DOI: 10.19741/j.issn.1673-4831.2019.0714

卫佩茹, 邵天杰, 黄小刚, 等. 2015—2018年东北地区臭氧浓度时空变化特征及其驱动因素研究[J]. 生态与农村环境学报, 2020, 36(8).

WEI Pei-ru, SHAO Tian-jie, HUANG Xiao-gang, et al. Study of Spatio-Temporal Variation and the Influencing Factors of Ozone in Northeast China During 2015-2018[J]. Journal of Ecology and Rural Environment, 2020, 36(8).

2015—2018年东北地区臭氧浓度 时空变化特征及其驱动因素研究

卫佩茹^{1,2}, 邵天杰^{1,2①}, 黄小刚^{1,2,3}, 张忠地^{1,2} (1. 陕西师范大学地理科学与旅游学院, 陕西 西安 710119; 2. 陕西师范大学地理学国家级实验教学示范中心, 陕西 西安 710119; 3. 山西师范大学地理科学学院, 山西 临汾 041004)

摘要: 基于 O₃ 浓度监测数据, 采用空间自相关分析和地理探测器, 分析了东北地区 35 个城市 2015—2018 年 O₃ 浓度的时空变化特征及其影响因素。结果表明, 2015—2018 年东北地区 O₃ 浓度年际变化呈缓慢上升趋势, 季均浓度值呈春夏高、秋冬低的特征, 月均浓度变化规律呈倒“V”型分布; 受气温影响, O₃ 浓度高值区主要分布在辽宁及吉林两省, 并表现出逐年向北扩增的趋势; O₃ 浓度具有明显的集聚特征, 热点主要分布在辽宁省; 气象因素和社会经济因素都是影响 O₃ 浓度分布的重要驱动因子, 其中气温、二产占比和民用汽车拥有量与 O₃ 浓度的分布具有极显著相关性。

关键词: O₃ 浓度; 时空变化; 驱动因素; 东北地区

中图分类号: X823 **文献标志码:** A **文章编号:** 1673-4831(2020)08-0988-10

Study of Spatio-Temporal Variation and the Influencing Factors of Ozone in Northeast China During 2015-2018.

WEI Pei-ru^{1,2}, SHAO Tian-jie^{1,2①}, HUANG Xiao-gang^{1,2,3}, ZHANG Zhong-di^{1,2} (1. School of Geography and Tourism, Shaanxi Normal University, Xi'an 710119, China; 2. National Demonstration Center for Experimental Geography Education, Shaanxi Normal University, Xi'an 710119, China; 3. School of Geography Sciences, Shanxi Normal University, Linfen 041004, China)

Abstract: Based on the ozone monitoring data, the spatio-temporal variation of ozone concentration and its influencing factors of 35 cities in Northeast China from 2015 to 2018 were analyzed via spatial auto-correlation analysis and geographical detector. The results show that the interannual variation of ozone concentration increased from 2015 to 2018 and the monthly ozone concentration followed a pattern of inverted "V", which was higher in spring and summer and lower in autumn and winter. The high ozone concentration areas were mainly distributed in Liaoning Province and Jilin Province, which expanded to the north due to the effect of temperature. The ozone concentration had significant characteristics of agglomeration with hot spots distributed mainly in Liaoning Province. Meteorological factors and socio-economic factors all had significant effects on the distribution of ozone concentration. Temperature, the proportion of secondary industry and the ownership of civilian automobiles were all significantly correlated with ozone concentration.

Key words: ozone concentration; spatio-temporal variation; influencing factors; Northeast China

臭氧(O₃) 在平流层能够吸收 0.20~0.29 μm 的紫外辐射, 对生物圈具有保护作用^[1-3]; 但在近地面高浓度的 O₃ 不仅能促进 PM_{2.5} 的生成, 加重大气污染^[4-6], 而且是重要的温室气体, 会加强温室效应^[7]。自《大气污染防治行动计划》实施以来, 颗粒物等大气污染物浓度得到一定程度的减少, 而 O₃ 浓度不降反升。已有研究表明 O₃ 已成为仅次于 PM_{2.5} 的大气污染物, 并且污染愈发严重^[8]。

为全面认识 O₃ 的污染规律, 目前已有学者从不

同时空对影响 O₃ 浓度的因素做了大量研究。有研究表明, 气象因素和前体物排放是 O₃ 污染的重要因素^[9-12]。王玫等^[13]认为, 京津冀地区 O₃ 污染具有明显的区域一致性, 当风速为 2~3 m·s⁻¹、相对湿度

收稿日期: 2019-09-17

基金项目: 中央高校基本科研业务费专项(GK201803055); 陕西省博士后科学基金(2016BSHEDZZ27)

① 通信作者 E-mail: tjshao2010@126.com

度在 50%~60% 之间、气温高于 30 °C 时 O₃ 超标率最大。曹庭伟等^[14]对成渝城市群 O₃ 和其他大气污染物及气象因子进行了对比研究,发现 O₃ 与颗粒物、NO₂、CO 浓度呈相反的变化趋势,且在太阳辐射大于 15.0 MJ·m⁻² 时 O₃ 平均浓度大于 100 μg·m⁻³。易睿等^[15]对长三角地区城市 2013 年 O₃ 浓度的影响因素进行研究,结果表明各城市机动车保有量、日照时数和温度与 O₃ 浓度存在显著正相关。廖志恒等^[16]研究得出 2006—2012 年珠三角地区 O₃ 浓度与年日照时数的变化趋势一致。沈劲等^[17]基于 NAQPMS 模型研究,发现偏北风的作用导致广东省秋季省外贡献远高于其他季节。总的来看,国内 O₃ 研究主要集中在京津冀、长三角以及珠三角等经济发达地区,而对于东北地区的研究较少,且多是针对哈尔滨、沈阳、大连等单个城市进行分析,缺乏长时间序列、大尺度区域的系统研究^[4,18,19]。

