

## 2005–2013 年长江三角洲地区对流层二氧化氮时空变化特征

高 诚, 张 超, 余树全

(浙江农林大学 林业与生物技术学院, 浙江 临安 311300)

**摘要:** 利用 2005 年 1 月–2013 年 12 月臭氧监测仪传感器 DOMINO version 2.0 产品数据, 对长江三角洲对流层二氧化氮( $\text{NO}_2$ )柱浓度的时空分布变化特征展开分析, 得到以下结论: ① 9 a 间长三角地区二氧化氮柱浓度平均值为  $9.72 \times 10^{15} \text{ molec} \cdot \text{cm}^{-2}$ , 年均复合增长率为 2.10%, 年增长值为  $0.26 \times 10^{15} \text{ molec} \cdot \text{cm}^{-2}$ 。长三角地区作为外向型经济的代表, 二氧化氮柱浓度变化趋势与国内经济发展状况十分契合。② 9 a 间长三角地区二氧化氮柱浓度基本呈现冬季>秋季>春季>夏季的趋势, 异常的低温干旱气候会使二氧化氮柱浓度明显提升。③研究区二氧化氮柱浓度水平受人为活动和气候的共同作用影响, 但就直接作用程度来看, 以人为活动排放为主导。④ 9 a 间苏北和浙西南中部地区二氧化氮柱浓度一直呈持续增长势态, 而苏南和浙东北地区正趋于平稳, 长三角核心区域的经济产业结构调整, 以及大量工业项目的北迁和南移是背后的主要驱动力。图 4 表 3 参 43

**关键词:** 环境科学; 长三角; 对流层二氧化氮; 臭氧监测仪传感器; 时空分布; 变化趋势

中图分类号: X511

文献标志码: A

文章编号: 2095-0756(2015)-05-0691-10

## Temporal and spatial variation for vertical column density of tropospheric $\text{NO}_2$ over the Yangtze River Delta from 2005 to 2013

GAO Cheng, ZHANG Chao, YU Shuquan

(School of Forestry & Biotechnology, Zhejiang A & F University, Lin'an 311300, Zhejiang, China)

**Abstract:** Product data from DOMINO version 2.0 for January 2005 to December 2013 was used to analyze the temporal and spatial variation for vertical column density of tropospheric  $\text{NO}_2$  ( $\text{TroNO}_2$ ) over the Yangtze River Delta of China. Results showed that (1) the mean annual  $\text{TroNO}_2$  vertical column density was  $9.72 \times 10^{15} \text{ molec} \cdot \text{cm}^{-2}$ , the compound growth rate was 2.10%, and growth was  $2.6 \times 10^{14} \text{ molec} \cdot \text{cm}^{-2}$ . (2) Concentration of the  $\text{TroNO}_2$  column over 9 years indicated a maximum concentration in winter, followed by autumn, spring, and summer. (3) Primarily human activity but also climate influenced the  $\text{TroNO}_2$  column concentration. (4) The  $\text{TroNO}_2$  column concentration in northern Jiangsu and the central parts of southwest Zhejiang steadily increased over nine years; whereas it remained stable in southern Jiangsu and northeast Zhejiang. Thus, even with abnormally low temperatures and an arid climate contributing to the apparent increase in the Yangtze River Delta, the  $\text{TroNO}_2$  column concentration seemed acceptable for domestic economic development. [Ch, 4 fig. 3 tab. 43 ref.]

