

DOI: 10.13671/j.hjkxxb.2017.0460

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

Cao T W, Wu K, Kang P, et al. 2018. Study on ozone pollution characteristics and meteorological cause of Chengdu-Chongqing urban agglomeration [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 38(4): 1275–1284

成渝城市群臭氧污染特征及影响因素分析

曹庭伟¹, 吴锴¹, 康平^{1,*}, 文小航¹, 李涵¹, 王莹¹, 吕欣远¹, 李安琪¹, 潘伟豪¹,
范武波², 易睿³, 包鑫斌¹, 何沐全⁴

1. 成都信息工程大学大气科学学院, 高原大气与环境四川省重点实验室, 成都 610225

2. 四川省环境保护科学研究院, 成都 610041

3. 扬州市环境监测中心站, 扬州 225009

4. 成都信息工程大学资源环境学院, 成都 610225

收稿日期: 2017-08-23 修回日期: 2017-11-17 录用日期: 2017-11-17

摘要: 为研究成渝城市群 O₃ 污染特征及其影响因素, 对成渝城市群 15 个城市 2015—2016 年国控环境监测站点和国家气象台站数据进行了研究. 结果表明, 研究区域 15 个城市均存在不同程度的 O₃ 超标现象. 2015—2016 年成渝城市群 O₃ 污染形势愈发严峻, 春末及夏季污染最为严重, 且在 7 月达到 O₃ 浓度峰值 (118 μg·m⁻³). O₃ 污染空间分布呈片状, 以资阳为中心的遂宁、眉山、成都等城市为 O₃ 污染较为严重的区域. 颗粒物、NO₂ 及 CO 均与 O₃ 有显著相关性, 其中颗粒物与 O₃ 浓度在冬季呈负相关, 在夏季则表现为正相关. 太阳辐射、气温、相对湿度及流场均是影响 O₃ 浓度的重要因子, 强辐射、高温及低湿易形成较高浓度的 O₃, 相对湿度对 O₃ 浓度的影响呈先升后降的关系.

关键词: 臭氧; 成渝城市群; 影响因素; 气象因素

文章编号: 0253-2468(2018)04-1275-10 中图分类号: X512 文献标识码: A

Study on ozone pollution characteristics and meteorological cause of Chengdu-Chongqing urban agglomeration

CAO Tingwei¹, WU Kai¹, KANG Ping^{1,*}, WEN Xiaohang¹, LI Han¹, WANG Ying¹, LÜ Xinyuan¹, LI Anqi¹,
PAN Weihao¹, FAN Wubo², YI Rui³, BAO Xinbin¹, HE Muquan⁴

1. Plateau Atmosphere and Environment Key Laboratory of Sichuan Province, School of Atmospheric Sciences, Chengdu University of Information Technology, Chengdu 610225

2. Sichuan Academy of Environmental Sciences, Chengdu 610041

3. Yangzhou Environmental Monitoring Center, Yangzhou 225009

4. School of Resources and Environment, Chengdu University of Information Technology, Chengdu 610225

Received 23 August 2017; received in revised form 17 November 2017; accepted 17 November 2017

Abstract: In order to study the characteristics of ozone (O₃) pollution in Chengdu-Chongqing Urban Agglomeration (CCUA) and its influencing factors, the data of national control environment monitoring stations and national meteorological stations in 15 cities in CCUA from 2015 to 2016 were analyzed. The results showed that there were different levels of O₃ in 15 cities. As for the temporal variation, it showed an increasing trend of O₃ pollution from 2015 to 2016, and the O₃ pollution of CCUA was most serious in the late spring and summer (reached a peak of 118 μg·m⁻³ in July). As for spatial distribution, the O₃ pollution in CCUA showed a contiguous distribution Characteristics, that is, the O₃ pollution in center of Ziyang, Suining, Meishan, and Chengdu area is more serious. Particulate matters, NO₂ and CO were significantly correlated with O₃, in which the winter particulate matter was negatively correlated with O₃ concentration, and the summer was positively correlated. Solar radiation, temperature, relative humidity and flow field are important

基金项目: 国家自然科学基金重大研究计划 (No. 91644226); 国家自然科学基金 (No. 41405063); 深圳市科技计划项目 (No. JCYJ20150630153917252); 成都信息工程大学科研基金 (No. KYTZ201725)

Supported by the Major Research Plan of the National Natural Science Foundation of China (No.91644226), the National Natural Science Foundation of China (No.41405063), the Science and Technology Program of Shenzhen (No.JCYJ20150630153917252) and the Scientific Research Foundation of Chengdu University of Information Technology (No.KYTZ201725)

作者简介: 曹庭伟 (1996—) 男, E-mail: 2015011036@cuit.edu.cn; * 责任作者, E-mail: kangping@cuit.edu.cn

Biography: CAO Tingwei (1996—) male, E-mail: 2015011036@cuit.edu.cn; * Corresponding author, E-mail: kangping@cuit.edu.cn

factors affecting the concentration of O_3 . Strong solar radiation, high temperature and low humidity is easy to form a higher concentration of O_3 . The effect of relative humidity on the concentration of O_3 was first increases and after decreases.

Keywords: ozone; Chengdu-Chongqing urban agglomeration; influencing factors; meteorological factors

1 引言(Introduction)

近年来 随着经济快速发展 城市化进程加快, 能源消耗量增加, 我国部分城市地区空气污染类型正在由单一传统的煤烟型污染向复合型污染转变, 以细粒子($PM_{2.5}$)、臭氧(O_3)污染为主要特征的区域性、复合型大气污染问题日益突出, 以 O_3 为特征产物的光化学烟雾污染愈发严重(张小曳等, 2013; Wang *et al.*, 2016). 为全面认识 O_3 的污染规律, 目前在全国范围内开展了一系列 O_3 观测研究以了解其形成机理和时空分布特征. Tang 等(2009)对北京市2001—2006年近地面 O_3 及其前体物进行了分析, 认为 NO_x 排放量的减少和非甲烷碳氢化合物(NMHCs)排放量的增加可能是导致北京 O_3 浓度增加的原因; 张亮等(2015)基于WRF-Chem模式对长江三角洲夏季一次典型 O_3 污染过程的时空分布特征和物理化学机制进行了数值模拟研究, 结果表明本地排放源对 O_3 的时空分布具有较大影响; 王燕丽等(2017)利用CAMx-OSAT技术对京津冀地区夏季 O_3 污染进行来源解析, 研究表明, 京津冀13个城市 O_3 污染受传输贡献显著(>80%), 而受本地源贡献相对较小. 已有关于 O_3 时空分布特征的研究主要集中在京津冀、长三角、珠三角等区域, 针对成渝城市群的研究主要聚焦于 $PM_{2.5}$, 而关于 O_3 的研究相对缺乏, 且多是对成都、重庆等单个重点城市的 O_3 污染特征进行分析, 缺乏区域尺度 O_3 污染特征及时空分布的系统研究(吴锴等, 2017; 苏榕等, 2017).

