”形,且最大值出现在气温明显偏高、降水明显偏少的5月。从图4还可以看出, $O_3$ 污染集中发生在4~9月,超标天数分别占2015、2016、2017年的88.3%、98.2%和97.0%。2015年10月的超标率也较高,可能与降水异常有关,该月月均降水量为64.9mm,远低于2016和2017年同期的227.8和104mm。可见,1~5月和10~12月, $O_3$ 浓度主要受气温的影响,随气温的升降而升降,但5~9月 $O_3$ 浓度受降水量的影响更大。

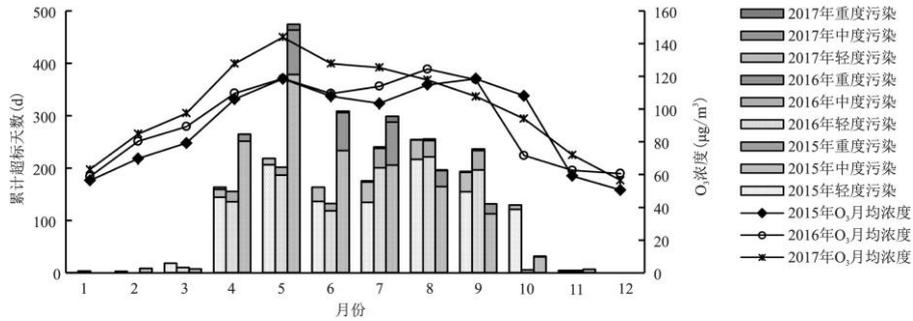


图4 2015~2017年长三角城市群 $O_3$ 浓度和超标天数的月变化

以 $O_3$ 为首要污染物的超标天数占超标总天数的比例逐年升高,有超越 $PM_{2.5}$ 成为最主要污染物的趋势。2015年以 $O_3$ 为首要污染物的超标天数比例为32.3%,2016、2017年已上升为34.9%和46.4%。以 $PM_{2.5}$ 为首要污染物的超标天数比例逐年下降,由2015年的64.1%,下降到2016年的60.8%和2017年的48.0%。在此消彼长之下,2017年以 $O_3$ 为首要污染物的超标天数比例已接近以 $PM_{2.5}$ 为首要污染物的超标天数比例。其中,在4~9月 $O_3$ 高污染时段,以 $O_3$ 为首要污染物的超标天数比例由2015年的76.1%,上升到2016、2017年的85.4%、89.9%。 $O_3$ 已成为长三角城市群仲春到初秋最主要的大气污染物。

## 2.2 $O_3$ 浓度空间格局的演变

利用OKM分别对2015~2017年长三角城市群 $O_3$ -8h-90进行插值,再利用ArcGIS10.2栅格计算器计算2015~2016年、2016~2017年、2015~2017年 $O_3$ 浓度的变化情况,并统计各城市 $O_3$ 超标率(图5)。结果表明,2015~2017年,随着安徽 $O_3$ 浓度的快速上升,长三角城市群 $O_3$ 浓度空间分布格局由东高西低演变为北高南低,且同质化增强、异质性减弱。2015年长三角城市群 $O_3$ 浓度东高西低的分布格局非常明显,江苏、上海和浙江 $O_3$ 浓度较高, $O_3$ -8h-90平均值分别为167、163和156 $\mu g/m^3$ ,安徽 $O_3$ 最低, $O_3$ -8h-90平均值为97 $\mu g/m^3$ ,仅为江苏的58.1%,上海的59.5%,浙江的62.2%。2016、2017年安徽 $O_3$ -8h-90平均值快速上升至135和158.25 $\mu g/m^3$ ,年均上升34.4%,平均超标率由2015年的0.7%上升到2016年的4.1%和2017年的9.8%。其中,合肥都市圈(包括合肥、芜湖和马鞍山) $O_3$ 浓度上升最快, $O_3$ -8h-90平均值由2015年的104 $\mu g/m^3$ ,上升到2017年的179 $\mu g/m^3$ ,年均上升35.8%,平均超标率由2015年的0.9%上升到2016年的5.4%和2017年的15.3%。江苏和上海 $O_3$ 浓度在2016年略有所回落后,2017年已分别上升至175和181 $\mu g/m^3$ ,平均超标率为14.3%和14.5%。浙江 $O_3$ 浓度呈下降趋势,2017年 $O_3$ -8h-90平均值下降至154 $\mu g/m^3$ ,平均超标率为9.7%,已与安徽相近, $O_3$ 浓度分布格局演变为北高南低,但空间差异已远小于2015年。整体来看,环太湖地区(包括常州、无锡、苏州、嘉兴、湖州)是长三角城市群 $O_3$ 高污染城市最集中的区域,是长三角城市群 $O_3$ 污染中心,近3年 $O_3$ -8h-90平均值达178 $\mu g/m^3$ ,平均超标率达16.6%。

