网络首发时间：2020-07-16 16:51:15
网络首发地址：https://kns.cnki.net/kcms/detail/11.1843.X.20200716.0907.002.html

第 40 卷第 10 期
2020 年 10 月

环 境 科 学 学 报
Acta Scientiae Circumstantiae

Vol.40,No.10
Oct., 2020

DOI: 10.13671/j.hjkxxb.2020.0222

陈志青, 邵天杰,赵景波, 等.2020.东北地区臭氧浓度空间格局演变规律及影响因素[J].环境科学学报,40(10)

Chen Z Q, Shao T J, Zhao J B, *et al*. 2020.Evolution and influencing factors of ozone concentration spatial distribution in Northeastern region[J].Acta Scientiae Circumstantiae,40(10)

东北地区臭氧浓度空间格局演变规律及影响因素

陈志青[1], 邵天杰[1,*],赵景波[1,2],曹军骥[2],岳大鹏[1]

1. 陕西师范大学地理科学与旅游学院, 西安 710119
2. 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, 西安 710061

摘要:采用重心模型、空间自相关分析、地理探测器,研究了 2016 年东北地区 O_3浓度的空间分布格局及演变规律,揭示了气象因素和前体物对东北地区 O_3浓度空间分布格局及演变的影响.结果表明:东北地区 O_3-8 h-P90 分布整体呈南高北低的态势,O_3浓度的高值区及超标天数比例较高的地区都集中分布在环渤海地区的沿海城市;气温是影响 O_3年均浓度空间格局演变的主导因素,随着气温的变化,O_3年均浓度空间分布格局呈现空间分异不明显-南高北低-空间分异不明显的演变特征;前体物是核心城市形成局部 O_3污染的主要原因,其影响力的大小受温度的影响,温度越高,光化学反应越强,前体物的正向影响力越大,温度越低,光化学反应越弱,化学性质活跃的前体物对 O_3可能起消耗作用.

关键词:臭氧浓度;空间格局演变;前体物;气象要素;地理探测器;东北地区

中图分类号:X511　　**文献标识码**:A

Evolution and influencing factors of ozone concentration spatial distribution in Northeastern region

CHEN Zhiqing[1], SHAO Tianjie[1,*], ZHAO Jingbo[1,2], CAO Junji[2], YUE Dapeng[1]

1. School of Geography and Tourism, Shaanxi Normal University, Xi'an 710119
2. Key Laboratory of Aerosol Chemistry and Physics, Institute of Earth Environment, Chinese Academy of Sciences, Xi'an 710061

Abstract: Based on the methods of gravity center model, spatial autocorrelation analysis and geographical detector, this paper studied the evolution and spatial distribution of ozone concentration in Northeastern region of China in 2016, revealed the impact of meteorological factors and precursors on the spatial distribution and evolution of ozone concentration. The results showed that: the O_3-8 h-P90 of southern part was higher than that of northern part in the Northeastern region in general, the areas of high O_3 concentration and high proportion of over-standard days were concentrated in coastal cities around the Bohai Rim region. The evolution of the spatial pattern of O_3 annual average concentration was mainly affected by temperature, with the change of temperature, the evolutionary of O_3 concentration spatial pattern went through a not obvious spatial differentiation-higher in the south and lower in the north-not obvious spatial differentiation in 2016. The local O_3 pollution in core cities generated mainly because of precursors, its influence was affected by the temperature, a stronger photoreaction, as a result of rising temperature, positively magnified the impact of precursors, while the decreasing temperature weakened photoreaction, which, as a result, may promote ozone consumption.

Keywords: ozone concentration; spatial distribution and evolution; precursors; metrological factors; geographical detector; Northeastern region

1　引言(Introduction)

近年来,在 $PM_{2.5}$、SO_2、NO_2等大气污染物浓度逐年下降的背景下,O_3浓度不降反升(Yin *et al.*, 2019),并已成为我国仅次于 $PM_{2.5}$的重要大气污染物(Wang *et al.*,2016;黄小刚等,2019a),目前 O_3污染治理面临严峻挑战.科学认识 O_3浓度的变化规律及其影响因素,对 O_3污染的科学防控具有重要意义.国内外学者从不同时空尺度对 O_3浓度的变化规律及其影响因素进行了广泛研究.小尺度的一般以单个重点污染城市为研究单元,研究 O_3浓度的昼夜变化规律、季节变化规律和年际变化特征,并通过统计学方法分析气象因素对 O_3浓度变化的影响(Botlaguduru *et al.*,2018;Chen *et al.*,2019;黄小刚

收稿日期:2020-03-23　　**修回日期**:2020-06-13　　**录用日期**:2020-06-13

基金项目:中国科学院气溶胶化学与物理重点实验室项目(No.KLACP-2018-01);国家自然科学基金(No.41671213);中央高校基本科研业务费专项项目(No.GK201803055)

作者简介:陈志青(1983—),女,E-mail:zhiqing0616@163.com;　*责任作者,E-mail:tjshao2010@126.com

等,2020),或通过模式模拟的方法确定 O_3 对前体物的生成敏感性(Li *et al.*, 2011; Kang *et al.*, 2013; Wei *et al.*, 2015;贾海鹰等,2017).中、大尺度的一般以省域、城市群或全国为研究单元,研究 O_3 浓度的时间变化特征,或采用空间自相关分析、热点分析等方法研究 O_3 浓度的空间演化规律,并利用相关分析(刘建等,2017)、多元非线性回归分析(赵旭辉等,2018)、灰色关联模型(南国卫等,2017)、广义相加模型(GAM)(胡成媛等,2019)、神经网络模型(沈路路等,2011)、地理探测器(黄小刚等,2019b; Liu *et al.*, 2020)等方法研究 O_3 浓度空间分布的影响因素.

尽管现有研究取得了较为丰硕的成果,但仍存在以下不足:①研究区域主要集中在京津冀、长三角、珠三角等经济发达地区,对东北地区的研究相对较少,且主要集中在沈阳(刘闵等,2017)、哈尔滨(刘玉莲等,2018)等大城市.东北地区中北部是我国主要的 O_3 浓度低值区之一(黄小刚等,2019a),在我国 O_3 浓度逐年上升的背景下,研究其时空演变规律及其低值的成因对深入认识 O_3 污染的形成和分布具有重要意义.②由于社会经济统计资料来源的限制,O_3 浓度分布影响因素方面的研究主要以年均值为主,对 O_3 浓度分布的月度变化规律及其影响因素的研究相对较少.本文基于 2016 年 O_3 实时监测数据、气象数据和前体物排放清单,利用克里金插值、重心模型、空间自相关分析等方法,研究东北地区 O_3 浓度空间分布的月度演变规律,并利用地理探测器揭示其影响因素,以期为 O_3 污染防控提供科学依据.