成渝城市群位于四川盆地, 是我国西南地区经济最为发达的城市群, 也是我国《重点区域大气污染防治“十二五”规划》的重点防治区域之一. 成渝城市群工业发达, 污染物排放量较高, 加之盆地负地形不利于污染物的稀释扩散, 大气环境容量远小于平原城市, 区域性大气污染较为严重(Liao *et al.*, 2017). 本文利用成渝城市群2015年1月—2016年12月的近地面污染物观测资料和相应的气象资料, 分析讨论成渝城市群近地面 O_3 浓度的变化特征及其影响因素, 以期为该城市群近地面 O_3 污染防治提供科学依据, 也为进一步开展区域复合污染治理提供管理决策参考.

2 数据与方法(Materials and methods)

2.1 资料来源

本研究所使用的近地面污染物浓度数据来源于2015—2016年成渝城市群15个城市(成都、自贡、泸州、德阳、绵阳、遂宁、内江、乐山、南充、眉山、宜宾、广安、达州、资阳及重庆)共85个监测点位的 SO_2 、 NO_2 、 $PM_{2.5}$ 、 PM_{10} 、CO、 O_3 日均值和小时浓度值, 以及 O_3 日最大8h滑动平均值. 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/>), 严格参照《环境空气质量标准》(GB3095—2012)进行质量控制, 同时剔除部分时段由于停电、仪器校准等原因出现的缺测.

气象资料采用中国气象数据共享网(<http://cdc.cma.gov.cn>)的中国地面气象站逐小时观测资料, 在充分考虑数据完整性和代表性等因素后, 每个城市选取1个台站, 数据包括气温、气压、太阳辐射、相对湿度、风速、风向等气象要素, 数据集原始数据文件已经过严格的质量控制和检查.

2.2 分析方法

城市环境评价标准严格采用《环境空气质量标准》(GB3095—2012)中关于 O_3 的二级标准, 即 O_3 小时算术平均浓度超标标准为 $200 \mu g \cdot m^{-3}$, O_3 日最大8h滑动平均浓度标准为 $160 \mu g \cdot m^{-3}$. 同时根据《环境空气质量指数(AQI)技术规定(试行)》和中国环境监测总站发布的《关于对“全国城市空气质量实时发布平台”发布内容进行调整的通知》有关要求, 将环境空气质量依照AQI数值大小分为6级: 优($AQI \leq 50$)、良($50 < AQI \leq 100$)、轻度污染($100 < AQI \leq 150$)、中度污染($150 < AQI \leq 200$)、重度污染($200 < AQI \leq 300$)及严重污染($AQI > 300$). 城市环境空气质量年评价则依据《环境空气质量评价技术规范(试行)》(HJ663—2013), 执行评价项目年平均和日平均百分位数同时达标的要求.

各气象因子与 O_3 浓度的相关性均采用SPSS软件中Spearman相关性分析完成, 并采用ArcGIS软件对成渝城市群的臭氧浓度进行空间插值, 其余相关图表采用Originlab等软件绘制完成. 各城市之间的 O_3 浓度差异程度利用空间离散系数COD

(coefficient of divergence) 评估完成. COD 值越趋近于 0 则表明两个站点差异越小, 越趋近于 1 则表明差异越大(Xie *et al.* 2012; 郭家瑜等 2017). COD 计算公式为:

$$\text{COD}_{fn} = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \left(\frac{x_{if} - x_{ih}}{x_{if} + x_{ih}} \right)^2} \quad (1)$$

式中, x_{if} 、 x_{ih} 为同一污染物不同城市(f 和 h) 的浓度值; n 为进行比较的总数据数目.

3 结果与讨论(Results and discussion)

3.1 O₃ 污染时空特征

3.1.1 总体概况 成渝城市群位于四川盆地, 工业发达, 经济发展较快, 为我国四大城市群之一, 主要包括四川、重庆“一省一市”的 15 个城市, 除重庆市外, 四川省包括成都市、自贡市、泸州市、德阳市、绵阳市、遂宁市、内江市、乐山市、南充市、眉山市、宜宾市、广安市、达州市及资阳市(图 1). 2015 年 1 月—2016 年 12 月, 成渝城市群 15 个城市 O₃ 日最大 8 h 滑动平均值超过《环境空气质量标准》(GB3095—2012) 二级标准的天数为 576 d, 占总监测天数(即 15 个城市监测天数的总和, 共 10934 d, 下同) 的 5.3%. 其中, 轻度污染 543 d, 占 94.3%, 中度污染及重度污染占 5.7%, 无严重污染天气的出现.

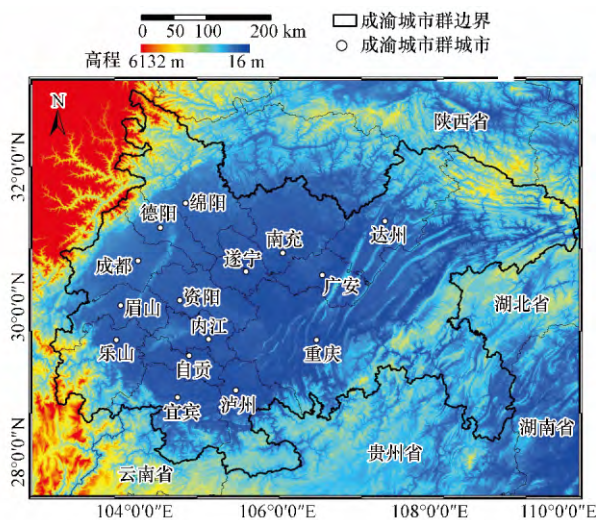


图 1 成渝城市群地区地理位置

Fig.1 The geographical location of Chengdu-Chongqing urban agglomeration (CCUA)

从各个城市的 O₃ 浓度超标来看(图 2), 南充超标天数最少(2 d), 达州、宜宾及自贡超标天数均在 10 d 以内, 泸州、遂宁、乐山、重庆及绵阳超标天数在 20~40 d, 眉山、成都、广安、德阳、资阳及内江超

标天数大于 50 d. 此外, 成都超标天数最多, 高达 110 d.

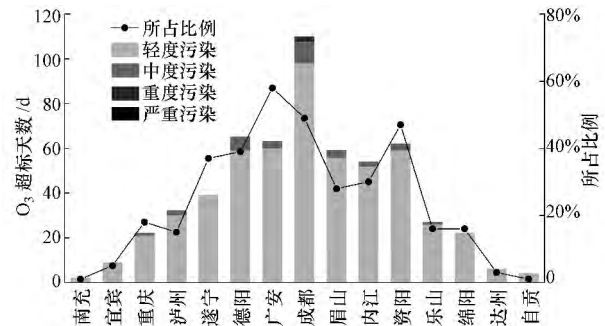


图 2 成渝城市群 2015—2016 年臭氧超标天数及污染等级分布

Fig.2 Number of days with O₃ concentration non-attainment and air quality non-attainment in CCUA during 2015 to 2016

2015—2016 年, 成渝城市群 15 个城市环境空气质量超标天数共 2575 d, 其中, O₃ 超标天数占 22.4%, 低于颗粒物的超标天数, 高于 SO₂、NO₂ 和 CO 的超标天数. 此外, 共有 7 个城市的 O₃ 超标天数占空气质量超标天数的比例高于 22.4%, 其中, 成都、德阳、广安及资阳 4 个城市 O₃ 超标比例均在 35% 以上, 广安超标比例高达 57.8%, 这 4 个城市的 O₃ 污染较其他城市更为严重. 同时, 按照《环境空气质量评价技术规范(试行)》的规定, 当城市一年内 O₃ 日最大 8 h 滑动平均值的第 90 百分位数浓度大于 160 μg·m⁻³ 时, 该城市的年度评价结果为超标. 据此评价, 成渝城市群 15 个城市中成都 2015 年及 2016 年 O₃ 年度评价结果均超标, 广安仅 2015 年 O₃ 年度评价结果超标, 眉山仅 2016 年 O₃ 年度评价结果超标, 其余 12 个城市两年 O₃ 年度评价结果均未超标.