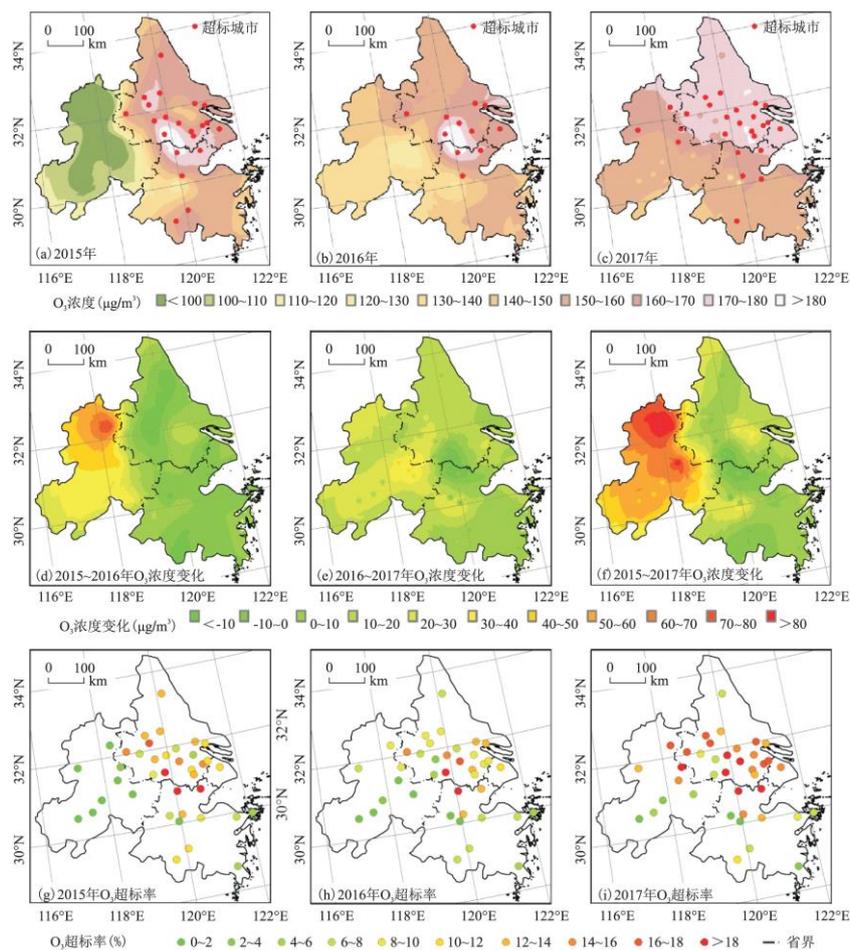


图5 2015~2017年长三角城市群O<sub>3</sub>浓度的空间演变

安徽省O<sub>3</sub>浓度快速上升,可能与经济快速发展有关。安徽地处长三角城市群腹地,具有承接江浙沪产业转移的优势。近年来安徽积极融入长三角,特别是《长江三角洲城市群发展规划》将安徽纳入长三角城市群以来,安徽经济取得高速发展。2016、2017年安徽省GDP增长率保持在8.5%以上,其中第二产业增加值增长率保持在8.3%以上,产业快速发展使本地污染物排放量增加。而江苏、上海和浙江等地,2016年以来通过实施VOCs排污收费和低VOCs含量溶剂推广等措施严格控制VOCs排放,江苏和上海O<sub>3</sub>浓度和超标率上升势头已有减缓,浙江O<sub>3</sub>浓度甚至有所下降。

### 2.3 O<sub>3</sub>浓度空间集聚演变特征

利用ArcGIS10.2对2015~2017年长三角城市群O<sub>3</sub>-8h-90进行空间自相关分析,结果表明(表1),各年份的全局Moran's I都为正值,且通过了99%的显著性检验。说明长三角城市群城市O<sub>3</sub>浓度受自身及邻近城市的共同影响,空间分布上具有相似值趋于集聚的特征,即高-高或低-低集聚。因此,O<sub>3</sub>污染治理必须加区域合作,联防联控。