2 材料与方法(Materials and methods)

2.1 数据来源

O_3 日评价指标使用 O_3 日最大 8 h 滑动平均浓度(以下简称 O_3-8 h),数据来源于 2016 年东北地区 41 个城市的国控监测站点,原始数据从全国城市空气质量实时发布平台(http://106.37.208.233:20035/)获取.数据有效性严格按照《环境空气质量标准(GB 3095-2012)》(中国环境科学研究院,2012)执行,计算月均值时,每月至少有 27 个有效的 O_3-8 h 浓度值(2 月至少有 25 个).O_3 年评价指标为 O_3 日最大 8 h 滑动平均浓度第 90 百分位数(以下简称 O_3-8 h-P90).评价标准按《环境空气质量指数(AQI)技术规定(试行)(HJ 633-2012)》(环境保护部科技标准司,2013)执行,O_3 空气质量划分为 6 个等级:优(0~100 $\mu g \cdot m^{-3}$)、良(101~160 $\mu g \cdot m^{-3}$)、轻度污染(161~215 $\mu g \cdot m^{-3}$)、中度污染(216~265 $\mu g \cdot m^{-3}$)、重度污染(266~800 $\mu g \cdot m^{-3}$)和严重污染(>800 $\mu g \cdot m^{-3}$),其中,轻度污染及以上为超标.

近地面 O_3 浓度是局地光化学反应(生成和去除)和区域传输(输入和输出)共同作用的结果(Su *et al.*, 2018),其中,前体物是光化学反应的物质基础,太阳辐射是光化学反应的必要条件,降水、风和相对湿度等则对 O_3 的清除、传输和沉降有重要影响.因此,O_3 浓度影响因素主要从前体物排放量和气象因素两方面选取.前体物排放量来源于中国多尺度排放清单模型(MEIC),MEIC 是一套基于云计算平台开发的中国大气污染物和温室气体人为源排放清单模型,集成了最新的动态排放清单方法,拥有本地化的排放因子数据库,可为科学研究和空气质量管理工作提供高分辨率的动态排放清单数据(Li *et al.*, 2017),在大气污染物的时空排放特征及空气质量的模拟研究方面已得到较好的应用(Geng *et al.*, 2015; Li *et al.*, 2017).从 2008 年开始,MEIC 每 2 年公布一次大气污染物网格化排放清单,最新公布的年份为 2016 年,因此,本文选定的评价年份为 2016 年,评价指标选取 VOCs、NO_x 和 CO 等 3 种主要 O_3 前体物(图 1).气象数据来源于中国气象数据网(http://data.cma.cn/site)发布的中国地面气候资料日值数据集(V3.0),数据及原始数据文件已经过严格的质量控制和审核.由于太阳辐射数据较难获取,研究表明太阳辐射与气温有显著的正相关关系(段晓瞳等,2017),因此,本文使用气温来表征太阳辐射的影响,最终评价的气象指标包括气温、相对湿度、日照时数、降水量和风速等 5 项.由于部分气象站与空气质量监测站点相距较远,为提高分析精度,先使用 Anusplin 4.2 以 DEM 为协变量将气象指标插值成栅格,再利用 ArcGIS 10.2 提取各监测站点的气象指标(图 1).

2.2 研究方法

2.2.1 重心模型 为深入分析 O_3 浓度空间分布格局与变化特征,引入物理学中的重心概念,建立重心模型,通过重心的变动轨迹、迁移方向和迁移速率来揭示 O_3 浓度在空间上的动态演变过程及规律.定义 O_3 浓度重心的 X、Y 坐标见式(1)~(2)(周亮等,2017).

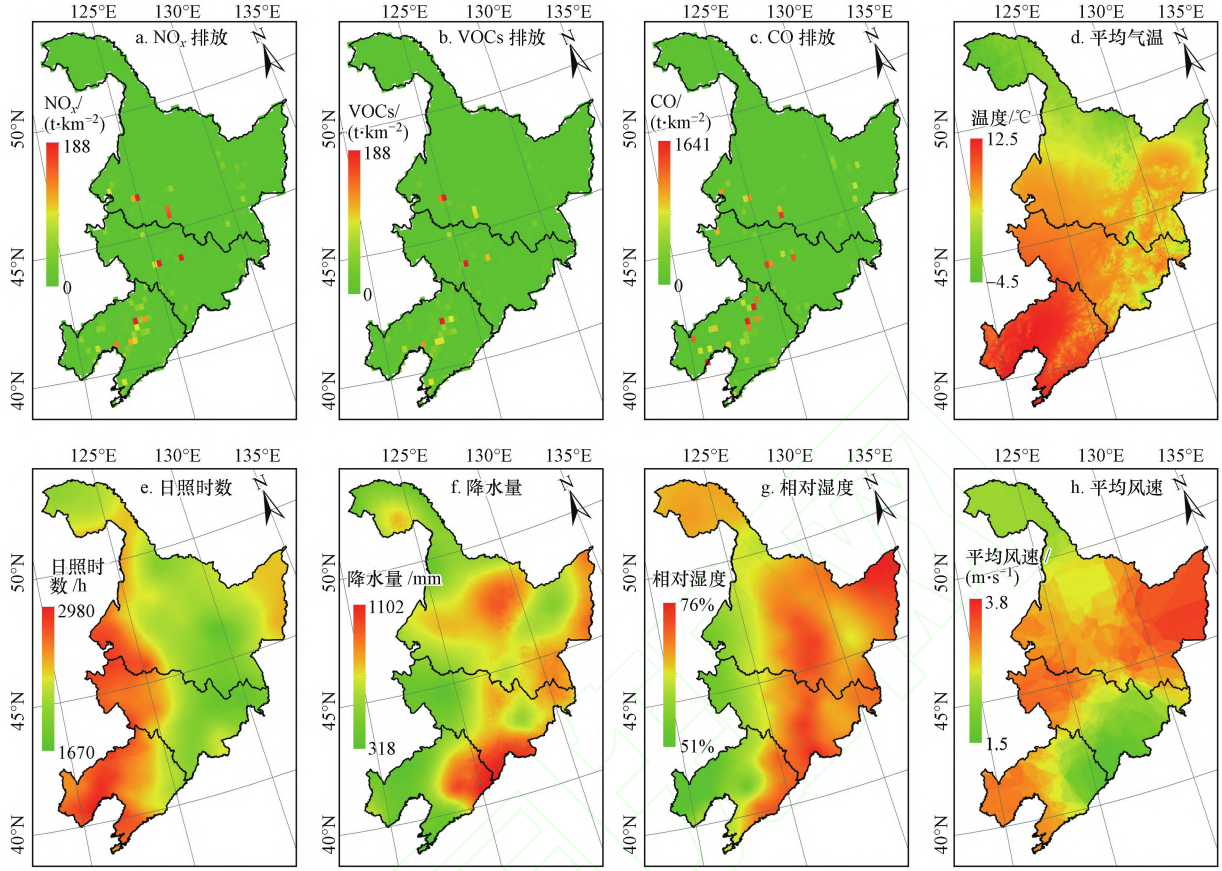

图 1　2016 年东北地区主要 O_3 前体物和气象因素空间分布

Fig.1　Spatial distribution of major O_3 precursors and meteorological factors in Northeast China in 2016

$$\bar{X}=\frac{\sum_{i=1}^{n}W_iX_i}{\sum_{i=1}^{n}W_i} \tag{1}$$

$$\bar{Y}=\frac{\sum_{i=1}^{n}W_iY_i}{\sum_{i=1}^{n}W_i} \tag{2}$$

式中，$\bar{X}$、$\bar{Y}$ 为 O_3 浓度重心的地理坐标；n 为城市数量；X_i、Y_i 为城市 i 中心点的地理坐标；W_i 为城市 i 的 O_3 浓度值.