3.1.2 时间变化特征 成渝城市群 O₃ 月均浓度具有一定的月变化特征(图 3), 1—5 月 O₃ 月均浓度逐

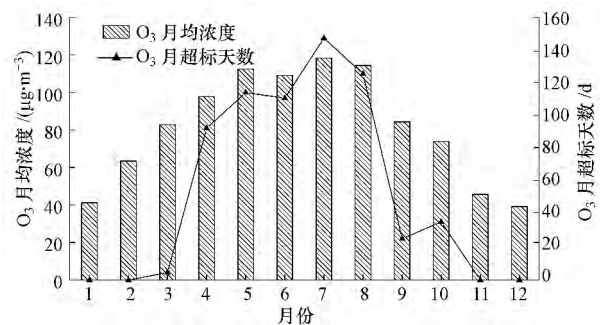


图 3 成渝城市群 2015—2016 年 O₃ 浓度与超标天数月均分布

Fig.3 Monthly variation of O₃ concentration and number of days with O₃ concentration non-attainment in CCUA during 2015 to 2016

渐升高,5—8月为 O_3 污染最为严重的时候,即发生在春末和夏季,此时 O_3 浓度均大于 $100 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,并于7月达到峰值 $118 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,8月以后开始下降,在1月和12月维持在 $40 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 左右,为该城市群最低 O_3 浓度.另一方面, O_3 超标天数的月分布与月浓度均值也有相似的变化趋势,在 O_3 污染最为严重的时候,超标天数也较多,其中,7月超标天数最多,达到129 d,9月 O_3 月均浓度较高但超标天数并不多,仅22 d,其主要原因是该月 O_3 浓度分布较为均匀.除此之外,1、2、11及12月中15个城市均未出现 O_3 超标.

3.1.3 空间分布特征 为进一步对比分析2015—2016年成渝城市群15个城市的 O_3 浓度空间变化特征,本研究基于ArcGIS软件采用克里金插值法对15个城市年均 O_3 浓度和超标天数进行了空间插值得到 O_3 浓度空间分布图(图4).由图4可见,2016年成渝城市群大部分城市 O_3 年均浓度较2015年有明显上升,2015年无 O_3 超标天数的城市,如自贡和宜宾,却在2016年出现 O_3 超标的情况;另一方面,虽然成都、德阳和资阳等城市 O_3 超标天数在

2015—2016年有所减少,但 O_3 年均浓度出现上升,表明成渝城市群 O_3 浓度高值频繁出现.整体上,2015—2016年成渝城市群 O_3 年均浓度分别为 79.64 、 $84.23 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,较2014年的 $57.98 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 有了明显上升,表明近年来该城市群 O_3 污染愈发严重. O_3 污染空间分布呈片状,高值区主要分布在成渝城市群西北部,即以资阳为中心的遂宁、眉山、成都等城市,同样以广安为中心的周边城市 O_3 污染也较为严重.Zhang等(2016)基于WRF-Chem模式结合Hysplit后向轨迹对资阳地区的一次重污染过程的模拟结果表明,这主要是由于资阳及周边城市的大气边界层高度较低,污染物扩散能力较差,大气环境容量有限所导致.而 O_3 浓度的低值区则主要分布在成渝城市群的东部及南部,重庆、南充、宜宾及乐山等城市均为臭氧污染较轻的地区.这是因为川东南城市群特殊的气旋式流场容易导致盆地内城市间逆时针方向的上下风关系相互影响,导致在自贡、内江、泸州一带形成“污染物滞留区”,从而削弱了城市间 O_3 区域传输作用(何沐全等,2017).

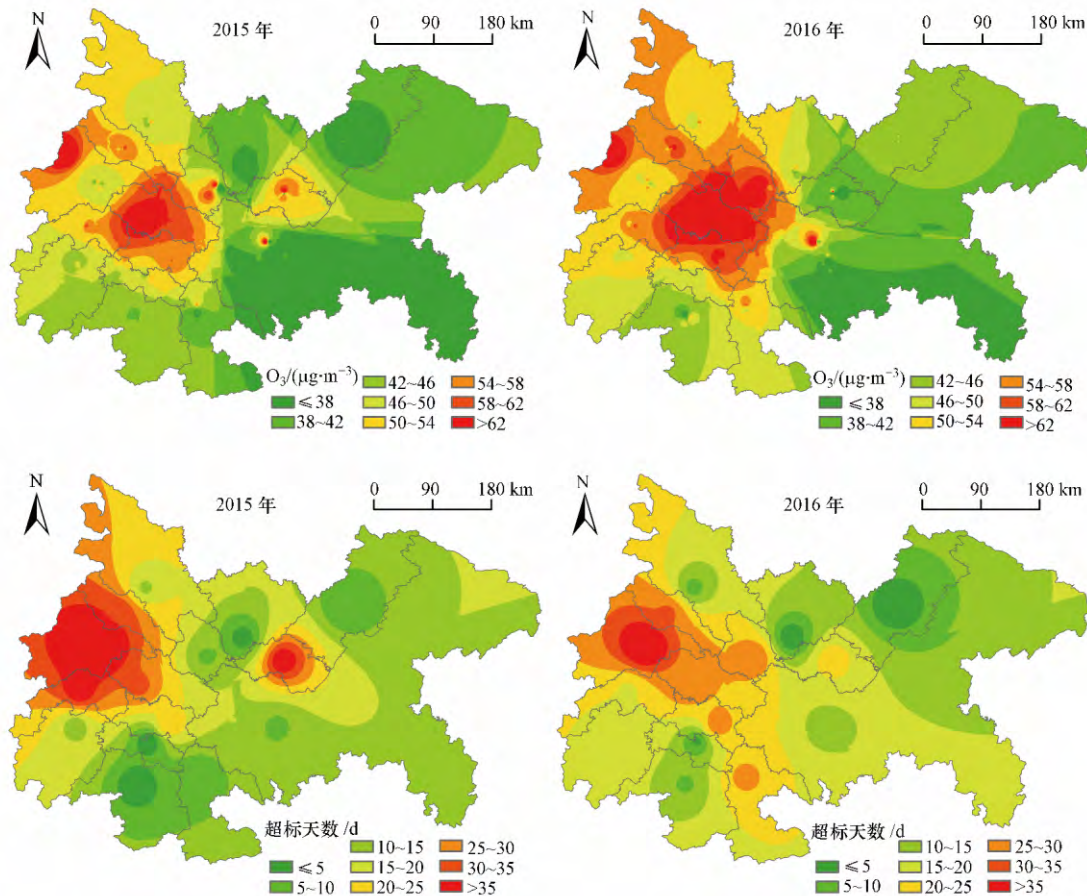


图4 成渝城市群2015—2016年臭氧年均浓度及超标天数空间分布

Fig.4 Spatial distribution of O_3 concentration and number of days with O_3 concentration non-attainment in CCUA during 2015 to 2016