该研究基于东北地区城市群 2015 年 1 月—2018 年 12 月的监测数据,分析讨论 O₃ 的时空变化特征,并利用地理探测器解析 O₃ 浓度空间变化的驱动因素,为东北地区开展大气污染防治行动、调整能源结构、引导产业布局提供科学依据。

1 数据来源与研究方法

1.1 数据来源与评价标准

O₃ 浓度监测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/>),数据起止时间为 2015 年 1 月 1 日至 2018 年 12 月 31 日。O₃ 日评价指标采用 O₃ 日最大 8 h 滑动平均浓度 (O₃-8h),年评价指标采用 O₃ 日最大 8 h 滑动平均浓度第 90 百分位数 (O₃-8h-p90)。数据异常值按 HJ 630—2011《环境监测质量管理技术导则》进行判断和处理,数据有效性按 GB 3095—2012《环境空气质量标准》和 HJ 663—2013《环境空气质量评价技术规范(试行)》进行筛选。东北地区在全国城市空气质量实时发布平台上发布的监测城市有 37 个,其中 36 个为地级市,1 个为县级市。为使评价单元间具有可对比性,该研究仅研究地级市监测城市。此外,由于朝阳市数据缺失较多,不符合 GB 3095—2012 规定的数据统计有效性要求而被剔除,实际研究城市为 35 个(图 1)。

空间格局的驱动因素研究仅限于 2017 年。气象数据来源于中国气象网 (<http://data.cma.cn>) 公布的中国地面气候资料日值数据集 (V3.0),数据集原始数据文件已经过严格的质量控制和检查。社

会经济统计数据来源于国家统计局最新公布的《中国城市统计年鉴 2018》。

审图号:GS(2020)2975号

图 1 研究区各城市位置

Fig. 1 Cities in Northeast China in this study

根据 HJ 633—2012《环境空气质量指数(AQI)技术规定(试行)》,将 O₃ 空气质量划分为 5 个级别,即优、良、轻度污染、中度污染和重度及以上污染,范围分别为 1~100、>100~160、>160~215、>215~265 和 >265 μg·m⁻³, >160 μg·m⁻³ 为超标。

1.2 驱动因素选择

O₃ 浓度变化原因复杂,目前认为影响 O₃ 的因素主要为气象因素和工业化城市化等人为因素,气温、降水量和日照时数等通过影响光化学反应的发生,从而引起近地面 O₃ 浓度的改变^[20-22];人类活动排放的 O₃ 前体物是导致 O₃ 浓度上升的主要因素^[23,24]。据此,该研究选取的气象因素为气温 (X₁)、降水量 (X₂)、平均风速 (X₃)、日照时数 (X₄) 和相对湿度 (X₅),选择这些因子的原因在于:气温和日照时数与 O₃ 的光化学反应速率有密切关系^[14,15,25];风速会影响 O₃ 及其前体物的扩散和传输速度^[23,26];降水量和相对湿度对 O₃ 及其前体物有显著的冲刷、沉降等清除作用^[27,28]。社会经济因素为年平均人口 (X₆)、人均生产总值 (X₇)、建成区面积 (X₈)、绿地面积 (X₉)、二产占比 (X₁₀)、工业烟(粉)尘排放量 (X₁₁)、工业二氧化硫排放量 (X₁₂)、工业氮

氧化物排放量(X_{13})和民用汽车拥有量(X_{14}),选择这些因子的原因在于:年平均人口和建成区面积代表了城市化水平,城市化的发展可以从增加 O_3 前体物面源排放量和改变土地利用方式2个方面影响 O_3 浓度的变化^[29];人均生产总值和二产占比分别是经济规模和经济结构的重要指标,可以反映经济增长对环境的污染^[24];工业二氧化硫排放量、工业氮氧化物排放量和工业烟(粉)尘排放量以及民用汽车拥有量可以反映 O_3 前体物的工业和交通来源^[23,30];绿地面积代表了 O_3 前体物的生物来源,其排放的VOCs在 O_3 生成过程中起一定作用^[31,32]。此外,太阳辐射强度是 O_3 形成的因素之一^[25,33-34],但该研究未能获取足够的太阳辐射数据,因此暂不选取该参数。

1.3 研究方法

1.3.1 空间插值方法

由于监测数据为点状分布,为便于观察东北地区 O_3 浓度的整体分布格局,采用克里金插值法(OKM)插值成连续分布的栅格数据。OKM为能够在空间数据分布不均的条件下对插值点属性的空间行为进行全面分析的无偏最优估算法^[35]。使用ArcGIS 10.2软件对东北地区35个城市的 O_3 浓度进行空间插值,并从中随机抽取4个进行交叉验证,精度在83%以上,具有较好的空间插值效果。

1.3.2 空间自相关分析

空间自相关是指空间事物或现象在空间分布中具有相关性,且距离越近相关性越强^[36]。使用Moran's I 探测东北地区城市群 O_3 浓度分布的空间自相关性。计算公式如下:

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

式(1)中, I 为全局Moran's I 指数值; n 为监测城市数量; x_i, x_j 分别为城市 i, j 的 O_3 质量浓度值, $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$; ω_{ij} 为空间权重矩阵; $\bar{x}$ 为 O_3 浓度平均值, $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ 。 $I \in [-1, 1]$, $I > 0$ 表示正相关,即相似的 O_3 浓度值区域集聚(高-高集聚,低-低集聚), $I < 0$ 表示负相关,即相似的 O_3 浓度值区域离散(高-低集聚,低-高集聚)。采用 Z 检验对全局Moran's I 进行显著性检验,计算公式如下:

$$Z_I = \frac{I - E_I}{\sqrt{V_I}} \quad (2)$$

式(2)中, Z_I 为全局Moran's I 的 Z 检验值; V_I 为全

局Moran's I 的变异系数; E_I 为其数学期望。如果 Z_I 为正且显著,即存在正的空间自相关关系;如果 Z_I 为负且显著,即存在负的空间自相关关系。

1.3.3 热点和冷点分析

虽然全局Moran's I 能从整体上反映研究区事物或现象的空间自相关性,但无法识别局部的集聚状态和程度^[37]。使用Getis-Ord G_i^* (Z 检验值)来识别区域内不同空间位置的高值簇和低值簇,即热点区和冷点区,计算公式如下:

$$G_i^* = \frac{\sum_{j=1}^n \omega_{ij} x_j - \bar{x} \sum_{j=1}^n \omega_{ij}}{S \sqrt{\frac{[n \sum_{j=1}^n \omega_{ij}^2 - (\sum_{j=1}^n \omega_{ij})^2]}{n-1}}} \quad (3)$$

式(3)中, S 为标准差。如果 G_i^* 为正且显著,表示位置 i 周围的值较高,为热点(高值集聚);如果 G_i^* 为负且显著,表示位置 i 周围的值较低,为冷点(低值集聚)。

1.3.4 地理探测器

地理探测器是探测空间分异性及其驱动力的一组统计学方法。它可以检验单变量的空间分异性,同时也可以检验自变量与因变量之间的一致性^[38]。地理探测器包括4个模块:因子探测器、风险探测器、交互作用探测器、生态探测器^[39]。因子探测器在大气污染问题方面有较多应用^[30,40,41]。

使用因子探测器计算各评价因子对 O_3 浓度空间分异的解释力($P_{D,U}$),计算公式如下:

$$P_{D,U} = 1 - \frac{\sum_{i=1}^m n_{D,i} \sigma_{U_{D,i}}^2}{n \sigma_U^2} \quad (4)$$

式(4)中, U 为影响因子 D 的分区; $n_{D,i}$ 为次一级分区城市数量; $\sigma_{U_{D,i}}^2$ 为次一级分区 O_3 浓度方差; n 为次级分区数量; σ_U^2 为监测城市 O_3 浓度的方差。 $P_{D,U} \in [0, 1]$,值越接近1,表示影响因子对 O_3 浓度变化的解释力越强。

地理探测器不能识别探测因子的影响方向,因此采用Pearson相关分析为数值型因子确定影响方向,探测因子与 O_3 浓度呈正相关关系确定为正向影响,负相关关系为负向影响。

2 结果与讨论

2.1 时间变化特征

2.1.1 O_3 浓度的年际变化

2015—2018年东北地区 O_3 浓度呈缓慢增加趋

势(表 1)。O₃ 年均质量浓度由 2015 年的 81 μg · m⁻³ 上升到 2018 年的 85 μg · m⁻³, O₃-8h-p90 平均值由 133 μg · m⁻³ 上升到 138 μg · m⁻³, 未超过二级标准限值(160 μg · m⁻³)。O₃ 超标天数和超标率也呈增长趋势, 在 2018 年超标天数为 668 d, 占监测总天数的 5.1%, 其中轻度污染 589 d, 占 88.2%, 中度污染及重度污染分别占 10.6% 和 1.2%。

表 1 2015—2018 年东北地区城市群 O₃ 浓度水平及超标情况

Table 1 Ozone concentration and non-attainment from 2015 to 2018 in Northeast China

年份	$\rho(O_3)/(\mu g \cdot m^{-3})$	O ₃ -8h-p90/ ($\mu g \cdot m^{-3}$)	O ₃ 超标总 天数/d	O ₃ 超标 率/%
2015	81	133	598	4.6
2016	84	131	675	5.1
2017	87	131	655	5.0
2018	85	138	668	5.1

2.1.2 O₃ 浓度的季节变化

受气象条件季节变化的影响, O₃ 浓度具有明显的季节变化特征, 整体表现为春夏高、秋冬低(表 2)。2015—2018 年春季、夏季、秋季和冬季的平均浓度分别为 103、106、69 和 57 μg · m⁻³, 夏季约为冬季的 1.9 倍, 季节差异明显。从 O₃ 浓度上升的绝对量来看, 冬季 O₃ 平均质量浓度从 2015 年的 50 μg · m⁻³ 上升到 2018 年的 62 μg · m⁻³, 年均增长率达到

7.4%, 其余季节没有显著变化。

表 2 2015—2018 年东北地区城市群 O₃ 浓度季节变化情况
Table 2 Seasonal variation of ozone concentration from 2015 to 2018 in Northeast China

季节	$\rho(O_3)/(\mu g \cdot m^{-3})$				4 a 平均
	2015 年	2016 年	2017 年	2018 年	
春	96	106	105	104	103
夏	105	105	108	106	106
秋	72	67	74	64	69
冬	50	57	59	62	57