2.2.2　空间自相关分析　空间自相关是指地理事物或属性具有对空间位置的依赖关系，并且空间位置上越靠近相关性就越强.本文采用全局 Moran′s I 来测度东北地区 O_3 浓度的空间自相关性.若 I>0，表示 O_3 浓度空间分布呈正相关，且值越大表示相似的值(高值或低值)越趋于空间集聚；若 I<0，表示 O_3 浓度空间分布呈负相关，且值越小表示相似的值趋于分散分布；若 I=0，表示 O_3 浓度空间分布呈独立、随机状态，没有相关性.I 值具体计算方法见式(3)(程红霞等，2014).

$$I=\frac{n\sum_{i=1}^{n}\sum_{j=1}^{n}\omega_{ij}(x_i-\bar{X})(x_j-\bar{X})}{\sum_{i=1}^{n}\sum_{j=1}^{n}\omega_{ij}\sum_{i=1}^{n}(x_i-\bar{X})^2} \tag{3}$$

式中，x_i、x_j 分别为研究区域内城市 i、j 的 O_3 浓度值；ω_{ij} 为空间权重矩阵；n 为研究区域内的城市个数；$\bar{x}$ 为研究区域 O_3 浓度平均值.

采用 Z 检验对全局 Moran′s I 进行显著性检验，计算方法见式(4).

$$Z(I)=\frac{I-E(I)}{\sqrt{\mathrm{VAR}(I)}} \tag{4}$$

式中，$E(I)$ 为全局 Moran′s I 的数学期望；VAR(I) 为全局 Moran′s I 的变异系数.

2.2.3　冷热点分析　全局空间自相关分析可以反映整个研究区域的集聚或者离散态势，但不能反映局部区域的具体情况.本文通过计算 Getis-Ord 指数的 G_i^* 值对 O_3 浓度在局部地区的集聚或离散效应进行分析，并探测热点区和冷点区的具体位置，计算方法见式(5)(李芳林等，2018).

$$G_i^*(d)=\frac{\sum_{j=1}^{n}\omega_{ij}x_j-\bar{X}\sum_{j=1}^{n}\omega_{ij}}{S\sqrt{\dfrac{\left[n\sum_{j=1}^{n}\omega_{ij}^{2}-\left(\sum_{j=1}^{n}\omega_{ij}\right)^{2}\right]}{n-1}}} \quad (5)$$

式中,x_j为城市 j 的 O_3浓度值;ω_{ij}为空间权重矩阵;S 为标准差;$\bar{x}$ 为 O_3浓度平均值;n 为城市个数.G_i^* 计算结果即为 Z 值,结果为正且显著,则为高值集聚区(热点),结果为负且显著,则为低值集聚区(冷点),且 G_i^* 绝对值越大表明高值或低值的聚集越紧密.

2.2.4 地理探测器 地理探测器是用来探测事物空间分异性并揭示其背后驱动力的一组统计学方法.由于该模型可以克服传统统计方法处理变量的局限性,被广泛应用于探测地理要素空间格局成因和机理的研究.模型中的因子探测可以识别影响因子,是研究复杂地理因素驱动作用机理的有效工具,其通过比较某一环境因素和地理事物的变化在空间上是否有显著的一致性,来判断环境因素对地理事物的重要作用和意义(王劲峰等,2017).本文使用该模型中的因子探测器来检测气象因素和前体物对 O_3浓度空间分异的驱动力及其大小,计算方法见式(6)(黄小刚等,2019a).

$$P_{D,H}=1-\frac{1}{N\sigma_H^2}\sum_{i=1}^{m}N_{D,i}\sigma_{H_{D,i}}^2 \quad (6)$$

式中,$P_{D,H}$为评价因子 D 对 O_3浓度分布变化的解释力;H 为因子 D 的次级分区;N 为研究区总样本数;σ_H^2 为研究区 O_3浓度的方差;$N_{D,i}$为次级分区的样本数量;m 为次一级分区的数量.$P_{D,H}$的取值范围为[0,1],值越大,表示影响因子 D 对 O_3浓度变化的影响越大,能更大程度地解释 O_3浓度的空间分异特征.

因地理探测器不能识别探测因子的影响方向,本文采用相关分析为数值型因子确定影响方向,探测因子与 O_3浓度呈正相关关系则确定为正向影响,呈负相关关系则为负向影响.

3 结果(Results)

3.1 O_3年均浓度分布特征

2016 年东北地区 O_3-8 h-P90 平均值为 131 μg·m^{-3},超标天数比例为 5.1%,低于全国 O_3-8 h-P90 平均值(138 μg·m^{-3})和超标天数比例(5.2%).利用克里金插值法对东北地区 O_3-8 h-P90 浓度进行插值(图 2),结果表明,东北地区 O_3-8 h-P90 分布整体呈南高北低的态势.辽宁省 O_3-8 h-P90 最高,平