**Key words:** environment science; the Yangtze River Delta; tropospheric  $\text{NO}_2$ ; Ozone Monitoring Instrument (OMI); temporal and spatial distribution; variation differences

氮氧化物( $\text{NO}_x$ )种类很多, 除二氧化氮( $\text{NO}_2$ )以外, 其他  $\text{NO}_x$ ( $\text{NO}$ ,  $\text{N}_2\text{O}_3$ ,  $\text{N}_2\text{O}_4$  和  $\text{N}_2\text{O}_5$  等)均极不稳

收稿日期: 2014-10-22; 修回日期: 2014-12-24

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(30970485); 浙江省科学技术重点项目(2006C12060); 浙江省重点科技创新团队资助项目(2011850027)

作者简介: 高诚, 从事生态规划研究。E-mail: 309644381@qq.com。通信作者: 余树全, 教授, 博士, 博士生导师, 从事森林生态、恢复生态和生态规划研究。E-mail: yushq@zafu.edu.cn

定,最初燃烧排放的  $\text{NO}_x$  中一氧化氮( $\text{NO}$ )占绝大部分,但  $\text{NO}$  极易被氧化为  $\text{NO}_2$ (分钟计),从而形成  $\text{NO}-\text{NO}_2-\text{O}_3$  光化学稳定态,因此,  $\text{NO}_x$  一般就指  $\text{NO}$  和  $\text{NO}_2$ 。 $\text{NO}_x$  是重要的大气化学痕量物质,是对流层臭氧、硝酸盐气溶胶和氢氧自由基等主要大气氧化剂的前体物,是形成酸雨、光化学烟雾以及危害人体健康的主要污染物。全球大约 2/3 的  $\text{NO}_x$  来自化石燃料的燃烧<sup>[1]</sup>。在中国人为排放量约  $7.1 \text{ Tg} \cdot \text{a}^{-1}$ , 占国内总排放量 90%左右<sup>[2]</sup>,人为排放的主要来源包括发电(40.4%),交通(11.04%)和工业(38.11%)等<sup>[3]</sup>;就浓度贡献率来看,交通排放量是发电排放量的 7 倍<sup>[4]</sup>。受大气环境中臭氧( $\text{O}_3$ )和活性有机物以及日照强度、温度、气压、风速等因子影响,  $\text{NO}_x$  的化学寿命在夏季约 4 h,在冬季约 20 h<sup>[5]</sup>,由此导致其浓度分布很不均匀,高浓度的  $\text{NO}_x$  主要分布在排放源区附近距离地面 1~2 km 的大气对流层底部<sup>[6]</sup>。目前  $\text{NO}_2$  浓度的测量方法很多,按观测方式分为点式化学发光法<sup>[7-8]</sup>和差分吸收光谱法(DOAS)<sup>[9-10]</sup>等;按观测地点分为地面、机载<sup>[11]</sup>和遥感观测等。地面观测的时空分辨率相对较高,受云层干扰小,而遥感技术凭借较大的观测尺度,使得观测结果更具有代表性<sup>[12]</sup>,由于测量方法及观测方式的不同,测量结果存在一定的偏差,从而使得各种测量方法之间的相互对比校验变得非常重要<sup>[13]</sup>。1995 年搭载于 ERS-2 卫星上的全球臭氧监测仪(GOME)开始对大气层  $\text{NO}_2$  浓度进行观测,由此为全球尺度监测划定了统一的标准<sup>[14]</sup>,之后 SCIAMACHY, OMI 以及 GOME-2 监测仪也相继升空投入使用。目前,国内外学者使用遥感观测数据已进行了大量成功研究,包括监测  $\text{NO}_x$  排放的时空分布格局<sup>[15-17]</sup>,检测具体的排放源<sup>[18-19]</sup>,通过反演模型为“自下而上”的排放清单进行校正和更新<sup>[20-21]</sup>,估测  $\text{NO}_x$  的化学寿命<sup>[22]</sup>和闪电产生量<sup>[23]</sup>,推测  $\text{NO}_2$  地面浓度等<sup>[6, 24]</sup>,大量研究证明:遥感观测对流层  $\text{NO}_2$  柱浓度能够很好地反映地表  $\text{NO}_2$  浓度的分布情况<sup>[25]</sup>,由此促进了卫星遥感观测技术的广泛应用。随着中国经济的快速发展,其环境污染问题日益得到广泛关注。2013 年 1 月北京地区长达 25 d 的雾霾天气事件以及 2013 年年末全国性的雾霾天气,波及城市多达 25 个,即凸显了目前国内环境问题的严峻性和紧迫性。一些学者对中国东部地区  $\text{NO}_2$  排放情况开展了相关研究<sup>[26-31]</sup>, Hilboll 等<sup>[32]</sup>的研究表明:1996-2011 年全球以美国、欧洲及日本等为代表的工业发达国家(地区) $\text{NO}_2$  排放量呈显著降低趋势,而以中国、印度及中东地区为代表的发展中国家  $\text{NO}_2$  排放量呈显著增加趋势,其中尤以中国东部地区最为严重,16 a 间  $\text{NO}_2$  排放量提高了约 3 倍,而与之对应的美国东部地区  $\text{NO}_2$  排放量则减少了 40%。作为中国最大的城市群,长江三角洲地区是中国经济和产业最发达的地区,也是中国对外开放程度最高的地区,这块仅占全国面积 2%的地区,为全国贡献了约 20%的国内生产总值(GDP),然而其工业化和城市化迅速发展的同时也严重影响了该区的空气质量。本研究以长三角地区“两省一市”25 个城市为研究对象,利用 2005-2013 年 OMI 卫星数据及经济统计数据,对其大气对流层  $\text{NO}_2$  柱浓度时空变化特征和经济发展状况进行深入分析,以期为该区产业结构调整及节能减排、环境治理工作提供相关依据。本研究所使用的臭氧监测仪数据已臻成熟,适用于区域空气质量的分析研究<sup>[33]</sup>。DOMINO version 2.0 产品改进了大气质量因子、地表高度以及 TM4 的算法<sup>[34]</sup>,使用该数据产品, Zyrichidou, Lin 等<sup>[2, 35-36]</sup>学者进行了  $\text{NO}_2$  柱浓度的验证和排放估算。结果表明,相对地面观测数据 DOMINO 产品数据偏差仅  $(-10 \pm 14)\%$ ,相关系数为 0.88, Lin 等<sup>[37]</sup>对中国地区的研究也得到了相似的结论。