表1 2015~2017年长三角城市群O<sub>3</sub>浓度全局Moran's I

年度/年	2015	2016	2017
Moran's I	0.282***	0.167***	0.278***

Z(I)	5.120	3.244	5.061
P	0.000	0.001	0.000

采用 Getis-Ord  $G^*$  探测长三角城市群  $O_3$  浓度的集聚区域, 结果如图 6 所示。2015~2017 年, 长三角城市群  $O_3$  浓度热点主要分布在上海和江苏南部, 冷点主要分布在安徽。但随着  $O_3$  浓度的上升, 热点区在扩大, 冷点区在收缩。  $O_3$  浓度热点区由环太湖地区向南京都市圈扩展, 2017 年热点已占据上海和整个江苏南部。可见, 在上海和江苏南部由于城市密集, 本地污染物排放量大, 且相互影响, 已形成了连片的  $O_3$  高污染区域。安徽省境内的冷点城市由 2015 年的 5 个, 收缩到 2017 年的 3 个。由于  $O_3$  浓度的回落, 2017 年浙江也出现了 2 个冷点城市。

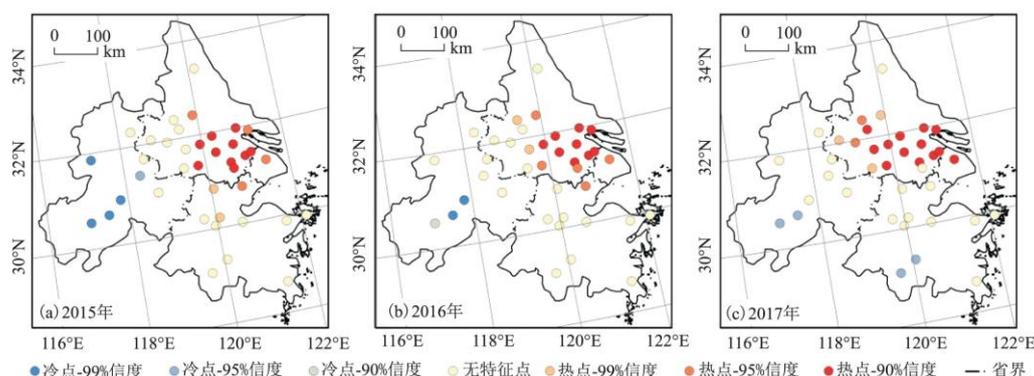


图 6 2015~2017 年长三角城市群  $O_3$  浓度空间集聚演变

#### 2.4 $O_3$ 浓度空间分布驱动因素分析

地理探测器擅长分析类型变量, 对于数值型变量, 分析前需要离散化<sup>[26]</sup>。本文使用 quantile(百分位数法)将各数值型变量等分为 3 个等级, 以使每个等级里的城市数量基本相同。由于地理探测器不能识别探测因子的影响方向, 本文使用相关分析为每个数值型变量确定影响方向。如果探测因子与  $O_3$  浓度呈正相关, 则认为该因子呈正向影响,  $q$  值为正值; 如果呈负相关, 则认为该因子呈负向影响,  $q$  值为负值。本文只确定通过显著性检验的探测因子的影响方向。

地理探测器分析结果显示(表 2), 社会经济因素的影响力明显大于自然因素, 通过显著性检验的 9 个因子中, 有 7 个是社会经济因素, 表明长三角城市群  $O_3$  浓度的空间分异主要是由于经济发展水平不同引起的。

表 2 地理探测器分析结果

探测因子	q	p	探测因子	q	p
地区生产总值 ( $X_1$ )	0.348**	0.016	工业烟(粉)尘排放量 ( $X_9$ )	0.048	0.585
规模以上工业总产值 ( $X_2$ )	0.290**	0.033	民用汽车拥有量 ( $X_{10}$ )	0.485***	0.000
人均地区生产总值 ( $X_3$ )	0.226*	0.089	气温 ( $X_{11}$ )	0.043	0.724