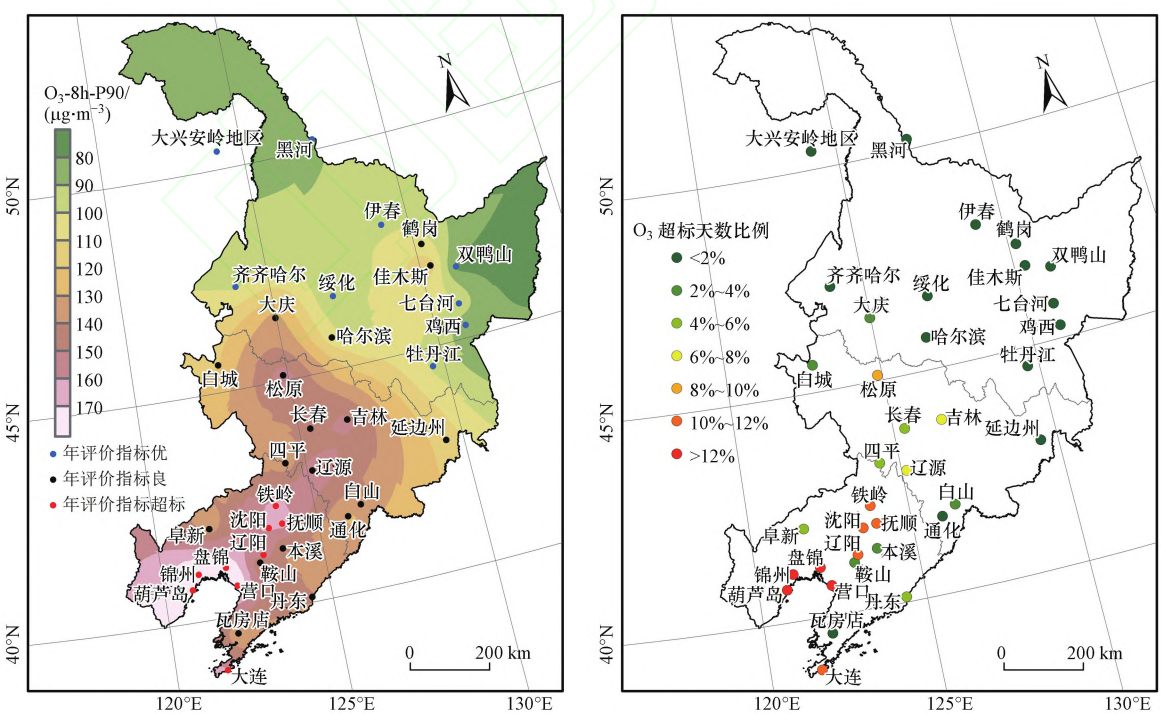

图 2 2016 年东北地区空气质量监测站及 O_3年均浓度分布

Fig.2 Spatial distribution of air quality monitoring sites and ozone annual concentration in Northeastern region in 2016

均值为 158 μg·m^{-3},超标天数比例为 9.5%.按 O_3-8 h-P90>160 μg·m^{-3}为年评价指标超标计,2016 年东北地区共有 9 个城市年评价指标超标,均位于辽宁省,其中,环渤海地区的大连、葫芦岛、锦州、盘锦和营口等沿海城市 O_3 浓度最高.吉林省其次,O_3-8 h-P90 平均值为 137 μg·m^{-3},超标天数比例为 4.6%.黑龙江省最低,O_3-8 h-P90 平均值为 98 μg·m^{-3},超标天数比例为 0.7%,O_3超标较少发生.

3.2　O_3月均浓度时空变化特征

东北地区 O_3 月均浓度变化曲线呈倒 V 型(图 3),1—5 月 O_3浓度逐渐升高,并在 5 月达到最大值(125 μg·m^{-3}),6—12 月 O_3浓度逐渐下降,12 月达到最小值(47 μg·m^{-3}).5 月 O_3月均浓度是 12 月的 2.7 倍,O_3浓度的时间分异非常明显.辽宁、吉林和黑龙江的 O_3月均浓度变化曲线与东北地区基本一致,但整体上呈辽宁>吉林>黑龙江,且省际差异呈现规律变化过程.

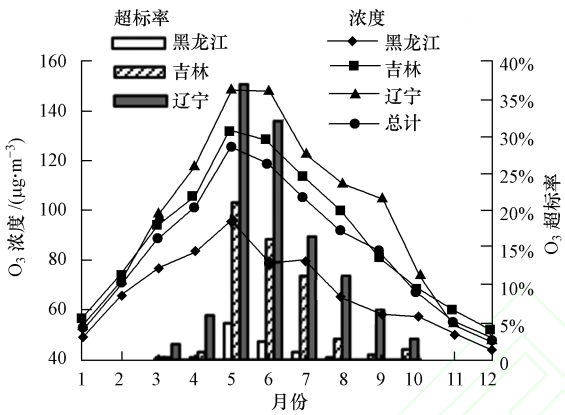

图 3　2016 年东北地区 O_3月均浓度及超标率变化特征

Fig.3　Characteristics of monthly average concentration and over-standard rate of O_3 in Northeast China in 2016

进一步利用克里金插值法对东北地区 O_3月均浓度分别进行插值(图 4),结果表明,1 年内东北地区 O_3浓度空间分布格局经历了由空间分异不明显到南高北低再到空间分异不明显的演变过程.

1—2 月 O_3浓度相对较低,空间分异也不明显.1 月东北地区 O_3浓度为 34~74 μg·m^{-3},平均浓度为 53 μg·m^{-3};2 月东北地区 O_3浓度为 48~94 μg·m^{-3},平均浓度为 69 μg·m^{-3}.O_3空气质量均为优,各城市均无 O_3超标现象发生.其中,黑龙江、吉林、辽宁 1 月 O_3的平均浓度分别为 49、56 和 54 μg·m^{-3},2 月的平均浓度分别为 66、72 和 72 μg·m^{-3},各省 O_3浓度的差异较小.

3—6 月 O_3浓度南高北低的格局逐步形成和加强,其中,6 月达到最强.3—5 月,东北地区 O_3浓度快速上升,但南部的上升速度较北部快,O_3浓度南高北低的格局逐步形成和加强.东北地区 O_3月均浓度由 3 月的 89 μg·m^{-3}上升到 125 μg·m^{-3},其中,黑龙江由3月的77 μg·m^{-3}上升到96 μg·m^{-3},吉林由

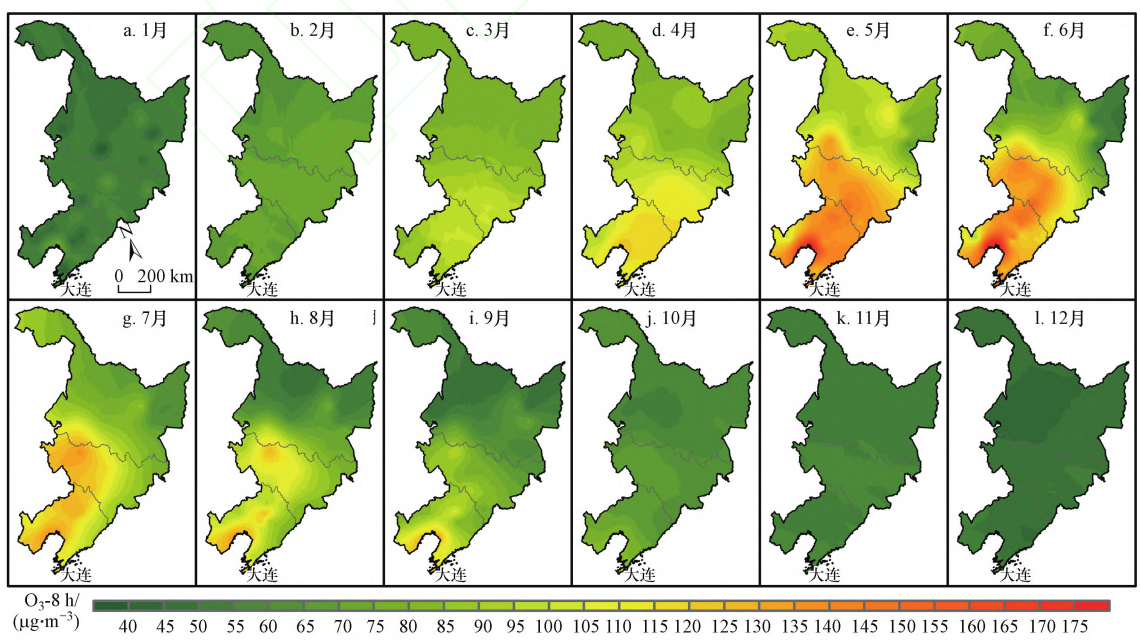

图 4　2016 年东北地区 O_3浓度空间格局演变特征

Fig.4　Evolution of ozone concentration spatial distribution in Northeastern region in 2016

93 μg·m^{-3}上升到 132 μg·m^{-3},辽宁由 97 μg·m^{-3}上升到149 μg·m^{-3},辽宁与黑龙江的O_3浓度差值由 21 μg·m^{-3}上升到 53 μg·m^{-3}.6 月 O_3浓度整体开始下降,但北部的下降速度较南部快,O_3浓度南高北低的格局达到最强.黑龙江 O_3浓度下降的速度最快,降到 79 μg·m^{-3},较 5 月下降了 17 μg·m^{-3},吉林、辽宁分别下降了 5 μg·m^{-3}和 1 μg·m^{-3},黑龙江与辽宁的 O_3浓度相差 68 μg·m^{-3},O_3浓度南高北低的格局最明显.