为进一步定量描述成渝城市群地区 O_3 污染空间分布状况,本研究采用 COD 值评估两个城市之间 O_3 污染差异程度,分别取不同城市的 O_3 年均浓度值为 x 数据组,定量评估并对比城市间的差异(图 5)。由图 5 可知,重庆市与四川省境内的 14 个城市 COD 值均较大,这表明重庆市 O_3 污染状况与其余 14 个城市存在较大差异,且受其他城市的影响较小。梁丹等(2015)采用后向轨迹聚类与 PSCF(潜在源贡献因子法)对重庆市 O_3 来源分析发现,重庆市 O_3 浓度

受南宁、贵阳及遵义等城市的局地传输作用较大。此外,这也可能与重庆市常年盛行北风而重庆市位于成渝城市群的东南方向有关。而以资阳为中心的 O_3 污染较重的片状区域,城市之间 COD 值均较低,表明该片状区域内各城市间 O_3 污染差异较小。谢雨竹等(2015)研究发现该地区在偏北风的条件下, O_3 浓度显著高于静风环境, O_3 污染受外来影响较大,这也在一定程度上表明了该区域 O_3 污染存在较强的内部传输作用。

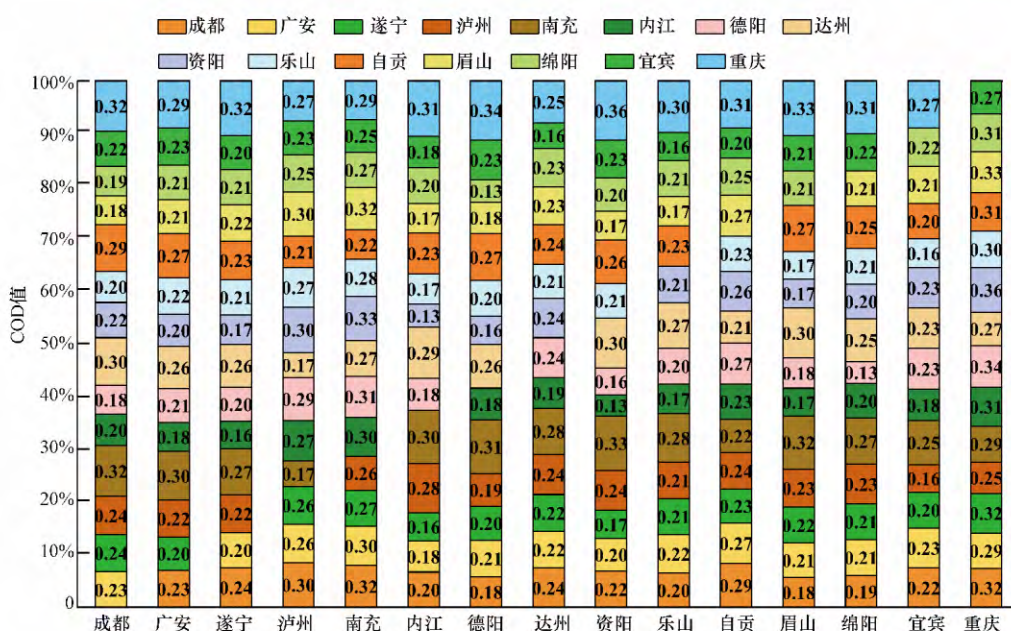


图 5 成渝城市群 2015—2016 年臭氧 COD 值

Fig.5 Ozone COD values of CUA during 2015 to 2016

3.2 与其他主要城市群 O_3 污染状况的比较

已有研究表明,京津冀、长三角、珠三角和成渝城市群已成为我国区域性大气复合污染最严重的四大区域(吴兑,2012)。4 个城市群的区域气候特征不同, O_3 污染特征也存在一定差异。以京津冀地区和成渝城市群为例,京津冀地区呈现出西北高东南低的地形特点,燕山与太行山系对该区域的主导风向产生了屏障作用,使得京津冀东南平原区全年各季节都处在风速较小的区域,不利于大气污染物的稀释和扩散(郑晓霞等,2014),而成渝城市群地处四川盆地,地势低矮,受季风影响较小,静风及小风天气频发,污染物不易扩散(肖钟湧等,2011)。2015—2016 年,京津冀地区 13 个城市 O_3 超标天数为 1140 d,占监测总天数(9477 d)的 12.0%,其中,北京、保定、唐山、廊坊、张家口及承德等 6 个城市两年 O_3 年度评价结果均超标。长三角地区 26 个城市 O_3 超标天

数为 1637 d,占总天数(18954 d)的 8.6%,其中,杭州、嘉兴及湖州 3 个城市 O_3 年度评价结果均超标。珠三角地区 14 个城市 O_3 超标天数为 1066 d,占总天数(10191 d)的 10.5%,其中,仅东莞市两年 O_3 年度评价结果均超标。综合来看,2015—2016 年 O_3 污染状况为:京津冀地区>珠三角地区>长三角地区>成渝城市群。

从四大城市群 O_3 月均浓度分布曲线(图 6)来看,成渝城市群同京津冀地区及长三角地区 O_3 浓度月均分布规律相似,呈现出夏季浓度较高,冬季浓度较低的特点,而珠三角地区则展现出 O_3 浓度秋季高于夏季的特点。廖志恒等(2015)基于 O_3 地基观测资料研究认为这是因为秋季广州和佛山地区的 O_3 前体物一次排放量较高,且秋季盛行北风带来了其他地区的高浓度 O_3 (沈劲等,2015),夏季则受来自南海的清洁气团及海陆风的影响较大(赖鑫等,

2017). 长三角地区 O₃ 污染呈现较为明显的片状分布特征, 其中, 上海及周边城市污染最为严重(易睿等 2015). 京津冀地区则以北京市为 O₃ 核心污染区向外辐散.

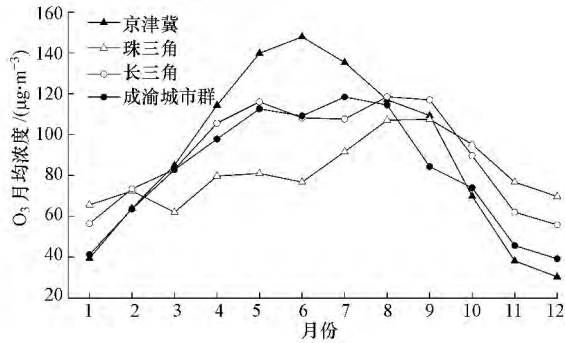


图 6 四大城市群 2015—2016 年 O₃ 月均浓度分布

Fig.6 Monthly variation of O₃ concentration in the four urban agglomerations during 2015 to 2016

3.3 O₃ 与其他污染物的关系

3.3.1 O₃ 与颗粒物 2015—2016 年成渝城市群的 1—12 月(除 6、7 月)均存在不同程度的颗粒物超标现象(图 7). 颗粒物超标总天数明显多于 O₃ 超标总天数, 但其超标天数的月变化趋势与 O₃ 变化趋势呈现出完全相反的情况, 冬季(12 月、1 月、2 月, 下同)颗粒物浓度最高, 此时成渝城市群中颗粒物污染最为严重, 而 O₃ 浓度较低, 不存在 O₃ 超标的情况. 在夏季(6、7、8 月, 下同) O₃ 污染较重, 而颗粒物浓度较低, 但仍存在颗粒物浓度超标的情况. 二者虽为不同类型的大气污染物, 贾海鹰等(2017) 分析认为在一定条件下高浓度颗粒物会导致气溶胶光学厚度增大, 削弱 O₃ 光化学生成率. 此外, O₃ 浓度同时也受颗粒物表面的非均相化学过程的影响(蔡彦枫等,