## 1 研究数据与方法

### 1.1 OMI 数据及预处理

本研究使用的是荷兰皇家气象研究所(KNMI)在网站 <http://www.temis.nl> 提供的对流层  $\text{NO}_2$  垂直柱浓度产品数据(DOMINO version 2.0),空间分辨率为  $0.125^\circ \times 0.125^\circ$ 。该产品对流层  $\text{NO}_2$  柱浓度反演算法为:首先利用 DOAS 算法通过对 405~465 nm 的波段区间进行非线性最小二乘拟合得到整层倾斜柱总量;之后利用全球化学传输模型 TM4 获取平流层  $\text{NO}_2$  倾斜柱总量,两者相减得到对流层倾斜柱总量;通过 TM4 对实际大气廓线进行计算模拟获得大气质量因子(AMF,需修正几何角度及云、气溶胶等光线散射干扰对其的影响);最终利用大气质量因子将对流层倾斜柱总量转换为垂直柱总量。云是遥感数据的重要误差来源,臭氧监测仪最终产品数据的 30%不确定性是由云量导致的,因此需要剔除云量大于 20%,表面反照率大于 0.3,对流层大气质量因子大气质量因子小于 0.1,以及所有出现“行异常”的观测象元数据,为减小数据噪声带来的不确定性,本研究采用月平均数据进行分析研究<sup>[6]</sup>。

臭氧监测仪数据反演技术及地面验证工作经过国外学者大量研究论证,已臻成熟,偏差较小,适用于区域空气质量的分析研究<sup>[33]</sup>。DOMINO version 2.0 产品相对原有 1.0 版本更新了反照率数据库,改进了大气质量因子、地表高度以及 TM4 的算法<sup>[34]</sup>,使用该数据产品,Zyrichidou 等<sup>[35]</sup>对欧洲东南部 NO<sub>2</sub> 柱浓度进行了验证分析,Lin 等<sup>[2]</sup>对中国东部地区 NO<sub>2</sub> 不同来源(人为、土壤、闪电)的排放量进行了估算。Irie 等<sup>[36]</sup>利用中国蟒山、泰安及如东 3 处地面 MAX-DOAS 监测站 2006–2011 年的观测数据对 DOMINO version 2.0 进行验证。结果表明,相对地面观测数据 DOMINO 产品数据偏差仅(−10±14)%,相关系数为 0.88,Lin 等<sup>[37]</sup>对中国地区的研究也得到了相似的结论。