7—10 月 O_3浓度南高北低的格局逐渐减弱.随着气温的降低,O_3浓度快速下降,但南部下降的速度比北部快,O_3浓度南高北低的格局逐渐减弱.东北地区 O_3月均浓度由 7 月的 104 μg·m^{-3}下降到 66 μg·m^{-3},其中,黑龙江由 80 μg·m^{-3}下降到 57 μg·m^{-3},吉林由 112 μg·m^{-3}下降到 67 μg·m^{-3},辽宁由 122 μg·m^{-3}下降到 74 μg·m^{-3}.10 月黑龙江与辽宁的 O_3浓度差值已降至 17 μg·m^{-3}.

11—12 月 O_3浓度相对较低,空间分异已不明显.11 月东北地区 O_3浓度为 39~73 μg·m^{-3},平均为 54 μg·m^{-3};12 月东北地区 O_3浓度为 32~66 μg·m^{-3},平均为 47 μg·m^{-3}.其中,黑龙江、吉林、辽宁 11 月的 O_3平均浓度分别为 51、59 和 55 μg·m^{-3},12 月的平均浓度分别为 44、50 和 48 μg·m^{-3},各省 O_3浓度的差异较小,其中,中部的吉林省甚至略高于南部和北部.

3.3 重心迁移规律

利用重心模型,分别计算 2016 年东北地区 O_3年均浓度和各月月均浓度的重心,通过 O_3浓度重心的迁移轨迹、迁移方向和迁移速率来进一步考察东北地区 O_3浓度分布格局的演变规律(图 5).结果表明,各重心均位于吉林省四平市境内,其中,年度重心位于四平市区东北向约 40 km 处,月度重心则以年度重心为中心,在其东北-西南方向上有一次往复的迁移过程.1—2 月 O_3浓度重心最北,均位于年度重心东北方向约 43 km 处.3—6 月 O_3浓度重心快速向西南方向迁移,迁移距离 80 km,月均迁移距离 20 km.7—11 月 O_3浓度重心北返,但 8—9 月重心有一次逆向过程,逆向迁移距离约 30 km.因此,10—11 月 O_3浓度重心北迁的速率最快,迁移距离 84 km,月均迁移 42 km.11、12 月 O_3浓度重心回到最北端,与 1、2 月的重心位置相近,完成了 1 年的周期循环.

3.4 空间集聚特征及其演化规律

O_3浓度空间自相关分析结果表明(表 1),2016 年东北地区 O_3年均浓度全局 Moran′s I>0,且通过了 99%的显著性检验,表明年均浓度分布具有显著的正的空间自相关,浓度相似的城市趋于集聚分布.月均浓度分布中,11 月—次年 2 月 Moran′s I 未通过显著性检验,呈随机分布状态;3—10 月 Moran′s I 均大于 0 且通过 99%的显著性检验,空间分布具有显著的正的空间自相关.

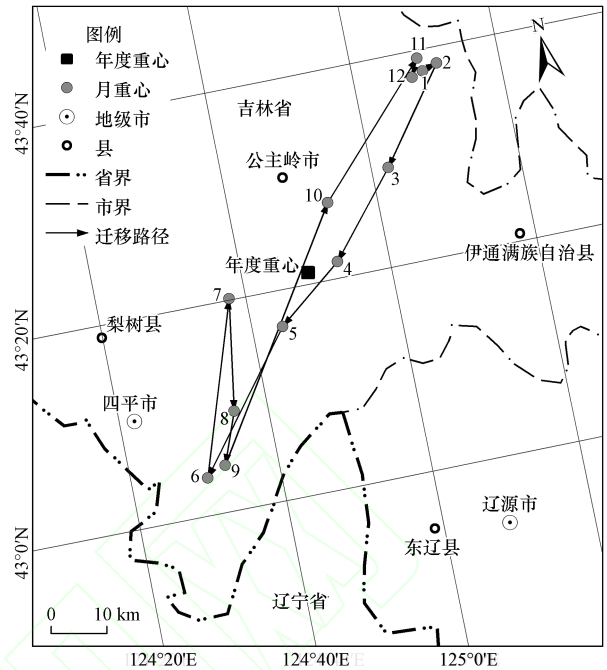

图 5 东北地区 O_3浓度重心迁移轨迹

Fig.5 The movement of gravity center of ozone concentration in Northeastern region in 2016

表 1 2016 年东北地区 O_3浓度空间自相关分析结果

Table 1 Global Moran′s I of ozone concentration in Northeastern region in 2016

月份	Moran′s I	$Z(I)$	p
1 月	−0.025	0.035	0.972
2 月	−0.107	−0.918	0.358
3 月	0.272	3.447	0.001
4 月	0.468	5.705	0.000
5 月	0.524	6.373	0.000
6 月	0.592	7.129	0.000
7 月	0.519	6.284	0.000
8 月	0.568	6.853	0.000
9 月	0.607	7.345	0.000
10 月	0.278	3.586	0.000
11 月	−0.035	−0.079	0.937
12 月	−0.008	0.226	0.821
全年	0.475	5.792	0.000

利用 Getis-Ord G_i^* 对具有正的空间自相关性的年均浓度和 3—10 月月均浓度的集聚区域进行识别(图 6).结果表明,O_3年均浓度具有南热北冷的集聚特征.通过显著性检验的年均浓度热点城市共 19 个,主要分布在辽宁和吉林南部,表明这些区域 O_3 浓度相对较高,是东北地区 O_3高污染区域.冷点城市共 9 个,主要分布在黑龙江中北部,表明这些区域 O_3浓度相对较低,是东北地区 O_3空气质量优良区.3—10 月 O_3月均浓度的空间集聚特征与年均浓度相似,也表现为南热北冷的格局.其中,3—6 月,黑龙江中北部的冷点逐渐增多和加强,热点则稳定地分布在辽宁和吉林南部.7—10 月,黑龙江中北部的冷点逐渐削弱,辽宁和吉林南部的热点则逐渐向南消退,最终演变为 11 月—次年 2 月的随机分布状态.