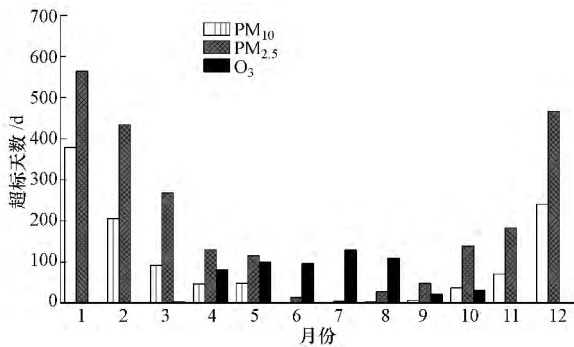


图 7 成渝城市群 2015—2016 年 PM_{2.5}、PM₁₀ 及 O₃ 超标天数月均分布

Fig.7 Monthly number of non-attainment days of PM₁₀, PM_{2.5} and O₃ in CCUA during 2015 to 2016

2012).

为进一步研究成渝城市群大气复合污染中颗粒物浓度和 O₃ 浓度的关系, 首先对各数据进行 K-S 统计检验, 发现数据之间均不服从正态分布, 因此, 可对各数据进行 Spearman 相关分析, 发现 PM_{2.5} 及 PM₁₀ 与 O₃ 在夏季的相关系数分别为 0.265 和 0.373, 而冬季的相关系数则变为 -0.136 及 -0.076, 均通过双侧 0.01 水平的显著性检验. 这可能是由于 PM_{2.5} 和 O₃ 在大气复合污染类型中相互作用的基本机制分为两个过程: ①大气中高浓度的 O₃ 可以促进细颗粒物二次生成以提高环境 PM_{2.5} 水平; ② PM_{2.5} 浓度的升高可以降低消光系数从而削弱大气辐射来抑制环境 O₃ 水平(Jia *et al.*, 2017). 在冬季和夏季, 不同的环境气象条件下, 过程①和②可能在 PM_{2.5} 和 O₃ 的相互作用中分别发挥主导作用, 夏季强烈的大气氧化作用促进了二次颗粒物的形成, 过程①促进了 PM_{2.5} 的生成, 而在 PM_{2.5} 浓度较高的冬季, 过程②占据主导作用, 减弱了 O₃ 光化学反应, 因此, 导致冬季和夏季的 PM_{2.5} 和 O₃ 之间负相关与正相关的出现. 此外, 该现象还可能与夏季强辐射条件下 VOCs 活性较强, 光化反应较为复杂有关(王占山等 2014).

3.3.2 O₃ 与其前体物 NO₂ 和 CO O₃ 主要由 NO_x、CO 和 VOCs 等前体物在合适的气象条件下反应生成(Wang *et al.*, 2012). 从 CO、NO₂ 及 O₃ 的月均浓度分布来看(图 8), 二者月均浓度变化趋势与 O₃ 相反, 冬季浓度较高, 夏季浓度较低, 同时 CO 和 NO₂ 均在 7 月出现浓度最低值, 而此时正为 O₃ 浓度的最高值, 主要原因在于成渝城市群地处四川盆地, 冬季逆温现象频发(Zeng *et al.*, 2017), 大气层结较为稳定, 不利于污染物的局地传输及稀释扩散; 另一方面, 冬季气温较低, 太阳辐射较弱, 不利于光化学

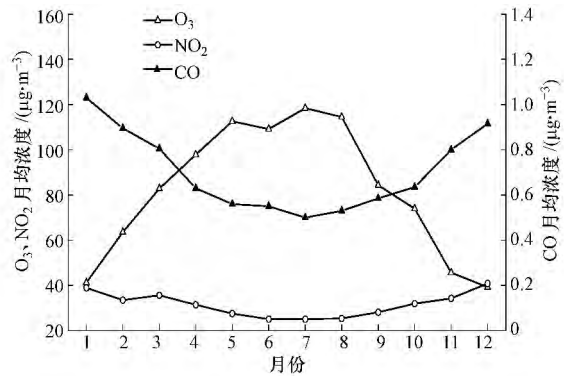


图 8 成渝城市群 2015—2016 年 NO₂、O₃ 及 CO 月均浓度分布

Fig.8 Monthly variation of NO₂, O₃ and CO concentration in CCUA during 2015 to 2016

反应进行,进而导致 NO_2 及 CO 等污染物积累.进一步计算 Spearman 相关系数可知,成渝城市群 2015—2016 年 O_3 逐小时浓度与 NO_2 和 CO 逐小时浓度的相关系数分别为 -0.495 、 -0.458 ,均通过双侧 0.01 水平的显著性检验,因为 CO 在大气化学反应中呈现出一定惰性,因此,同 O_3 相关性较差.

3.4 气象因子和 O_3 污染分析

对于 O_3 与气象因子的关系研究,不同地区略有差异,但国内外在对太阳辐射、气温、相对湿度、降水等对 O_3 浓度的影响都有大致相同的结论 (Toh *et al.* 2013; 宋从波等 2016). 马文静 (2014) 对西安市 O_3 污染特征分析表明,太阳辐射是决定 O_3 产生的关键因素;姜峰等 (2016) 进一步分析了太阳辐射强度同 O_3 的关系,认为 O_3 浓度会滞后于太阳辐射强度的变化; Jasaitis 等 (2016) 基于长时间监测,对辐射强度和 O_3 浓度的实验数据分析后认为,太阳辐射强度同 O_3 的生成有着密切的关系,在统计学上具有显著的正相关性.程念亮等 (2016)、王开燕等 (2012) 认为 O_3 浓度与相对湿度、能见度呈负相关,与气温、风速和日照时数呈正相关.气象因子通过影响光化学反应的发生,从而引起近地面 O_3 浓度的变化,因此,研究气象因子对 O_3 污染的影响,将有助于揭示气象因子对 O_3 污染的规律及其内在变化和联系.

3.4.1 太阳辐射 如图 9a 所示,较高的 O_3 浓度主要集中在太阳辐射 (SR) 较强的情况下.太阳辐射每增加 $3 \text{ MJ}\cdot\text{m}^{-2}$, O_3 平均浓度增加 $25 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 左右, O_3 浓度超标率也逐渐升高.当太阳辐射小于 $3 \text{ MJ}\cdot\text{m}^{-2}$ 时, O_3 平均浓度最低,仅为 $(38.6\pm 14.7) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,且没有出现 O_3 超标情况.在太阳辐射高于 $9 \text{ MJ}\cdot\text{m}^{-2}$ 时,开始出现 O_3 浓度超标现象,可见该范围是成渝城市群发生臭氧污染的关键太阳辐射范围.其中,当太阳辐射大于 $15.0 \text{ MJ}\cdot\text{m}^{-2}$ 时, O_3 平均浓度大于 $100 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 且超标率为 13.9%;当太阳辐射大于 $21 \text{ MJ}\cdot\text{m}^{-2}$ 时, O_3 超标率明显增加,为 31.9%.最大 O_3 平均浓度出现在太阳辐射高于 $24 \text{ MJ}\cdot\text{m}^{-2}$ 时,高达 $(149.2\pm 29.4) \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$.进一步研究发现,太阳辐射大于 $24 \text{ MJ}\cdot\text{m}^{-2}$ 的情况多发生于春末和夏季,此时为成渝城市群 O_3 污染较为严重的时候,这主要是由于春末和夏季气温较高,太阳辐射强烈,光化学反应活跃所造成 (修天阳等 2013).