2.1.3 O₃ 浓度的月份变化

O₃ 月均浓度呈倒“V”型(图 2)。1—4 月 O₃ 月均浓度随温度的升高逐渐增加, 5—7 月为 O₃ 污染最严重的时期, 此时 O₃ 质量浓度大于 100 μg · m⁻³, 8—12 月随温度的下降而大幅下降, 完成 1 a 的周期循环。因各年雨季到来的时间和强度不同, 达到浓度峰值的月份也不相同。2015 和 2016 年呈单峰型, 分别在 6 月和 5 月达到峰值; 2017 年 5—7 月为高值期, 9 月出现小高峰; 2018 年 O₃ 污染状况总体较其他年份提前, 集中在 3—6 月。另一方面, O₃ 超标天数的月变化规律与月浓度均值有相似情况, O₃ 浓度较高的月份也是超标天数较多的月份。6 月超标天数最多, 达 740 d, 12 月—次年 2 月各城市未出现 O₃ 超标情况。可见 O₃ 超标现象主要出现在春季、夏季和秋季。

图 2 2015—2018 年 O₃ 质量浓度与超标天数的月均分布

Fig. 2 Monthly variation of ozone concentration and the number of days with ozone non-attainment from 2015 to 2018

2.2 空间格局的变化特征

2.2.1 空间格局的年际变化

2015—2018年东北地区O₃空间分布具有南高北低、污染加重的特征(图3)。O₃高值区主要分布在辽宁省和吉林省,黑龙江省O₃浓度较低。2015年辽宁省和吉林省O₃浓度较高,O₃-8h-p90平均值分别为155和139 μg·m⁻³;黑龙江省较低,O₃-8h-p90平均值为109 μg·m⁻³。2016年和2017年辽宁省和吉林省O₃高值区由环渤海经济圈进一步向北延伸至沈阳市、阜新市等。2018年,随着西部的锦

州市、葫芦岛市和铁岭市O₃浓度的下降和东部抚顺市、本溪市O₃浓度的上升,辽宁省的O₃-8h-p90平均值与2017年相同,为156 μg·m⁻³。吉林省的O₃-8h-p90平均值由2017年的134 μg·m⁻³上升到2018年的141 μg·m⁻³。黑龙江省的O₃-8h-p90平均值在2016年回落至98 μg·m⁻³,2017年和2018年又分别上升至106和120 μg·m⁻³。黑龙江省O₃浓度呈先回落、后上升的特点,这可能与气温有关。黑龙江省2016年气温较2015年下降1.07℃,后又逐年升温。辽宁省O₃浓度的变化也与气温变化一致。

图3 2015—2018年O₃空间格局的年际变化

Fig. 3 Spatial evolution of annual ozone concentration from 2015 to 2018

2.2.2 空间格局的季节变化

从季节看,春季O₃浓度高值区主要包括环渤海地区的葫芦岛市、锦州市、盘锦市、营口市和大连

市,以及以沈阳市和吉林市为中心的放射区域,低值区则主要分布在北部的大兴安岭市和鸡西市(图4)。

图4 2015—2018年O₃空间格局的季节演变

Fig. 4 Spatial evolution of seasonal ozone concentration from 2015 to 2018

夏季由于较强的太阳辐射引起东北地区整体气温上升, O_3 前体物经过光化学反应转化为 O_3 , 高污染范围向北扩张, O_3 浓度均值较春季有所上升, 成为东北地区 O_3 浓度最高、污染范围最广的季节; 温度骤降是导致东北地区秋季 O_3 浓度整体降低的主要原因, 污染仅出现在大连市和营口市; 冬季整体呈现优的评价结果, 无污染发生。

2.3 空间集聚特征

空间自相关结果(表3~4)显示, 除冬季外, O_3 浓度年度和季节的 Moran's I 均为正值, 且通过了95%的显著性检验, $Z(I)$ 大于 2.58, 表明东北地区 O_3 浓度空间分布存在显著的空间正相关, 即相似值趋于集聚分布。

进一步使用 Getis-Ord G_i^* 探测 O_3 年均浓度集聚的具体区域(图5), 结果表明, 2015—2018年东北地区 O_3 浓度冷点主要分布在黑龙江省北部和东部, 热点主要分布在辽宁省和吉林省南部, 吉林省大部 and 黑龙江省西南部空间自相关性不明显。但随着 O_3 浓度的上升, 黑龙江省境内的冷点区在收缩。可见由于辽宁省和吉林省南部城市密集, 且

气温相对较高, 已成为东北地区持续和稳定的 O_3 高污染区。

表3 2015—2018年 O_3 浓度年际空间自相关指数

Table 3 Spatial auto-correlation index of annual ozone concentration from 2015 to 2018

年份	Moran's I	$Z(I)$
2015	0.65 **	7.23
2016	0.69 **	7.68
2017	0.72 **	7.93
2018	0.68 **	7.63

** 表示通过 95% 水平的显著性检验。

表4 2015—2018年 O_3 浓度季节空间自相关指数

Table 4 Spatial auto-correlation index of seasonal ozone concentration from 2015 to 2018

季节	Moran's I	$Z(I)$
春	0.67 **	7.53
夏	0.76 **	8.40
秋	0.68 **	7.57
冬	0	0.27

** 表示通过 95% 水平的显著性检验。

图5 2015—2018年 O_3 浓度空间集聚的年际演变

Fig. 5 Annual agglomeration of ozone concentration from 2015 to 2018

不同季节由于气温的变化导致 O_3 浓度集聚有明显的季节性特点(图6)。春季和夏季 O_3 浓度集聚格局与年度集聚格局大体相同, 热点主要分布在辽宁省大部和吉林省南部, 冷点主要分布在黑龙江省北部和东部。与春、夏季相比, 秋季热点向南收缩, 冷点向东收缩。冬季东北地区 O_3 空间自相关性不明显。