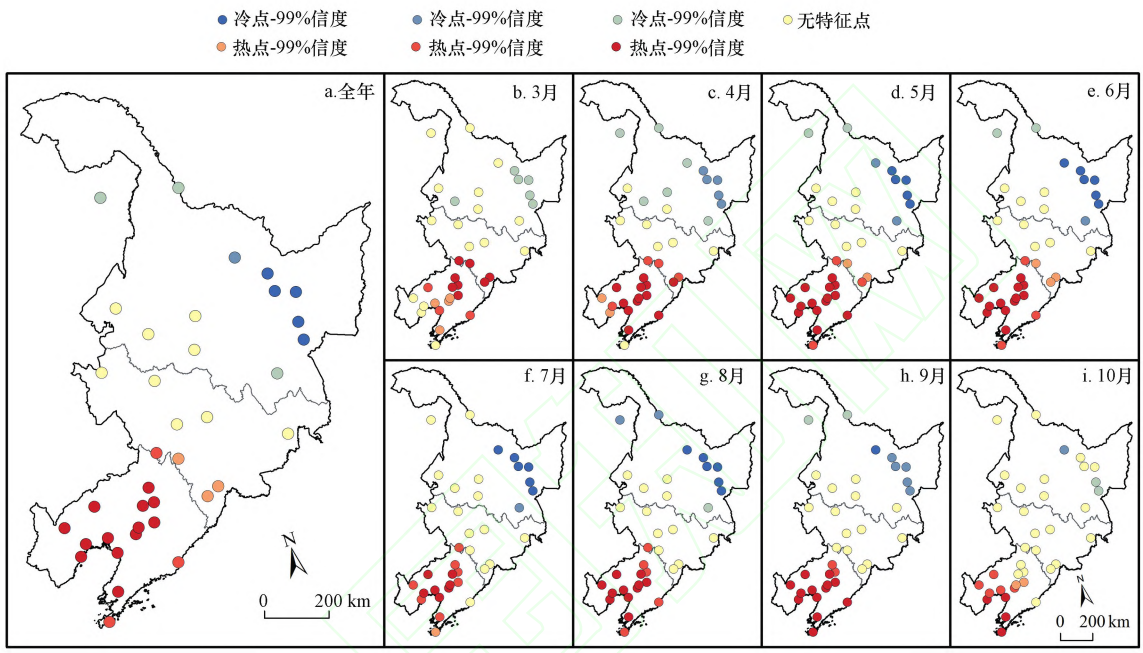

图 6　东北地区 O_3浓度空间集聚特征及演变规律

Fig.6　Spatial aggregation and evolution of ozone concentration in Northeastern region in 2016

4　讨论(Discussion)

4.1　O_3年均浓度分布格局的影响因素解析

O_3年均浓度分布影响因素的地理探测结果表明(表 2),除风速和降水量外,其余因子的影响力均通过了显著性检验,对 O_3浓度分布均有显著影响.通过显著性检验的因子中,除相对湿度呈负向影响外,其余因子均呈正向影响.研究表明,太阳辐射是光化学反应的环境条件,与 O_3浓度有显著的正相关关系(李磊等,2017).气温高、日照时数长的地区一般太阳辐射强,因而气温、日照时数一般与 O_3浓度有显著的正相关关系.相对湿度对 O_3浓度的影响主要表现在两方面:一是高湿环境利于 O_3的干沉降,清除 O_3(Kavassalis *et al.*, 2017);二是水汽的消光机制能使太阳辐射衰减,使光化学反应速率减弱(Jacob *et al.*, 2009).因此,相对湿度一般与 O_3浓度呈负相关关系.VOCs、NO_x和 CO 等前体物是光化学反应的物质基础,它们的排放量一般与 O_3浓度有显著的正相关关系.可见,通过显著性检验的影响因子的影响方向均符合理论预期.由于东北地区气温、VOCs 排放量、NO_x排放量和 CO 排放量的空间分布均大体为南高北低,相对湿度则相反,大体为北高南低(图 1),在这些因子的共同作用下,东北地区 O_3年均浓度分布呈南高北低的格局.

在所有通过显著性检验的因子中,气温的影响力(0.507^{***})最大,且显著高于其他因子,是东北地区 O_3年均浓度分布的主导因素.东北地区由南向北气温的梯度变化非常明显,黑龙江、吉林和辽宁年均气温分别为 3.2、6.1 和 9.6 ℃,辽宁约为黑龙江省的 3 倍,因而气温对东北地区 O_3浓度有最大的识别度.东北地区中、北部 O_3浓度全年较低,O_3超标较少发生,就主要受气温低、太阳辐射较弱的影响.这与中国东部地区不同,中国东部地区主要受降水和相对湿度南高北低的影响,O_3浓度分布格局总体呈北高南低

(黄小刚等,2019c).VOCs 排放量(0.357***)、NO_x 排放量(0.247**)、CO 排放量(0.233**)等前体物也有较大的影响力,这是 O_3 污染具有城市群特征的主要原因.环渤海地区的城市 O_3 污染较严重,除因气温高、太阳辐射强外,经济发达、人类活动强度大、前体物排放量大也是重要原因,而北部鹤岗、大庆、佳木斯等污染物排放量大的城市 O_3 浓度比周边城市高,也是受前体物排放驱动的结果.相对湿度的影响力最小,这可能与东北地区平均相对湿度较小有关.据曹庭伟等(2018)的统计,相对湿度<60%时,O_3 浓度与相对湿度有正相关关系;相对湿度≥60%时,O_3 浓度与相对湿度有负相关关系,且相对湿度越大,O_3 浓度下降越明显.东北地区各市相对湿度在56%~71%之间,平均相对湿度为 64%,相对湿度空间差异较小且接近 60%这一负相关的下限值,故而对 O_3 浓度空间分异的影响力较小.

一般来说,风是空气质量改善的重要气象条件,风速越大扩散能力越强(刘姣姣等,2014).降水量大不仅意味着阴天天气多,大阳辐射弱,且降水本身对 O_3 及其前体物均有冲刷作用,能显著降低 O_3 浓度(韩立会等,2017).因此,风速、降水量一般与 O_3 浓度呈负相关关系.然而本次评价结果显示,这两指标的影响力均不显著,这可能与东北地区风速和降水量相对较小有关.东北地区的年降水量一般在 400~800 mm 之间,且降水比较集中,这与降水量相对较高的中国东部地区不同(黄小刚等,2019c).东北地区风速为 1.5~4.2 $m\cdot s^{-1}$,平均风速为 2.7 $m\cdot s^{-1}$,≥4.0 $m\cdot s^{-1}$的天数比例仅为 2.8%.已有研究表明,在风速较低时,风对污染物的扩散作用不明显(严仁娥等,2018),当风速>4.0 $m\cdot s^{-1}$时,风速与污染物浓度呈显著负相关(Han *et al.*,2016).