3.4.2 气温 由成渝城市群不同气温 (T) 下 O_3 超标频率 (图 9b) 可以看出,当气温高于 18°C 时, O_3 超

标率大于 0,成渝城市群开始出现 O_3 超标现象.当温度高于 28°C 时, O_3 超标率已经较高,如当大气温度分别为 $28\sim 30^\circ\text{C}$ 、 $32\sim 34^\circ\text{C}$ 时, O_3 超标率分别为 17.0% 和 23.7%. O_3 平均浓度的变化趋势与 O_3 超标率的变化趋势相似,温度较低时, O_3 的平均浓度变化较小,当温度高于 18°C 时,其增加趋势较为明显,且当温度高于 24°C 时, O_3 平均浓度高于 $100.0 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$,并在 $32\sim 34^\circ\text{C}$ 时达到最大值 $135.5 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$.这是因为温度越高,太阳辐射越强,光化学反应的强度增大,导致光化学反应的产物 O_3 浓度也随之升高 (陈漾等 2017).进一步计算 Spearman 相关系数可知, O_3 逐小时浓度与气温的相关系数为 0.67,通过双侧 0.01 水平的显著性检验.

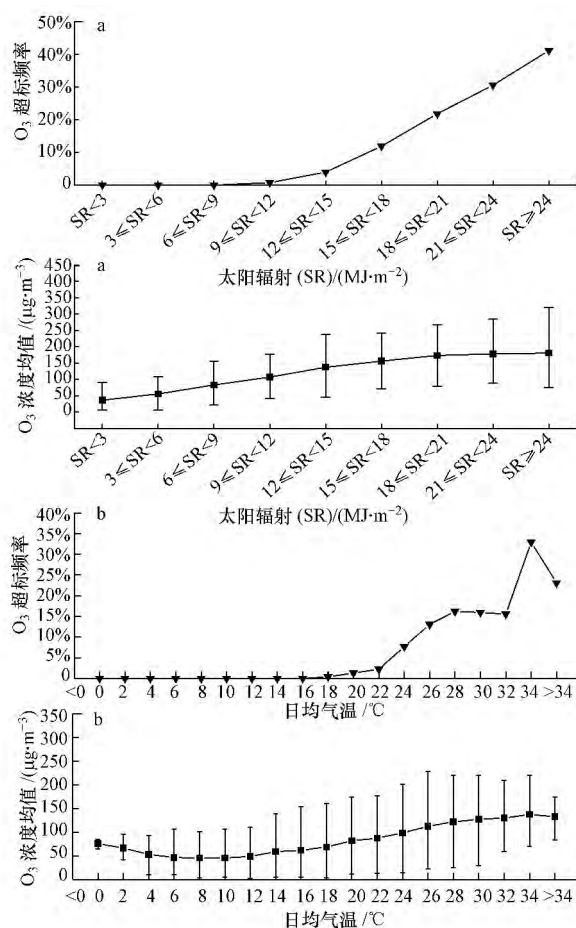


图 9 成渝城市群不同辐射总量 (a) 及气温 (b) 对应的 O_3 超标率和浓度均值

Fig.9 O_3 exceeded rate and average ozone concentration correspond to different solar radiation (SR) range (a) and temperature range (b) in CCUA

3.4.3 相对湿度 从不同相对湿度 (RH) 下的 O_3 超标频率 (表 1) 可以看出,当相对湿度小于 60% 时, O_3

浓度随着相对湿度的增加而增加,并在相对湿度为 50%~60%时, O₃ 浓度达到最大值 119.3 μg·m⁻³. 这与安俊琳等(2009)发现的当相对湿度在 60%左右时,光化学反应强度存在极限值这一结论相符.而在 RH≥60%时, O₃ 浓度随相对湿度的进一步增加呈现逐渐下降;另一方面, O₃ 超标率同浓度的变化呈现相似的变化趋势,在相对湿度为 40%~60%时, O₃ 超标率呈上升趋势, RH≥60%以后, O₃ 超标率开始出现明显下降,并 RH≥90%以后,仅有 1 d 出现 O₃ 超标的情况,表明较高的相对湿度不利于 O₃ 的生成.这主要是因为大气中的水汽对 O₃ 浓度变化有以下 3 个方面的影响:一是太阳辐射作为光化学反应发生的重要条件之一,在水汽的作用下会因消光机制而发生衰减(刘晶淼等,2003);二是高湿度有利于 O₃ 的干沉降,从而达到清除 O₃ 的作用(Sarah *et al.*, 2017);三是在较高的湿度条件下,光化学反应中消耗 O₃ 的反应过程占主导(式(1)~(5))(Gallimore *et al.*, 2011).

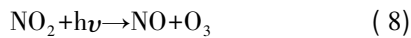
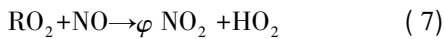
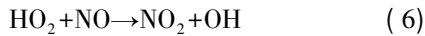
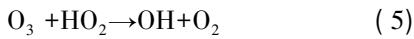
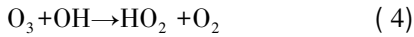
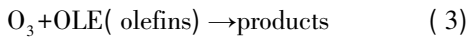
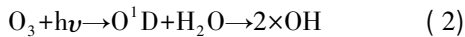
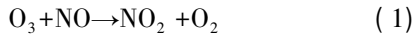


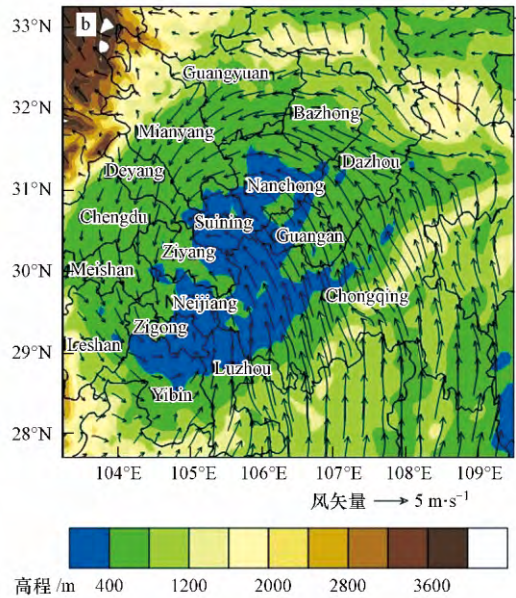
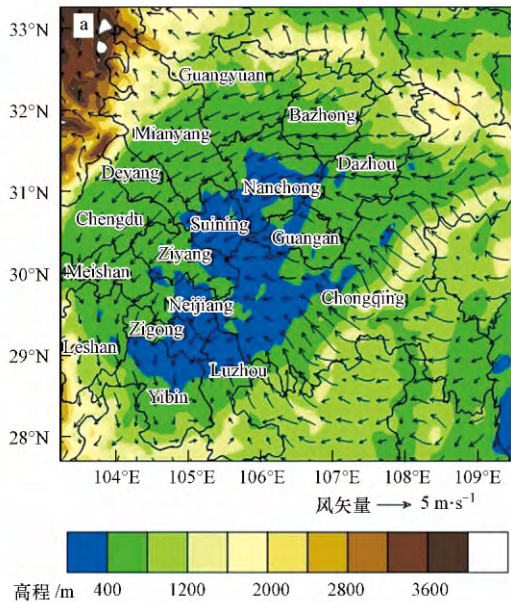
表 1 2015—2016 年成渝城市群不同相对湿度下 O₃ 超标频率和浓度均值