2.4 空间格局的驱动因素分析

利用地理探测器对 2015 年、2016 年和 2017

年东北地区 O_3 浓度值分布的驱动因素分别进行探测, 结果表明 3 a 中各指标的影响力值相似。因此, 笔者以 2017 年为例, 对东北地区 O_3 浓度空间格局的驱动因素进行分析, 结果显示共有 9 个因子通过了显著性检验, 气象因素和社会经济因素的平均影响力值分别为 0.210 和 0.207(表5), 可见气象因素和社会经济因素共同决定东北地区 O_3 浓度的空间分布。

2.4.1 气象因素的影响

通过显著性检验的气象因子有气温、日照时数和相对湿度。其中气温的影响力最大, P 值为 0.670, 呈正向影响, 并且远高于其他 13 个因子, 说明气温是东北地区 O_3 的重要驱动因子。气温是反映太阳辐射强弱的重要指标^[13], 气温高时太阳

辐射强烈, 有利于光化学反应, 引起 O_3 浓度上升^[42]。空间格局识别出中部及南部区域 O_3 浓度高于北部以及夏季高于冬季的特点。数据分析显示中南部区域年均气温是北部的 2.2 倍, 东北地区夏季平均气温比冬季高 20.9 °C, 说明气温对 O_3 浓度有较高的空间分异区分度。

图 6 2015—2018 年 O_3 浓度空间集聚的季节演变

Fig. 6 Seasonal agglomeration of ozone concentration from 2015 to 2018

表 5 驱动因素地理探测分析

Table 5 Geographical detection analysis of ozone concentration

探测因素	探测因子	影响力值
气象因素	气温 (X_1)	0.670***
	降水量 (X_2)	-0.023
	平均风速 (X_3)	-0.036
	日照时数 (X_4)	0.151*
	相对湿度 (X_5)	-0.170*
社会经济因素	年平均人口 (X_6)	0.226**
	人均生产总值 (X_7)	0.118
	建成区面积 (X_8)	0.278**
	绿地面积 (X_9)	0.211**
	二产占比 (X_{10})	0.379***
	工业烟(粉)尘排放量 (X_{11})	0.021
	工业二氧化硫排放量 (X_{12})	0.073
	工业氮氧化物排放量 (X_{13})	0.190*
	民用汽车拥有量 (X_{14})	0.363***

***、**和* 分别表示通过 99%、95%和 90%的显著性检验。

影响力其次的为相对湿度和日照时数, P 值分别为 -0.170 和 0.151。日照时数长有利于光化学反应, 对 O_3 浓度有正向的促进作用。相对湿度对 O_3 浓度呈负向影响的原因有: 一是水汽的消光机制会影响太阳辐射, 降低 O_3 的光化学反应效率; 二是湿度高有利于 O_3 的干沉降; 三是水汽中蕴含的

自由基易与 O_3 反应消耗 O_3 ^[14,43]。

风速和降水量均呈负向影响, 但未通过显著性检验, 说明风速和降水量对东北地区 O_3 浓度的空间差异性区分度不大。以沈阳、哈尔滨和鸡西为例, 2017 年 3 个市 O_3 平均质量浓度分别为 167、133 和 90 $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 风速分别为 2.09、3.08 和 3.98 $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$, 降水量分别为 464、481 和 520 mm, 风速和降水量与 O_3 浓度在空间分布上具有负相关性。2017 年 3 个市平均温度分别为 10.9、6.7 和 0.6 °C。与温度相比, 风速和降水量的空间差异性不十分明显, 被同时期温度的影响力所抵消, 因此地理探测器探测的温度通过了 99% 的显著性水平, 而风速和降水量为不显著。

2.4.2 社会经济因素的影响

通过显著性检验的社会经济因子有 6 个, 分别为二产占比、民用汽车拥有量、建成区面积、年平均人口、绿地面积和工业氮氧化物排放量, 且均为正向影响。其中二产占比和民用汽车拥有量达到 99% 的显著性水平, P 值分别为 0.379 和 0.363, 说明两者对 O_3 浓度的空间差异性区分度较高。东北地区是我国的老工业基地, 其二产占比平均值为 35.53%, 民用汽车拥有量平均值为 44 万量, 2017 年典型城市如沈阳市、大连市和吉林市二产

占比分别为37.9%、40.5%和48.7%,民用汽车拥有量分别为209万、147万和159万辆,为东北地区二产占比和民用汽车拥有量较高的3个城市, O_3 -8h-p90平均值分别为167、163和149 $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$,与二产占比和民用汽车拥有量之间具有空间一致性,说明二产占比高、民用汽车拥有量多的城市 O_3 浓度较高。两者产生的 NO_x 、CO和VOCs等污染物是 O_3 的主要前体物,在一定条件下生成 O_3 ,导致 O_3 浓度上升,这一点也体现在工业氮氧化物排放量的影响力为0.190上。

通过95%显著性检验的因子从大到小为建成区面积>年平均人口>绿地面积。代表城市化水平的建成区面积和年平均人口对 O_3 空间分布有较大的解释力, P 值分别为0.278和0.226,城市化通过改变气象条件间接影响大气化学和大气污染^[44],如沿海地区的城镇化可能会影响区域陆-海风和环流,进而影响大气污染物的扩散^[45]。已有研究表明自然源排放的VOCs在 O_3 生成过程中起重要作用^[46],绿地面积呈显著正向影响,说明生物源排放对城市 O_3 浓度有一定影响。

反映工业信息的粉尘排放量和二氧化硫排放量未通过显著检验。二氧化硫与粉尘是 O_3 前体物,在一定情况下会与 O_3 发生复杂的相互反应^[6,47]。另外,东北地区产业结构重型化的特点依旧突出,但工业快速发展并未带来同等幅度工业污染增加^[32],并且2011年后工业二氧化硫排放量下降,而 O_3 污染加重,导致对 O_3 浓度的空间差异性区分度不高。