## 1.2 研究方法

将长三角地区分为 4 个区域,从北至南依次为苏北 8 市(徐州、连云港、宿迁、淮安、盐城、扬州、泰州、南通),苏南 6 市(南京、镇江、常州、无锡、苏州、上海),浙东北 6 市(湖州、嘉兴、绍兴、杭州、宁波、舟山)和浙西南 5 市(衢州、金华、台州、丽水、温州),对其 2005–2013 年间对流层二氧化氮(TroNO<sub>2</sub>)柱浓度的年际和季节变化进行分析。

以 2005–2013 年长三角地区二氧化氮柱浓度为因变量,以人为排放因子(包括国内生产总值、用电量和机动车保有量)和气候因子(包括风速、降水量、温度和气压)为自变量进行线性回归,结合通径分析,定量剖析研究区人为影响和气候影响对二氧化氮柱浓度的贡献程度。其中,国内生产总值、用电量和机动车保有量通过 2005–2013 年 2 省 1 市统计年鉴获得,气象数据来源于中国气象科学数据共享服务网(<http://cdc.cma.gov.cn/>),选用研究区 56 个气象站点数据,包括年平均风速、平均风速、平均温度和平均气压等 4 项指标。

为进一步研究 9 a 间长三角地区二氧化氮柱浓度随时间变化的幅度,以及这些变化在空间分布上的差异,将研究区内每个栅格像元的年平均二氧化氮柱浓度值与年份进行回归分析,分析年际尺度上的变化趋势,显著性采用  $F$  检验<sup>[38]</sup>。根据各像元二氧化氮柱浓度变化趋势和显著性水平,分为 3 类:显著增加( $R>0$ ,  $P\leq 0.05$ ),显著减少( $R<0$ ,  $P\leq 0.05$ )和变化不显著( $P>0.05$ ),该过程采用 IDL 编程实现。

## 2 结果与分析

### 2.1 长三角地区对流层二氧化氮的分布

2005–2013 年间长三角地区二氧化氮柱浓度平均值为  $9.72\times 10^{15}$  molec·cm<sup>−2</sup>,年均复合增长率为 2.10%,年增长值为  $0.26\times 10^{15}$  molec·cm<sup>−2</sup>。如图 1 所示,二氧化氮柱浓度空间分布的地域差异表现为,苏南( $17.27\times 10^{15}$  molec·cm<sup>−2</sup>)>苏北( $10.87\times 10^{15}$  molec·cm<sup>−2</sup>)>浙东北( $9.95\times 10^{15}$  molec·cm<sup>−2</sup>)>浙西南( $3.72\times 10^{15}$  molec·cm<sup>−2</sup>)。苏南地区二氧化氮柱浓度是浙西南地区的 4.60 倍。总体来看,苏南地区,扬州、泰州和南通的南部以及浙江杭嘉湖、宁绍平原地区为长三角高二氧化氮柱浓度分布区域。

### 2.2 对流层二氧化氮的年际变化分析

如图 2 所示:尽管 9 年间 4 个区域的二氧化氮柱浓度表现出不同的变化幅度,但相同的是在 2005–2011 年间基本均呈线性增长,并在 2011 年达到峰值,而后在 2012 年出现明显降低,就降低程度来看,2011–2012 年间整个长三角地区减少了 15.39%,其中浙西南地区最为突出,减少 22.44%,浙东北其次,为 18.78%,苏南减少 16.95%,苏北减少 10.00%。如表 1 所示:根据模型拟合情况,9 a 间长三角地区二氧化氮柱浓度变化状况可以分为 2005–2011 年增长阶段和 2011–2013 年降低阶段来分析。总体来看,2005–2011 年长三角地区二氧化氮柱浓度年增长值为  $0.48\times 10^{15}$  molec·cm<sup>−2</sup>,年均复合增长率