Table 1 O₃ non-attainment rate and average concentration in different relative humidity in CCUA during 2015 to 2016

相对湿度 RH	O ₃ 超标天数/d	监测天数/d	O ₃ 超标频率	O ₃ 浓度均值/(μg·m ⁻³)
RH<40%	2	36	5.56%	81.33
40%≤RH<50%	15	107	14.02%	107.40
50%≤RH<60%	99	526	18.82%	119.34
60%≤RH<70%	208	1748	11.90%	111.52
70%≤RH<80%	185	2851	6.49%	93.20
80%≤RH<90%	57	3137	1.82%	65.17
RH≥90%	1	1732	0.06%	49.20

3.4.4 风场 风场对污染物的输送具有重要的影响,不同的风向决定了污染物输送的不同来向,而风速大小则能反映污染物的输送效率或者污染物的清除效率(陈渤黎等,2017).分析气象资料发现,2015—2016 年成渝城市群盛行偏北风,风速整体季节分布为:春季>夏季>秋季>冬季,且风速主要分布在 0~3 m·s⁻¹,整体平均风速为 1.36 m·s⁻¹,可见成渝城市群静风及小风天气频发,占比达到 87.3%,这也是导致该地区大气污染较为严重的主要因素之一(曾胜兰等,2016).

图 10 是以 NCEP FNL(6 h, 1°×1°) 资料为基础数据,利用 WRF 模式模拟得到的 2015—2016 年成渝城市群 30 m 高度的季节平均流场分布.从图 10 可以看出,成渝城市群特殊的南高北低地形导致北部地区形成了气旋式流场,致使污染物难以远距离扩散输送并形成涡旋,在自贡、内江、泸州等城市范



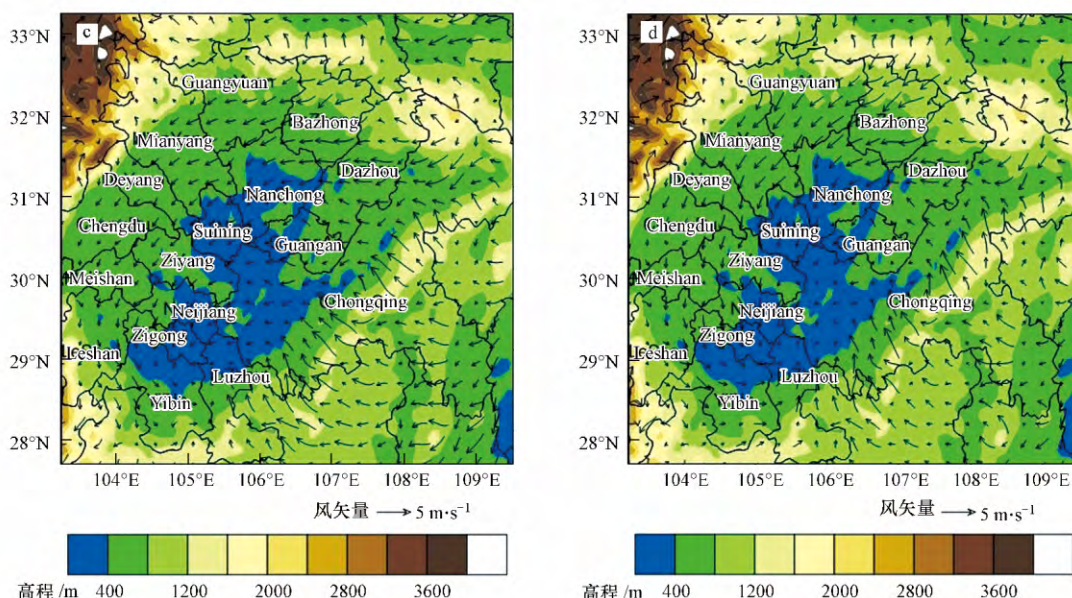


图 10 2015—2016 年成渝城市群 30 m 高度各季节平均流场分布 (a. 春季 b. 夏季 c. 秋季 d. 冬季)

Fig.10 Distribution of mean seasonal flow field over 30 m in CCUA during 2015 to 2016

围内形成了“污染物滞留区”。春季, 涡旋中心主要在泸州与宜宾交界处; 夏季, 受青藏高原夏季风影响, 涡旋中心向西北移动到内江北部和资阳南部一带; 秋冬季, 涡旋中心则处于泸州北部与宜宾北部。进一步结合近地面风速观测资料和图 10 可以发现, 盆地内城市间逆时针方向的上下风关系, 内江和泸州平均风速较城市群其他区域高, 而内江及乐山盛行北风, 泸州盛行南风, 进而导致自贡和内江交界地带形成了辐合区, O_3 在风和流场的影响下在自贡和内江附近汇集, 从而导致内江和自贡的 O_3 浓度普遍偏高, 这与图 5 以资阳为中心的片状区域 O_3 污染较重的结果相符。同时, 乐山、宜宾和泸州等与内江、自贡接壤的地区也会受到一定的 O_3 局地传输影响。

4 结论 (Conclusions)

1) 2015—2016 年成渝城市群 O_3 日最大 8 h 滑动平均值超过《环境空气质量标准》(GB3095—2012) 二级标准限值的总天数为 576 d, 15 个城市均有不同程度的超标情况, 其中, 成都超标天数最多, 达 110 d, 同时成都也是该城市群唯一一个两年 O_3 年度评价均超标的城市。

2) 从时间变化来看, O_3 月均浓度及超标天数变化趋势相似, 即在 5—8 月 (春末和夏季) O_3 污染最为严重, 其余月份污染较轻。而从空间分布来看, 成渝城市群 O_3 污染呈片状分布, 由于以资阳为中心的

周边区域大气边界层高度较低, 污染扩散能力较弱, 导致该区域 O_3 污染较为严重。

3) O_3 与颗粒物虽为两种完全不同类型的大气污染物, 但二者存在因季节变化而不同的互相影响机制, 使得冬季 O_3 与颗粒物呈显著负相关, 而在夏季呈显著正相关。另一方面, O_3 浓度和其前体物 NO_2 和 CO 的时间变化趋势呈完全相反的情况。

4) 太阳辐射、气温、相对湿度和风速均对 O_3 的浓度变化有一定的影响, 强辐射条件、高温及低湿易形成高浓度的 O_3 , 此外, 相对湿度对 O_3 浓度的影响呈先升后降的结果。

责任作者简介: 康平 (1988—), 男, 博士, 讲师, 主要从事大气环境化学研究。E-mail: kangping@cuit.edu.cn.