3 结论

(1)从时间变化来看,2015—2018年东北地区 O_3 浓度呈缓慢增加趋势, O_3 -8h-p90平均值由133上升到138 $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$,未超过二级标准限值。 O_3 浓度具有明显的季节变化特征,整体表现为春夏高、秋冬低,其中,冬季 O_3 浓度上升较明显,年均增长率达到7.4%。近4a的 O_3 月均浓度呈倒“V”型,污染主要集中在5—7月。

(2)从空间变化来看,2015—2018年 O_3 浓度的空间分布具有南高北低、污染加重的特征, O_3 浓度的高值区主要分布在辽宁省和吉林省,低值区分布在黑龙江省。夏季为东北地区 O_3 浓度最高、污染范围最广的季节,春秋次之,冬季无污染发生。

(3)从影响因素来看,共有9个因子通过了显著性检验,气象因素和社会经济因素共同决定东

北地区 O_3 浓度的空间分布,其中由太阳辐射引起的气温影响力最大, P 值为0.670,远高于其他因子;气象因素中的相对湿度和日照时数以及经济因素中的二产占比、民用汽车拥有量、建成区面积、年平均人口、绿地面积和工业氮氧化物排放量对 O_3 浓度的空间分布有显著性影响。

参考文献:

- [1] ZHANG Y Q, COOPER O R, GAUDEL A, *et al.* Tropospheric Ozone Change From 1980 to 2010 Dominated by Equatorward Redistribution of Emissions [J]. *Nature Geoscience*, 2016, 9 (12): 875-879.
- [2] LEHMAN J, SWINTON K, BORTNICK S, *et al.* Spatio-Temporal Characterization of Tropospheric Ozone Across the Eastern United States [J]. *Atmospheric Environment*, 2004, 38 (26): 4357-4369.
- [3] 廖志恒, 范绍佳. 2006—2012年珠江三角洲地区 O_3 污染对人群健康的影响 [J]. *中国环境科学*, 2015, 35 (3): 897-905. [LIAO Zhi-heng, FAN Shao-jia. Human Health Impact of Exposure to Ozone Pollutant in Pearl River Delta Region During 2006-2012 [J]. *China Environmental Science*, 2015, 35 (3): 897-905.]
- [4] 刘玉莲, 周贺玲, 裴宇航, 等. 哈尔滨近地面 O_3 浓度特征 [J]. *环境科学学报*, 2018, 38 (11): 4454-4463. [LIU Yu-lian, ZHOU He-ling, PEI Yu-hang, *et al.* Characteristics of Near Surface O_3 Concentration in Harbin [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2018, 38 (11): 4454-4463.]
- [5] BELL M L. Ozone and Short-Term Mortality in 95 US Urban Communities, 1987-2000 [J]. *JAMA*, 2004, 292 (19): 2372.
- [6] JIA M W, ZHAO T L, CHENG X H, *et al.* Inverse Relations of $\text{PM}_{2.5}$ and O_3 in Air Compound Pollution Between Cold and Hot Seasons Over an Urban Area of East China [J]. *Atmosphere*, 2017, 8 (12): 59.
- [7] CHAN C K, YAO X H. Air Pollution in Mega Cities in China [J]. *Atmospheric Environment*, 2008, 42 (1): 1-42.
- [8] 黄小刚, 赵景波, 曹军骥, 等. 中国城 O_3 浓度时空变化特征及驱动因素 [J]. *环境科学*, 2019, 40 (3): 1120-1131. [HUANG Xiaogang, ZHAO Jing-bo, CAO Jun-ji, *et al.* Spatial-Temporal Variation of Ozone Concentration and Its Driving Factors in China [J]. *Environmental Science*, 2019, 40 (3): 1120-1131.]
- [9] 吴锴, 康平, 于雷, 等. 2015—2016年中国城市臭氧浓度时空变化规律研究 [J]. *环境科学学报*, 2018, 38 (6): 2179-2190. [WU Kai, KANG Ping, YU Lei, *et al.* Pollution Status and Spatio-Temporal Variations of Ozone in China During 2015; 2016 [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2018, 38 (6): 2179-2190.]
- [10] 周学思, 廖志恒, 王萌, 等. 2013—2016年珠海地区臭氧浓度特征及其与气象因素的关系 [J]. *环境科学学报*, 2019, 39 (1): 143-153. [ZHOU X S, LIAO Z H, WANG M, *et al.* Characteristics of Ozone Concentration and Its Relationship With Meteorological Factors in Zhuhai During 2013-2016 [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2019, 39 (1): 143-153.]
- [11] 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.[ZHAO Xu-hui,DONG Hao,JI Mian, *et al.* Analysis on the Spatial-Temporal Distribution Characteristics of O₃ and Its Influencing Factors in Hefei City[J].Acta Scientiae Circumstantiae,2018,38(2):649-660.]
- [12] 刘芷君,谢小训,谢旻,等.长江三角洲地区臭氧污染时空分布特征[J].生态与农村环境学报,2016,32(3):445-450.[LIU Zhi-jun,XIE Xiao-xun,XIE Min, *et al.* Spatio-Temporal Distribution of Ozone Pollution Over Yangtze River Delta Region[J].Journal of Ecology and Rural Environment,2016,32(3):445-450.]
- [13] 王玫,郑有飞,柳艳菊,等.京津冀臭氧变化特征及与气象要素的关系[J].中国环境科学,2019,39(7):2689-2698.[WANG Mei,ZHENG You-fei,LIU Yan-ju, *et al.* Characteristics of Ozone and Its Relationship With Meteorological Factors in Beijing-Tian-jin-Hebei Region[J].China Environmental Science,2019,39(7):2689-2698.]
- [14] 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.[CAO Ting-wei,WU Kai,KANG Ping, *et al.* Study on Ozone Pollution Characteristics and Meteorological Cause of Chengdu-Chongqing Urban Agglomeration[J].Acta Scientiae Circumstantiae,2018,38(4):1275-1284.]