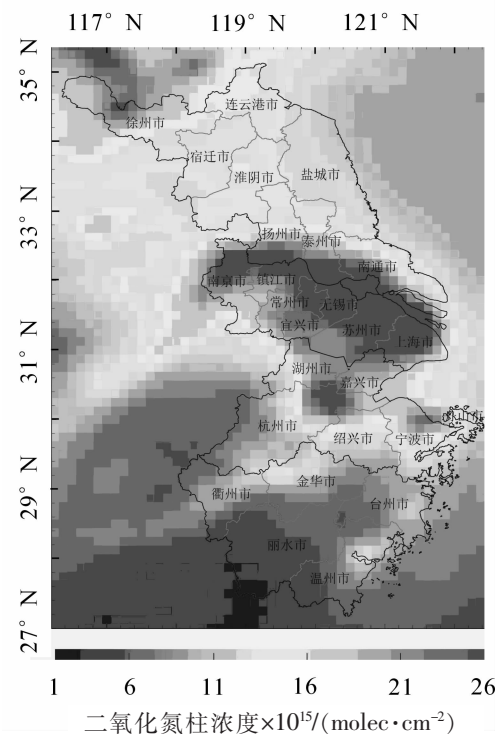


图 1 2005–2013 年长三角地区二氧化氮柱浓度空间分布图

Figure 1 Spatial distribution of TroNO<sub>2</sub> column density from 2005 to 2013 over the Yangtze River Delta region



为 5.26%，2011–2013 年减少值为  $0.77 \times 10^{15} \text{ molec} \cdot \text{cm}^{-2}$ ，年均复合增长率为 -6.82%。

就二氧化氮柱浓度年增长值来看，2005–2011 年间，苏南和苏北地区均高于长三角平均水平，分别为  $0.71 \times 10^{15} \text{ molec} \cdot \text{cm}^{-2}$  和  $0.62 \times 10^{15} \text{ molec} \cdot \text{cm}^{-2}$ 。这主要缘于平原地区较高的人口密度和较好的工业发展基础；而就在此期间二氧化氮柱浓度年均复合增长率来看，浙西南 (6.02%)，苏北 (5.60%) 和浙东北 (5.34%) 地区均高于长三角平均水平，这可归因于受苏南经济产业核心区带动，周边辐射区表现出相对强劲的经济增长态势所致。

2008 年美国次贷危机引起全球性金融危机，中国政府于同年 11 月推出 4 万亿元投资计划以及一系列扩大内需的刺激措施来应对此次危机。之后随着欧洲主权债务危机进一步加深，国际经济持续低迷，国内经济内需不足，实体经济经营环境逐渐恶化，导致 2011 年后中国经济发展进入换挡减速阶段 (中国 2011 年国内生产总值增长 9.3%，2012 年增长 7.8%，2013 年增长 7.7%)。长三角地区作为外向型经济的代表，二氧化氮柱浓度变化趋势与国内经济发展状况十分契合。由于受苏南和上海市产业转移影响，苏北主要经济指标的增幅已连续 7 a 高于苏南，因此，苏北地区二氧化氮柱浓度在 2011–2013 年间并未发生明显降低。

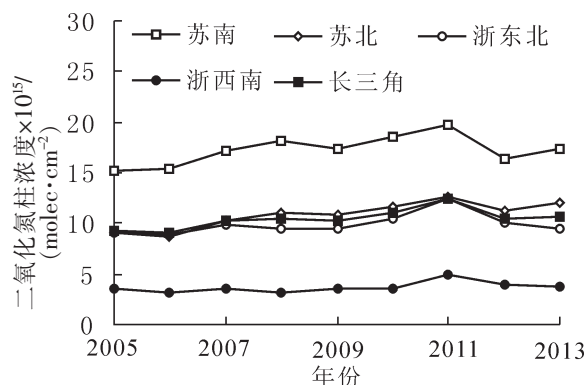


图 2 2005–2013 年长三角地区二氧化氮柱浓度年际变化

Figure 2 Interannual variability TroNO<sub>2</sub> column density from 2005 to 2013 in Yangtze River Delta