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
- 蔡彦枫. 2012. 长三角城市地区大气颗粒物与臭氧相互作用的观测和数值模拟研究 [D]. 南京: 南京大学
- 曾胜兰, 王雅芳. 2016. 成都地区污染天气分型及其污染气象特征研究 [J]. 长江流域资源与环境, 25 (S1): 59-67
- 陈渤黎, 晶璐, 刘银峰, 等. 2017. 2012 年-2014 年常州市大气污染特征分析研究 [J]. 环境科学与管理, 4 (1): 114-119
- 陈漾, 张金谱, 黄祖照. 2017. 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, 4 (4): 1-11
- 程念亮, 李云婷, 张大伟, 等. 2016. 2013~2014 年北京市 NO_2 时空分布

- 研究[J].中国环境科学,36(1):18-26
- 郭家瑜,张英杰,郑海涛,等.2017.北京2015年大气细颗粒物的空间分布特征及变化规律[J].环境科学学报,37(7):2409-2419
- Gallimore P J, Achakulwisut P, Pope F D, et al. 2011. Importance of relative humidity in the oxidative ageing of organic aerosols: case study of the ozonolysis of maleic acid aerosol [J]. Atmospheric Chemistry & Physics, 11: 12181-12195
- 何沐全,刘志红,张颖,等.2017.川南城市群大气灰霾时空分布特征及成因分析[J].中国环境科学,37(2):432-442
- 贾海鹰,李矛,程兵芬,等.2017.长沙市城区臭氧浓度特征研究[J].环境科学与技术,40(2):168-173,199
- 姜峰,王福伟.2016.夏季城市臭氧浓度变化规律分析[J].环境与可持续发展,41(1):62-64
- 赖鑫,江崧,钟雪平.2017.2015年深圳气态污染物浓度的变化特征[J].广东气象,39(2):74-77,80
- Jasaitis D, Vasiliauskiene V, Chadyšienė R, et al. 2016. Surface ozone concentration and its relationship with UV Radiation, meteorological parameters and radon on the eastern coast of the Baltic Sea [J]. Atmosphere, 7(2):27
- Jia M, Zhao T, Cheng X, et al. 2017. Inverse relations of PM_{2.5} and O₃ in air compound pollution between cold and hot seasons over an urban area of East China [J]. Atmosphere, 8(3):59
- Liao T T, Wang S, Ai J, et al. 2017. Heavy pollution episodes, transport pathways and potential sources of PM_{2.5} during the winter of 2013 in Chengdu (China) [J]. Science of the Total Environment, 584-585: 1056
- 李用宇,朱彬,安俊琳,等.2013.南京北郊秋季VOCs及其光化学特征观测研究[J].环境科学,34(8):2933-2942
- 梁丹,王彬,王云琦,等.2015.重庆市冬季PM_{2.5}及气态污染物的分布特征与来源[J].环境科学研究,28(7):1039-1046
- 廖志恒,孙家仁,范绍佳,等.2015.2006—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,35(2):329-336
- 刘晶淼,丁裕国,黄永德,等.2003.太阳紫外辐射强度与气象要素的相关分析[J].高原气象,22(1):45-50
- 马文静.2014.西安主城区近地面大气中臭氧浓度时空分布特征分析[D].西安:西安建筑科技大学
- 沈劲,陈皓,钟流举.2015.珠三角秋季臭氧污染来源解析[J].环境污染与防治,(1):25-30
- 宋从波,李瑞芃,何建军,等.2016.河北廊坊市区大气中NO、NO₂和O₃污染特征研究[J].中国环境科学,36(10):2903-2912
- 苏榕,陆克定,余家燕,等.2017.基于观测模型的重庆大气臭氧污染成因与来源解析[J].中国科学:地球科学,48(1):102-112
- Kavassalis S C, Murphy J G. 2017. Understanding ozone meteorology correlations: A role for dry deposition [J]. Geophysical Research Letters, 44: 2922-2931
- Tang G, Li X, Wang Y, et al. 2009. Surface ozone trend details and interpretations in Beijing, 2001—2006 [J]. Atmospheric Chemistry & Physics, 9(22): 8813-8823
- 王开燕,邓雪娇,张剑,等.2012.广州南沙区O₃浓度变化及其与气象因子的关系[J].环境污染与防治,34(6):23-26
- 王燕丽,薛文博,雷宇,等.2017.京津冀地区典型月O₃污染输送特征[J].中国环境科学,37(10):3684-3691
- 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
- 王占山,李云婷,陈添,等.2014.北京城区臭氧日变化特征及与前体物的相关性分析[J].中国环境科学,34(12):3001-3008
- 吴兑.2012.近十年中国灰霾天气研究综述[J].环境科学学报,32(2):257-269
- Wang T, Xue L K, Peter B, et al. 2016. Ozone pollution in China: A review of concentrations, meteorological influences, chemical precursors, and effects [J]. Science of the Total Environment, 10: 1582-1596
- Wang Y, Hopke P K, Xia X, et al. 2012. Source apportionment of airborne particulate matter using inorganic and organic species as tracers [J]. Atmospheric Environment, 55: 525-532
- Xie M, Coons T L, Dutton S J, et al. 2012. Intra-urban spatial variability of PM_{2.5}-bound carbonaceous components [J]. Atmospheric Environment, 60: 486-494
- 肖钟湧,江洪.2011.四川盆地大气NO₂特征研究[J].中国环境科学,31(11):1782-1788
- 谢雨竹,潘月鹏,倪长健,等.2015.成都市区夏季大气污染物浓度时空变化特征分析[J].环境科学学报,35(4):975-983
- 修天阳,孙扬,宋涛,等.2013.北京夏季灰霾天臭氧近地层垂直分布与边界层结构分析[J].环境科学学报,33(2):321-331
- 姚青,孙玫玲,刘爱霞,等.2009.天津臭氧浓度与气象因素的相关性及其预测方法[J].生态环境学报,18(6):2206-2210
- 易睿,王亚林,张殷俊,等.2015.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,35(8):2370-2377
- Ying Y T, Lim S F, Glasow R V. 2013. The influence of meteorological factors and biomass burning on surface ozone concentrations at Tanah Rata, Malaysia [J]. Atmospheric Environment, 70(70):435-446
- 张亮,朱彬,高晋徽,等.2015.长江三角洲夏季一次典型臭氧污染过程的模拟[J].环境科学,36(11):3981-3988
- 张小曳,孙俊英,王亚强,等.2013.我国雾-霾成因及其治理的思考[J].科学通报,58(13):1178-1187
- 郑晓霞,李令军,赵文吉,等.2014.京津冀地区大气NO₂污染特征研究[J].生态环境学报,23(12):1938-1945
- 周勤迁,张世春,陈卫卫,等.2014.长春市大气SO₂、O₃和NO_x的变化特征及来源[J].环境科学研究,27(7):768-774
- Zeng S L, Zhang Y, et al. 2017. The effect of meteorological elements on continuing heavy air pollution: A case study in the Chengdu Area during the 2014 Spring Festival [J]. Atmosphere, 8(4):71
- Zhang Y, Liu Z H, Lv X T, et al. 2016. Characteristics of the transport of a typical pollution event in the chengdu area based on remote sensing data and numerical simulations [J]. Atmosphere, 7(127):1-16