- [15] 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.[YI Rui,WANG Ya-lin,ZHANG Yin-jun, *et al.* Pollution Characteristics and Influence Factors of Ozone in Yangtze River Delta[J].Acta Scientiae Circumstantiae,2015,35(8):2370-2377.]
- [16] 廖志恒,孙家仁,范绍佳,等.2006—2012年珠三角地区空气污染变化特征及影响因素[J].中国环境科学,2015,35(2):329-336.[LIAO Zhi-heng,SUN Jia-ren,FAN Shao-jia, *et al.* Variation Characteristics and Influencing Factors of Air Pollution in Pearl River Delta Area From 2006 to 2012[J].China Environmental Science,2015,35(2):329-336.]
- [17] 沈劲,黄晓波,汪宇,等.广东省臭氧污染特征及其来源解析研究[J].环境科学学报,2017,37(12):4449-4457.[SHEN Jin,HUANG Xiao-bo,WANG Yu, *et al.* Study on Ozone Pollution Characteristics and Source Apportionment in Guangdong Province[J].Acta Scientiae Circumstantiae,2017,37(12):4449-4457.]
- [18] 刘闯,王闯,侯乐,等.沈阳臭氧污染时空分布特征及变化趋势[J].中国环境监测,2017,33(4):126-131.[LIU Min,WANG Chuang,HOU Le, *et al.* Spatial-Temporal Patterns and Variation Trend of Ozone Pollution in Shenyang[J].Environmental Monitoring in China,2017,33(4):126-131.]
- [19] 包艳英,徐洁,张明明,等.大连市臭氧污染特征及典型污染日成因[J].中国环境监测,2017,33(4):167-178.[BAO Yan-ying,XU Jie,ZHANG Ming-ming, *et al.* The Characteristics of Ozone Pollution and Causes of a Typical Ozone Pollution Episode in Dalian[J].Environmental Monitoring in China,2017,33(4):167-178.]
- [20] 吴锴,康平,王占山,等.成都市臭氧污染特征及气象成因研究[J].环境科学学报,2017,37(11):4241-4252.[WU Kai,KANG Ping,WANG Zhan-shan, *et al.* Ozone Temporal Variation and Its Meteorological Factors Over Chengdu City[J].Acta Scientiae Circumstantiae,2017,37(11):4241-4252.]
- [21] İM U, TAYANÇ M T, YENİĞÜN O. Analysis of Major Photochemical Pollutants With Meteorological Factors for High Ozone Days in Istanbul, Turkey[J].Water, Air, and Soil Pollution,2006,175(1/2/3/4):335-359.
- [22] LIU P F, SONG H Q, WANG T H, *et al.* Effects of Meteorological Conditions and Anthropogenic Precursors on Ground-Level Ozone Concentrations in Chinese Cities[J].Environmental Pollution,2020,262:114366.
- [23] 陈雪萍,咸龙,巨天珍,等.基于OMI的宁夏臭氧时空分布特征及影响因素研究[J].生态与农村环境学报,2019,35(2):167-173.[CHEN Xue-ping,XIAN Long,JU Tian-zhen, *et al.* Study of Spatial and Temporal Distribution of Ozone and Its Influencing Factors in Ningxia Based on OMI[J].Journal of Ecology and Rural Environment,2019,35(2):167-173.]
- [24] WANG Z B, LI J X, LIANG L W. Spatio-Temporal Evolution of Ozone Pollution and Its Influencing Factors in the Beijing-Tianjin-Hebei Urban Agglomeration[J].Environmental Pollution,2020,256:113419.
- [25] WANG T, XUE L K, BRIMBLECOMBE P, *et al.* Ozone Pollution in China: A Review of Concentrations, Meteorological Influences, Chemical Precursors, and Effects[J].Science of the Total Environment,2017,575:1582-1596.
- [26] 陆倩,王国辉,冯一淳,等.气象条件对承德市臭氧重污染天气的影响[J].生态与农村环境学报,2019,35(8):992-999.[LU Qian,WANG Guo-hui,FENG Yi-chun, *et al.* The Influence of Meteorological Conditions on a Heavy Ozone Pollution Process in Chengde City[J].Journal of Ecology and Rural Environment,2019,35(8):992-999.]
- [27] CHEN Z Y, LI R Y, CHEN D L, *et al.* Understanding the Causal Influence of Major Meteorological Factors on Ground Ozone Concentrations Across China[J].Journal of Cleaner Production,2020,242:118498.
- [28] 黄小刚,邵天杰,赵景波,等.气象因素和前体物对中国东部O₃浓度分布的影响[J].中国环境科学,2019,39(6):2273-2282.[HUANG Xiao-gang,SHAO Tian-jie,ZHAO Jing-bo, *et al.* Impact of Meteorological Factors and Precursors on Spatial Distribution of Ozone Concentration in Eastern China[J].China Environmental Science,2019,39(6):2273-2282.]
- [29] 雷瑜,张小玲,唐宜西,等.北京城区PM_{2.5}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.[LEI Yu,ZHANG Xiao-ling,TANG Yi-xi, *et al.* Holiday Effects on PM_{2.5} and Other Major Pollutants in Beijing[J].Acta Scientiae Circumstantiae,2015,35(5):1520-1528.]
- [30] 黄小刚,邵天杰,赵景波,等.长三角城市群臭氧浓度的时空分异及驱动因素[J].长江流域资源与环境,2019,28(6):1434-1445.[HUANG Xiao-gang,SHAO Tian-jie,ZHAO Jing-bo, *et al.* Spatio-Temporal Differentiation of Ozone Concentration and Its Driving Factors in Yangtze River Delta Urban Agglomeration[J].Resources and Environment in the Yangtze Basin,2019,28(6):1434-1445.]
- [31] 屈玉,安俊岭.人为源和生物源排放对臭氧的贡献:以春夏季