表 2 影响因素地理探测结果

Table 2 Analysis results by geological detector

月份	NO_x	VOCs	CO	气温	日照	降水	湿度	风速
1 月	0.019	0.036	0.019	0.035	0.006	−0.096	−0.026	0.015
2 月	0.005	0.028	0.031	0.025	−0.033	−0.080	−0.058	0.185**
3 月	0.026	0.167**	0.092	0.237**	0.018	−0.017	−0.020	−0.123
4 月	0.180**	0.436***	0.152*	0.455***	0.147*	0.135*	−0.132	−0.142*
5 月	0.303***	0.497***	0.303***	0.426***	0.301***	0.253**	0.034	−0.060
6 月	0.397***	0.548***	0.428***	0.666***	0.394***	−0.191**	−0.396***	0.257**
7 月	0.441***	0.425***	0.405***	0.549***	−0.008	0.234**	−0.168**	0.236*
8 月	0.555***	0.516***	0.489***	0.614***	0.075	0.121	−0.014	−0.086
9 月	0.365***	0.401***	0.118	0.626***	0.637***	−0.492***	−0.059	−0.283***
10 月	0.157*	0.222**	0.086	0.380***	0.008	−0.161*	0.129*	−0.018
11 月	−0.000	−0.119	−0.054	0.316***	0.097	−0.106	−0.030	0.045
12 月	−0.064	−0.065	−0.119	0.049	0.041	0.011	−0.148	0.011
年均	0.247**	0.357***	0.233**	0.507***	0.325***	0.082	−0.139*	0.013

注:***、**、*分别表示通过了信度为 99%、95%和 90%的显著性检验.

4.2 O_3 浓度分布格局演变的影响因素解析

分别对东北地区各月 O_3 分布的影响因素进行探测,以识别东北地区 O_3 分布格局演变的主导因素.结果表明(表 2),各因素的影响主要表现在 3—10 月,11 月—次年 2 月各因素的影响力多未通过显著性检验.这是因为 11 月—次年 2 月东北地区气温普遍较低,光化学反应普遍较弱,O_3 的空间分异不明显,因而各因素对 O_3 分布的区分度普遍不高.3—10 月光化学反应活跃阶段,各因素的影响力则有显著的变化规律,使 O_3 浓度分布呈现出周期性的演变过程.

4.2.1 影响 O_3 浓度空间格局演变的气象因素解析

气温是影响东北地区 O_3 浓度分布格局演变的主导因素(表 2).在光化学反应活跃的 3—10 月,气温的影响力除 5 月略小于 VOCs 外,其余月份均最大,且均为正向影响.其影响力有明显的变化规律,大致呈倒 U 型变化,从 3 月开始影响力逐渐增大,6 月达到最大,此后波动下降,与气温的季节变化大体相同.东北地区 7 月月均气温最高(23.7 ℃),但气温的影响力最大值却出现在 6 月,这可能与季风活动有关.东北地区属于季风气候,春、夏季随着气温的升高,季风活动也在增强,降水和相对湿度的增加抵

消了气温的部分影响.

其余气象因子的影响相对较小,不仅影响力显著小于气温,部分因子的影响方向还受气温支配.如降水的影响力只有 4—7 月和 9—10 月通过了显著性检验,且 4、5 和 7 月的影响力为正(表 2).降水的影响力为正显然与传统认识相悖,可能原因在于,受季风的影响东北地区 4 月的平均降水量从南到北分别为 31.52、37.67 和 24.47 mm,5 月分别为 133.98、126.25 和 84.23 mm,7 月分别为 210.70、144.38和 86.93 mm,整体上南多北少,与气温的空间分布特征大体相同.由于东北地区降水量整体较少,清除能力弱,未能改变 O_3浓度分布整体呈南高北低的分布格局,因而降水与 O_3浓度在空间分布上呈正相关关系,导致评价结果为正,并非其真实作用的反映.湿度只有 6、7、10 月通过了显著性检验,影响力在0.129^{*}~0.396^{***}之间.其中,6—7 月的相对湿度为 56.7%~86.8%,平均值为 72.5%,与 O_3浓度呈负相关关系;10 月的相对湿度为 51.7%~74.2%,平均值为 62.7%,与 O_3浓度呈正相关关系.这与曹庭伟等(2018)、安俊林等(2009)和吴锴等(2017)关于相对湿度负相关作用存在 60%下限值的结论一致.日照时数在 4—6 月和 9 月的影响力通过了显著性检验,且均为正向.风速在各个月份的影响力小,且影响方向差异较大.当风速与气温在分布上呈正相关时,风速的影响多呈正向,否则多为负向或不显著.这进一步证实风对东北地区 O_3浓度的影响较小.

4.2.2　影响 O_3浓度空间格局演变的前体物解析

由表 2 可以看出,前体物对 O_3月均浓度空间分布格局影响力的变化呈倒 U 型,3—8 月逐渐增大,9—10 月逐渐减小,与气温变化过程大体相同.1—2 月,所有前体物的影响力均未通过显著性检验,3 月,只有 VOCs 的影响力通过了显著性检验,此后影响力逐渐增大,8 月达到最大值后影响力又逐渐变小,其中,CO 在 9 月后影响力未通过显著性检验.可见,前体物对 O_3浓度分布的影响主要通过气象条件实现,温度越高,光化学反应越活越,前体物对 O_3浓度空间分异的正向影响越明显.NO_x、VOCs 等前体物在较强的太阳辐射下光化学反应强烈,利于 O_3生成和累积,随着太阳辐射的减弱和温度的降低,NO 等化学性质不稳定的前体物对 O_3的“滴定”作用增强,使 O_3浓度逐渐降低(孟晓艳等,2017).11 月—次年 2 月,前体物的影响力虽未通过显著性检验,但部分前体物在部分月份的影响力为负,表明其对 O_3可能已表现为消耗作用.黄小刚等(2019c)在研究中国东部地区 O_3浓度时也发现了前体物对 O_3浓度分布的影响主要通过气象条件实现的特征.从 NO_x和 VOCs 的影响力对比来看,VOCs 的影响力普遍比 NO_x大,说明东北地区的 O_3生成主要属于 VOCs 控制型,这与漏嗣佳等(2010)的研究结果一致.

5　结论(Conclusions)

1)2016 年东北地区 O_3-8 h-P90 分布整体呈南高北低的态势,O_3浓度的高值区及超标天数比例较高的地区都集中分布在环渤海地区的大连、葫芦岛、锦州、盘锦和营口等沿海城市.

2)气温是影响 O_3年均浓度空间格局演变的主导因素,随着气温的变化,O_3月均浓度空间分布格局呈现空间分异不明显-南高北低-空间分异不明显的演变特征.

3)O_3浓度年度重心位于吉林省四平市境内,月度重心则以年度重心为中心,在其东北-西南方向上有一次往复的迁移过程.

4)前体物是核心城市形成局部地区 O_3污染的主要原因,其影响力的大小受温度的影响,温度越高,光化学反应越强,前体物的正向影响力越大,温度越低,光化学反应越弱,化学性质活跃的前体物对 O_3可能起消耗作用.