二产比重 ( $X_4$ )	0.069	0.497	日照时数 ( $X_{12}$ )	0.095	0.326
年平均人口 ( $X_5$ )	0.251*	0.053	降水量 ( $X_{13}$ )	-0.425**	0.030
建成区面积 ( $X_6$ )	0.373**	0.011	相对湿度 ( $X_{14}$ )	0.072	0.601
建成区绿化覆盖率 ( $X_7$ )	0.278**	0.026	风速 ( $X_{15}$ )	-0.288*	0.051
工业二氧化硫排放量 ( $X_8$ )	0.361**	0.013	地貌类型 ( $X_{16}$ )	0.028	1.000

#### 2.4.1 驱动 $O_3$ 浓度空间分布的社会经济因素解析

##### (1) 经济规模驱动。

地区生产总值 (0.348\*\*)、规模以上工业总产值 (0.290\*\*) 和人均地区生产总值 (0.226\*) 的影响力较大, 均通过了显著性检验, 且呈正向影响, 表明经济规模效应加剧了城市  $O_3$  污染。安徽  $O_3$  浓度快速上升、环太湖地区形成  $O_3$  污染中心, 均与经济规模驱动有关。根据环境库兹涅茨曲线 (EKC) 假说<sup>[27]</sup>, 环境压力与经济增长的长期关系呈现“倒 U”形关系, 即: 在低收入水平阶段, 环境质量随着经济发展逐渐恶化; 经济发展到一定水平后, 环境质量随着经济发展而逐渐改善。从时间变化上看, 近 3 年来, 长三角城市群  $O_3$  浓度随经济的发展而上升。从空间分布上看, 长三角城市群  $O_3$  浓度的空间分异具有经济发展规模指向性, 经济规模大的城市  $O_3$  污染往往较严重。可见, 长三角城市群经济发展和  $O_3$  污染改善之间仍处于环境库兹涅茨曲线的爬坡阶段, 未来加大  $O_3$  污染治理力度, 加快经济发展的绿色转型, 是实现经济和生态环境和谐发展的必经之路。

##### (2) 经济结构驱动。

二产比重的影响力未通过显著性检验, 说明经济结构对  $O_3$  浓度的影响不大。可能是因为目前长三角城市群正处于经济结构调整时期, 部分经济较发达的城市的二产比重虽已率先下降, 但整体上对工业的依赖度仍然较高,  $O_3$  污染仍较严重, 导致二产比重对  $O_3$  浓度的空间差异性区分度不高。典型城市如上海、杭州、南京, 2016 年二产比重已下降为 29.83%、34.64%、39.2%, 为长三角城市群二产比重最低的 3 座城市, 但  $O_3$ -8h-90 却分别达 168、171 和 182  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ , 远高于长三角城市群的平均水平。未来应继续推进经济结构的优化调整, 提高资源利用效率, 降低污染负荷, 促使产业结构调整的环境成效尽早显现。

##### (3) 城市化驱动。

建成区面积、年平均人口对长三角城市群  $O_3$  浓度空间分异均有较大的解释力,  $q$  值分别为 0.373\*\*、0.251\*, 说明建成区面积大、年平均人口多的城市  $O_3$  浓度往往较高。城市化的发展, 一方面会造成  $O_3$  前体物面源排放量的增加, 促使  $O_3$  浓度上升; 另一方面城市化引起的土地利用变化和热岛环流, 对  $O_3$  浓度也有重要影响。如城市热岛效应引起的温度升高会加速光化学反应, 白天易形成流向城市中心的辐合气流, 不利于污染物扩散, 夜间大气易形成稳定层结, 也不利于污染物的扩散<sup>[28,29]</sup>。WRF-Chem 模式模拟也证实, 城市化对上海市市区  $O_3$  浓度的升高有显著影响<sup>[12]</sup>。

##### (4) 人为排放源驱动。

民用汽车拥有量在所有因子中影响力最大, 是唯一通过 99% 显著性检验的因子。研究表明, 汽车尾气排放的  $\text{NO}_x$  和  $\text{VOCs}$  已成为近地层  $O_3$  前体物的主要来源<sup>[30]</sup>, 其对我国城市  $\text{VOCs}$  平均贡献率达 36.8%<sup>[31]</sup>, 南京的贡献率甚至达 50%<sup>[32]</sup>。致使民用汽车拥有量对长三角城市群  $O_3$  的空间分异有最大的解释力, 这与易睿等的结论相一致<sup>[7]</sup>。因此, 未来提高机动车排放标准、淘汰黄标车和大力发展公共交通是长三角城市群  $O_3$  防治的重要途径。 $\text{SO}_2$  是  $O_3$  前体物之一, 工业二氧化硫排放量对  $O_3$  浓度的影响较大,  $q$  值为 0.361\*\*, 且呈正向影响。