- 东亚地区为例[J].中国环境科学,2009,29(4):337-344.[QU Yu,AN Jun-ling.Total and Synergistic Impacts of Anthropogenic and Biogenic Emissions on Ozone-Examples in East Asia in Spring and Summer[J].China Environmental Science,2009,29(4):337-344.]
- [32] 任嘉敏,马延吉.东北地区工业污染时空格局演变研究[J].环境科学学报,2018,38(5):2108-2118.[REN Jia-min,MA Yan-ji.Studies on the Spatiotemporal Dynamics of Industrial Pollution in Northeast China[J].Acta Scientiae Circumstantiae,2018,38(5):2108-2118.]
- [33] JASAITIS D, VASILIAUSKIENÉ V, CHADYŠIENĖ R, *et al.* Surface Ozone Concentration and Its Relationship With UV Radiation, Meteorological Parameters and Radon on the Eastern Coast of the Baltic Sea[J].Atmosphere,2016,7(2):27.
- [34] 严仁嫦,叶辉,林旭,等.杭州市臭氧污染特征及影响因素分析[J].环境科学学报,2018,38(3):1128-1136.[YAN Ren-chang, YE Hui, LIN Xu, *et al.* Characteristics and Influence Factors of Ozone Pollution in Hangzhou [J]. Acta Scientiae Circumstantiae,2018,38(3):1128-1136.]
- [35] BRUS D J, HEUVELINK G B M. Optimization of Sample Patterns for Universal Kriging of Environmental Variables [J]. Geoderma, 2007, 138(1/2):86-95.
- [36] GOODCHILD M, HAINING R, WISE S. Integrating GIS and Spatial Data Analysis: Problems and Possibilities [J]. International Journal of Geographical Information Systems, 1992, 6(5):407-423.
- [37] GETIS A, ORD J K. The Analysis of Spatial Association by Use of Distance Statistics [J]. Geographical Analysis, 2010, 24(3):189-206.
- [38] 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.[WANG Jin-feng,XU Cheng-dong.Geodetector: Principle and Prospective[J].Acta Geographica Sinica,2017,72(1):116-134.]
- [39] WANG H, GAO J B, HOU W J. Quantitative Attribution Analysis of Soil Erosion in Different Geomorphological Types in Karst Areas: Based on the Geodetector Method [J]. Journal of Geographical Sciences, 2019, 29(2):271-286.
- [40] ZHOU C S, CHEN J, WANG S J. Examining the Effects of Socio-economic Development on Fine Particulate Matter (PM_{2.5}) in China's Cities Using Spatial Regression and the Geographical Detector Technique [J]. Science of the Total Environment, 2018, 619:436-445.
- [41] BAI L, JIANG L, YANG D Y, *et al.* Quantifying the Spatial Heterogeneity Influences of Natural and Socioeconomic Factors and Their Interactions on Air Pollution Using the Geographical Detector Method: A Case Study of the Yangtze River Economic Belt, China [J]. Journal of Cleaner Production, 2019, 232:692-704.
- [42] 陈漾,张金谱,黄祖照.广州市近地面臭氧时空变化及其与气象因子的关系[J].中国环境监测,2017,33(4):99-109.[CHEN Yang,ZHANG Jin-pu,HUANG Zu-zhao.Spatial-Temporal Variation of Surface Ozone in Guangzhou and Its Relations With Meteorological Factors [J]. Environmental Monitoring in China, 2017, 33(4):99-109.]
- [43] FINLAYSON B J, PITTS J N. Photochemistry of the Polluted Troposphere [J]. Science, 1976, 192(4235):111-119.
- [44] 罗鑫玥,陈明星.城镇化对气候变化影响的研究进展[J].地球科学进展,2019,34(9):984-997.[LUO Xin-yue, CHEN Ming-xing. Research Progress on the Impact of Urbanization on Climate Change [J]. Advances in Earth Science, 2019, 34(9):984-997.]
- [45] SHEN L X, ZHAO C F, MA Z S, *et al.* Observed Decrease of Summer Sea-Land Breeze in Shanghai From 1994 to 2014 and Its Association With Urbanization [J]. Atmospheric Research, 2019, 227:198-209.
- [46] TAO Z N. A Summer Simulation of Biogenic Contributions to Ground-Level Ozone Over the Continental United States [J]. Journal of Geophysical Research Atmospheres, 2003, 108(D14):4404.
- [47] 陈志青,邵天杰,赵景波.近3 a 内 蒙 古 地 区 臭 氧 浓 度 时 空 变 化 及 其 影 响 因 素 [J]. 干 旱 区 研 究, 2019, 36(4):990-996.[CHEN Zhi-qing, SHAO Tian-jie, ZHAO Jing-bo. Spatiotemporal Variation of Ozone Concentration and Its Influential Factors in Inner Mongolia in Recent 3 Years [J]. Arid Zone Research, 2019, 36(4):990-996.]

作者简介: 卫佩茹(1995—),女,陕西华阴人,硕士生,研究方向为区域环境研究。E-mail: 18392519008@163.com

(责任编辑:陈昕)