参考文献(References):

安俊琳,王跃思,孙扬.2009.气象因素对北京臭氧的影响[J].生态环境学报,18(3):944-951

Botlaguduru V S V, Kommalapati R R, Huque Z. 2018. Long-term meteorologically independent trend analysis of ozone air quality at an urban site in the greater Houston area[J].Journal of the Air & Waste Management Association,68(10): 1051-1064

程红霞,胡列群,林粤江.2014.近 50 a 新疆沙尘暴冷热点的时空分布特征[J].干旱区资源与环境,28(7): 100-104

曹庭伟,吴锴,康平,等.2018.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,38(4):1275-1284

Chen Z Y, Zhuang Y, Xie X M, *et al*. 2019. Understanding long-term variations of meteorological influences on ground ozone concentrations in Beijing During 2006-2016 [J]. Environmental Pollution,245:29-37

段晓瞳,曹念文,王潇,等.2017.2015 年中国近地面臭氧浓度特征分析[J].环境科学,38(12):4976-4982

Geng G, Zhang Q, Martin R V, *et al*. 2015. Estimating long-term $PM_{2.5}$ concentrations in China using satellite-based aerosol optical depth and a chemical transport model[J].Remote Sensing of Environment, 166(1):262-270

Han L J, Zhou W Q, Li W F. 2016. Fine particulate ($PM_{2.5}$) dynamics

during rapid urbanization in Beijing, 1973-2013 [J]. Scientific Reports,6:23604

黄小刚,赵景波,曹军骥,等.2019a.中国城市 O_3 浓度时空变化特征及驱动因素[J].环境科学,40(3):1120-1131

黄小刚,邵天杰,赵景波,等.2019b.长三角城市群臭氧浓度的时空分异及驱动因素研究[J].长江流域资源与环境,28(6):1434-1445

黄小刚,邵天杰,赵景波,等.2019c.气象因素和前体物对中国东部 O_3 浓度分布的影响[J].中国环境科学,39(6):2273-2282

黄小刚,邵天杰,赵景波,等.2020.基于 GAM 模型的西安市 O_3 浓度影响因素解析[J].环境科学,41(4):1535-1543

胡成媛,康平,吴锴,等.2019.基于 GAM 模型的四川盆地臭氧时空分布特征及影响因素研究[J].环境科学学报,39(3):809-820

韩力会,张海亮,向欣,等.2017.北京市典型区域夏季降水及其对大气污染物的影响[J].环境科学,38(6):2211-2216

环境保护部科技标准司.2013.环境空气质量评价技术规范(试行):HJ663-2013 [S].北京:中国环境科学出版社

贾海鹰,尹婷,瞿霞,等.2017.2015 年北京及周边地区臭氧浓度特征及来源模拟[J].中国环境科学,37(4):1231-1238

Jacob D J,Winner D A.2009.Effect of climate change on air quality[J]. Atmospheric Environment,43(1):51-63

Kavassalis S C, Murphy J G. 2017. Understanding ozone-meteorology correlations: A role for dry deposition [J]. Geophysical Research Letters,44(6):2922-2931

Kang D,Hogrefe C,Foley K L,*et al*.2013.Application of the Kolmogorov-Zurbenko filter and the decoupled direct 3D method for the dynamic evaluation of a regional air quality model [J]. Atmospheric Environment,80(23):58-69

Li L,Chen C H,Huang C,*et al*.2011.Ozone sensitivity analysis with the MM5-CMAQ modeling system for Shanghai [J]. Journal of Environmental Sciences,23(7):1150-1157

Liu P F, Song H Q, Wang T H, *et al*. 2020. Effects of meteorological conditions and anthropogenic precursors on ground-level ozone concentrations in Chinese cities [J]. Environmental Pollution, 262:114366

刘建,吴兑,范绍佳,等.2017.前体物与气象因子对珠江三角洲臭氧污染的影响[J].中国环境科学,37(3):813-820

刘闵,王闯,侯乐,等.2017.沈阳臭氧污染时空分布特征及变化趋势[J].中国环境监测,33(4):126-131

刘玉莲,周贺玲,裴宇航,等.2018.哈尔滨近地面 O_3 浓度特征[J].环境科学学报,38(11):4454-4463

刘姣姣,蒋昌潭,宋丹,等.2014.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,37(8):91-98

Li M, Zhang Q, Kurokawa J I, *et al*. 2017. MIX: a mosaic Asian anthropogenic emission inventory under the international collaboration framework of the MICS-Asia and HTAP [J]. Atmospheric Chemistry and Physics,17(2):935-963

Li X, Zhang Q, Zhang Y, *et al*. 2017. Attribution of $PM_{2.5}$ exposure in Beijing-Tianjin-Hebei region to emissions: Implication to control strategies[J].Science Bulletin,62(13):63-70

李芳林,蒋昊.2018.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,27(5):939-948

李磊,赵玉梅,王旭光,等.2017.廊坊市夏季臭氧体积分数影响因素及生成敏感性[J].环境科学,38(10):4100-4107

漏嗣佳,朱彬,廖宏.2010.中国地区臭氧前体物对地面臭氧的影响[J].大气科学学报,33(4):451-459

孟晓艳,宫正宇,叶春霞,等.2017.2013—2016 年 74 城市臭氧浓度变化特征[J].中国环境监测,33(5):103-110

南国卫,孙虎.2017.基于灰色关联模型对陕西省 O_3 浓度影响因素分析[J].环境科学学报,37(12):4519-4527

沈路路,王聿绚,段雷.2011.神经网络模型在 O_3 浓度预测中的应用[J].环境科学,32(8):2231-2235

Su R,Lu K D,Yu J Y,*et al*.2018.Exploration of the formation mechanism and source attribution of ambient ozone in Chongqing with an observation-based model [J].Science China Earth Sciences,61(1):23-32

王劲峰,徐成东.2017.地理探测器:原理与展望[J].地理学报,72(1):116-134

Wang T,Xue L K,Brimblecombe P,*et al*.2016.Ozone pollution in China: a review of concentrations, meteorological influences, chemical precursors,and effects [J].Science of the Total Environment,575:1582-1596

Wei W, Lv Z, Cheng S, *et al*. 2015. Characterizing ozone pollution in a petrochemical industrial area in Beijing,China:a case study using a chemical reaction model [J]. Environmental Monitoring & Assessment,187(6):1-10

吴锴,康平,王占山,等.2017.成都市臭氧污染特征及气象成因研究[J].环境科学学报,37(11):4241-4252

严仁嫦,叶辉,林旭,等.2018.杭州市臭氧污染特征及影响因素分析[J].环境科学学报,38(3):1128-1136

Yin C Q, Solmon F, Deng X J, *et al*. 2019. Geographical distribution of ozone seasonality over China[J].Science of the Total Environment, 689:625-633

赵旭辉,董昊,季冕,等.2018.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,38(2):649-660

周亮,周成虎,杨帆,等.2017.2000—2011 年中国 $PM_{2.5}$ 时空演化特征及驱动因素解析[J].地理学报,72(11):2079-2092

中国环境科学研究院.2012.环境空气质量标准[M].北京:中国环境科学出版社