因此控制 SO<sub>2</sub> 排放也是 O<sub>3</sub> 污染治理的重要途径。工业烟(粉)尘排放量的影响不大,未通过显著性检验。

#### 2.4.2 驱动 O<sub>3</sub> 浓度空间分布的自然因素解析

##### (1) 气象因素驱动。

气象因素中只有降水量和风速的影响力通过了显著性检验。其中降水量的影响力最大, q 值为-0.425\*\*, 呈负向影响, 是长三角城市群 O<sub>3</sub> 的重要抑制因子。降水对 O<sub>3</sub> 浓度有显著的抑制作用<sup>[33]</sup>: ①降水量大, 意味着云雨天气多, 云雾覆盖使日照时数减少, 光化学反应减弱, O<sub>3</sub> 浓度减小; ②降雨本身对 O<sub>3</sub> 有冲刷作用, 使 O<sub>3</sub> 浓度降低; ③降雨同时还对 O<sub>3</sub> 前体污染物有冲刷作用, 间接地造成 O<sub>3</sub> 浓度减小。安徽宣城、铜陵、池州和安庆形成长三角城市群 O<sub>3</sub> 浓度的低值区, 与降水量大有密切关系, 2016 年 4 个市的平均降水量为 2479.4mm, 远高于长三角城市群平均值的 1547.5mm。风速对长三角城市群 O<sub>3</sub> 浓度也呈负向影响, 影响力为-0.288\*, 表明风速对 O<sub>3</sub> 具有重要的扩散和稀释作用。由于 O<sub>3</sub> 污染主要发生在夏季, 长三角地区夏季盛行东南风, 来自海洋的清洁空气对沿海城市 O<sub>3</sub> 浓度有重要的稀释作用。上海作为长三角城市群经济发展中心, 是唯一超大城市, O<sub>3</sub> 浓度却不是最高的, 可能与来自海洋的清洁空气的稀释有关。同时, 气流的传输作用也使城市间 O<sub>3</sub> 相互扩散相互影响<sup>[11]</sup>, 这是长三角城市群 O<sub>3</sub> 浓度具有空间自相关性的重要原因。

气温和日照时数的影响力均未通过显著性检验。研究显示, 气温和太阳辐射具有季节变化和日变化特征, 是 O<sub>3</sub> 浓度出现季节变化和昼夜循环的主要原因<sup>[8,9]</sup>, 2016、2017 年长三角城市群 O<sub>3</sub> 浓度的快速上升也可能与气温的上升有关。但气温和日照时数对长三角城市群 O<sub>3</sub> 浓度的空间分异区分度不大。可能是因为长三角城市群城市间年均气温本身相差不大, O<sub>3</sub> 浓度最高的夏季午后气温相差更小, 且夏季午后气温普遍大于 25℃, 均具有强烈光化学反应的气温条件<sup>[34]</sup>, 导致年均气温对 O<sub>3</sub> 浓度的空间分异区分度不高。相对湿度的影响力也未通过显著性检验, 可能也与其空间差异较小有关。

##### (2) 地形地貌驱动。

地形地貌主要通过改变局部地区气象条件(如流场和温度层结等)来影响大气污染物的扩散, 如南京 O<sub>3</sub> 污染较严重, 就与其相对封闭的地形有关<sup>[35]</sup>。但是从整体上看, 长三角城市群地处长江冲积平原, 地形平坦, 地形地貌对 O<sub>3</sub> 的影响较小, 影响力未通过显著性检验。

##### (3) 生物源排放驱动。

城市 O<sub>3</sub> 前体物除了来自人为排放外, 还有部分来自生物源。建成区绿化覆盖率对 O<sub>3</sub> 浓度分布的影响不显著, 说明生物源排放对城市 O<sub>3</sub> 浓度影响不大, 城市 O<sub>3</sub> 污染是由人类活动引起的。

### 3 结论

通过以上分析, 可以得出以下结论:

(1) 2015~2017 年长三角城市群 O<sub>3</sub> 浓度呈上升趋势。O<sub>3</sub>-8h-90 平均值由 2015 年的 149 μg/m<sup>3</sup> 上升到 2017 年的 166 μg/m<sup>3</sup>, 超标率由 9.3% 上升到 12.1%, 以 O<sub>3</sub> 为首要污染物的天数占超标总天数的比例由 32.3% 上升到 46.4%。

(2) 受月均气温和降水量年际波动的影响, 长三角城市群不同年份 O<sub>3</sub> 浓度月变化曲线的形状不同。在梅雨时间显著偏长、降水量显著偏多的 2015 和 2016 年, O<sub>3</sub> 浓度月变化曲线呈“M”形。而在出梅偏早、7 月气温偏高的 2017 年, O<sub>3</sub> 浓度月变化曲线呈倒“V”形。但 O<sub>3</sub> 超标都主要发生在 4~9 月, 超标天数分别占 2015、2016、2017 年的 88.3%、98.2% 和 97.0%。

---

(3) 由于安徽  $O_3$  浓度持续快速上升, 2015~2017 年长三角城市群  $O_3$  浓度空间分布格局由东高西低演变为北高南低, 且同质化增强、异质性减弱。

(4) 长三角城市群  $O_3$  浓度具有空间自相关性。2015~2017 年,  $O_3$  浓度热点区由环太湖地区向南京都市圈扩展, 冷点区在安徽有明显收缩。

(5) 地理探测表明, 社会经济因素对  $O_3$  浓度空间分布格局的影响力明显大于自然因素。其中, 经济规模、城市化和排放源对  $O_3$  浓度分布有显著的正向驱动作用, 经济结构的驱动作用不明显。自然因素中, 降水量和风速有显著的负向影响, 对  $O_3$  浓度分别有清除和扩散作用, 其它因子的影响力不显著。

#### 参考文献:

- [1] 周亮, 周成虎, 杨帆, 等. 2000-2011 年中国 PM<sub>2.5</sub> 时空演化特征及驱动因素解析[J]. 地理学报, 2017, 72(11):2079-2092.
- [2] WANG T, XUE L, BRIMBLECOMBE P, et al. Ozone pollution in China: A review of concentrations, meteorological influences, chemical precursors, and effects[J]. Science of the Total Environment, 2016, 575:1582-1596.
- [3] WANG Y, SONG Q, FREI M, et al. Effects of elevated ozone, carbon dioxide, and the combination of both on the grain quality of Chinese hybrid rice[J]. Environmental Pollution, 2014, 189(12):9-17.
- [4] ADON M, GALYLACAUX C, YOBOUE V, et al. Dry deposition of nitrogen compounds (NO<sub>2</sub>, HNO<sub>3</sub>, NH<sub>3</sub>), sulfur dioxide and ozone in West and Central African ecosystems using the inferential method[J]. Atmospheric Chemistry & Physics, 2013, 13(22):11351-11374.
- [5] FISHMAN J, CRUTZEN P J. The origin of ozone in the troposphere[J]. Nature, 1978, 274(5674):855-858.
- [6] 陈优良, 陶天慧, 丁鹏. 长江三角洲城市群空气质量时空分布特征[J]. 长江流域资源与环境, 2017, 26(5):42-52.
- [7] 易睿, 王亚林, 张殷俊, 等. 长江三角洲地区城市臭氧污染特征与影响因素分析[J]. 环境科学学报, 2015, 35(8):2370-2377.
- [8] 赵旭辉, 董昊, 季冕, 等. 合肥市  $O_3$  污染时空变化特征及影响因素分析[J]. 环境科学学报, 2018, 38(2):649-660.
- [9] 齐冰, 牛彘文, 杜荣光, 等. 杭州市近地面大气臭氧浓度变化特征分析[J]. 中国环境科学, 2017, 37(2):443-451.
- [10] LI L, CHEN C, HUANG C, et al. Ozone sensitivity analysis with the MM5-CMAQ modeling system for Shanghai[J]. Journal of Environmental Sciences, 2011, 23(7):1150-1157.
- [11] 李浩, 李莉, 黄成, 等. 2013 年夏季典型光化学污染过程中长三角典型城市  $O_3$  来源识别[J]. 环境科学, 2015, 36(1):1-10.
- [12] 顾莹, 束炯. 上海城市化对气象要素和臭氧浓度的影响[J]. 环境污染与防治, 2010, 32(5):7-13.
- [13] 李莉, 陈长虹, 黄成, 等. 长江三角洲地区大气  $O_3$  和 PM<sub>10</sub> 的区域污染特征模拟[J]. 环境科学, 2008, 29(1):237-245.

- 
- [14] 刘海猛, 方创琳, 黄解军, 等. 京津冀城市群大气污染的时空特征与影响因素解析[J]. 地理学报, 2018, 73(1): 177-191.
- [15] HOSODA E. Environmental economics and policy studies[M]. Springer, 2016.
- [16] 王少剑, 苏泳娴, 赵亚博. 中国城市能源消费碳排放的区域差异、空间溢出效应及影响因素[J]. 地理学报, 2018, 73(3): 414-428.
- [17] 雷瑜, 张小玲, 唐宜西, 等. 北京城区 PM<sub>2.5</sub> 及主要污染气体“周末效应”和“假日效应”研究[J]. 环境科学学报, 2015, 35(5): 1520-1528.
- [18] 强琳, 董卫民, 徐衡, 等. 宝鸡市夏季臭氧及其前体物污染特征研究[J]. 环境工程, 2016, 34(6): 101-105.
- [19] 曹庭伟, 吴锴, 康平, 等. 成渝城市群臭氧污染特征及影响因素分析[J]. 环境科学学报, 2018, 38(4): 1275-1284.
- [20] 苏彬彬. 华东森林及高山背景区域臭氧变化特征及影响因素[J]. 环境科学, 2013, 34(7): 2519-2525.
- [21] 刘湘南, 黄方, 王平. GIS 空间分析原理与方法[M]. 科学出版社, 2005.
- [22] 严志翰, 任丽燕, 刘永强, 等. 浙江省碳排放时空格局及影响因素研究[J]. 长江流域资源与环境, 2017, 26(9): 136-144.
- [23] 李芳林, 蒋昊. 长江经济带城市环境风险评价研究[J]. 长江流域资源与环境, 2018, 27(5): 939-948.
- [24] WANG J F, LI X H, CHRISTAKOS G, et al. Geographical detectors-based health risk assessment and its application in the neural tube defects study of the Heshun Region, China[J]. International Journal of Geographical Information Science, 2010, 24(1): 107-127.
- [25] 中国气象局. 2015~2017 年中国气候公报[R]. 北京: 中国气象局, 2015-2017.
- [26] 王劲峰, 徐成东. 地理探测器: 原理与展望[J]. 地理学报, 2017, 72(1): 116-134.
- [27] GROSSMAN G M, KRUEGER A B. Economic growth and the environment[J]. Quarterly Journal of Economics, 1995, 110(2): 353-377.
- [28] 韩素芹, 孟冬梅, 佟华, 等. 天津城市热岛及其对污染物扩散影响的数值模拟[J]. 生态环境学报, 2009, 18(2): 403-407.
- [29] CIVEROLO K, HOGREFE C, LYNN B, et al. Estimating the effects of increased urbanization on surface meteorology and ozone concentrations in the New York City metropolitan region[J]. Atmospheric Environment, 2007, 41(9): 1803-1818.
- [30] WANG Y, HOPKE P K, XIA X, et al. Source apportionment of airborne particulate matter using inorganic and organic species as tracers[J]. Atmospheric Environment, 2012, 55(3): 525-532.
- [31] 陈天增, 葛艳丽, 刘永春, 等. 我国机动车排放 VOCs 及其大气环境影响[J]. 环境科学, 2018, 39(2): 478-492.

---

[32]AN J, ZHU B, WANG H, et al. Characteristics and source apportionment of VOCs measured in an industrial area of Nanjing, Yangtze River Delta, China[J]. Atmospheric Environment, 2014, 97:206-214.

[33]肖辉, 沈志来, 黄美元, 等. 我国西南地区地面和低层大气臭氧的观测分析[J]. 大气科学, 1993, 17(5):621-628.

[34]刘姣姣, 蒋昌潭, 宋丹, 等. 重庆夏季近地面臭氧变化规律及影响因素分析[J]. 重庆大学学报, 2014, 37(8):91-98.

[35]王学远, 蒋维楣, 刘红年, 等. 南京市重点工业源对城市空气质量影响的数值模拟[J]. 环境科学研究, 2007, 20(3):33-43.