表 1 2005–2013 年不同时间段二氧化氮柱浓度线性拟合比较

Table 1 Different time periods in 2005–2013 TroNO<sub>2</sub> column density linear fitting

地区	2005–2011 年		2005–2013 年		2011–2013 年	
	$y = Ax + B$	$R^2$	$y = Ax + B$	$R^2$	$y = Ax + B$	$R^2$
苏南	$y = 0.71x + 14.61$	0.851	$y = 0.27x + 15.890$	0.271	$y = -1.19x + 20.18$	0.478
苏北	$y = 0.62x + 8.17$	0.915	$y = 0.42x + 8.777$	0.773	$y = -0.27x + 12.530$	0.177
浙东北	$y = 0.46x + 8.16$	0.642	$y = 0.20x + 8.961$	0.243	$y = -1.48x + 13.680$	0.896
浙西南	$y = 0.19x + 2.94$	0.422	$y = 0.11x + 3.183$	0.294	$y = -0.60x + 5.451$	0.795
长三角	$y = 0.48x + 7.74$	0.864	$y = 0.26x + 8.409$	0.543	$y = -0.77x + 12.05$	0.626

### 2.3 对流层二氧化氮的季节变化分析

如图 3 所示：除 2011 年以外，9 a 间长三角地区二氧化氮柱浓度基本呈现冬季 (12 月–翌年 2 月， $15.49 \times 10^{15} \text{ molec} \cdot \text{cm}^{-2}$ ) > 秋季 (9–11 月， $9.82 \times 10^{15} \text{ molec} \cdot \text{cm}^{-2}$ ) > 春季 (3–5 月， $8.61 \times 10^{15} \text{ molec} \cdot \text{cm}^{-2}$ ) > 夏季 (6–8 月， $4.96 \times 10^{15} \text{ molec} \cdot \text{cm}^{-2}$ ) 的趋势，秋季略高于春季，约为 1.14 倍，而冬季是夏季的 3.12 倍，4 个地区各自也基本呈现相同的趋势。中国季风气候的特征表现为温暖与湿润同期，寒冷与干旱同期。经气象数据统计，2011 年长三角地区春季气候相对异常，平均气温  $14.2^\circ\text{C}$ ，其余 8 a 平均气温为  $15.8^\circ\text{C}$ ，平均降水量为 145.4 mm，其余 8 a 平均降水量 311.8 mm，由此造成的低温干旱气候大大增加了大气中污染物浓度。该年份春季二氧化氮柱浓度 ( $11.69 \times 10^{15} \text{ molec} \cdot \text{cm}^{-2}$ ) 明显高于其余 8 年平均水平 ( $8.22 \times 10^{15} \text{ molec} \cdot \text{cm}^{-2}$ )。

大量研究已表明：受人类活动排放影响，二氧化氮柱浓度基本呈现夏季低、冬季高的季节变化特征。大气中 NO<sub>x</sub> 浓度季节变化的影响因素众多，包括排放强度的变化、大气中 NO<sub>x</sub> 的生命周期、大气环流、降水、地形以及风向等等<sup>[39]</sup>。例如，氢氧自由基是大气 NO<sub>x</sub> 化学清除作用的主体，受太阳辐射变化影响，夏季白天氢氧自由基最高浓度一般是冬季最高浓度的 3.00–5.00 倍，因此夏季大气 PM 2.5 中硝酸盐浓度明显高于冬季<sup>[40]</sup>；另外，受季风气候影响，天气要素如边界层气压和降水等与区域大气污染亦有明显关系。研究表明：边界层反气旋系统对污染物有明显积累作用，锋区清除系统和降水系统是造成区域污染物浓度下降的主要气象影响要素。

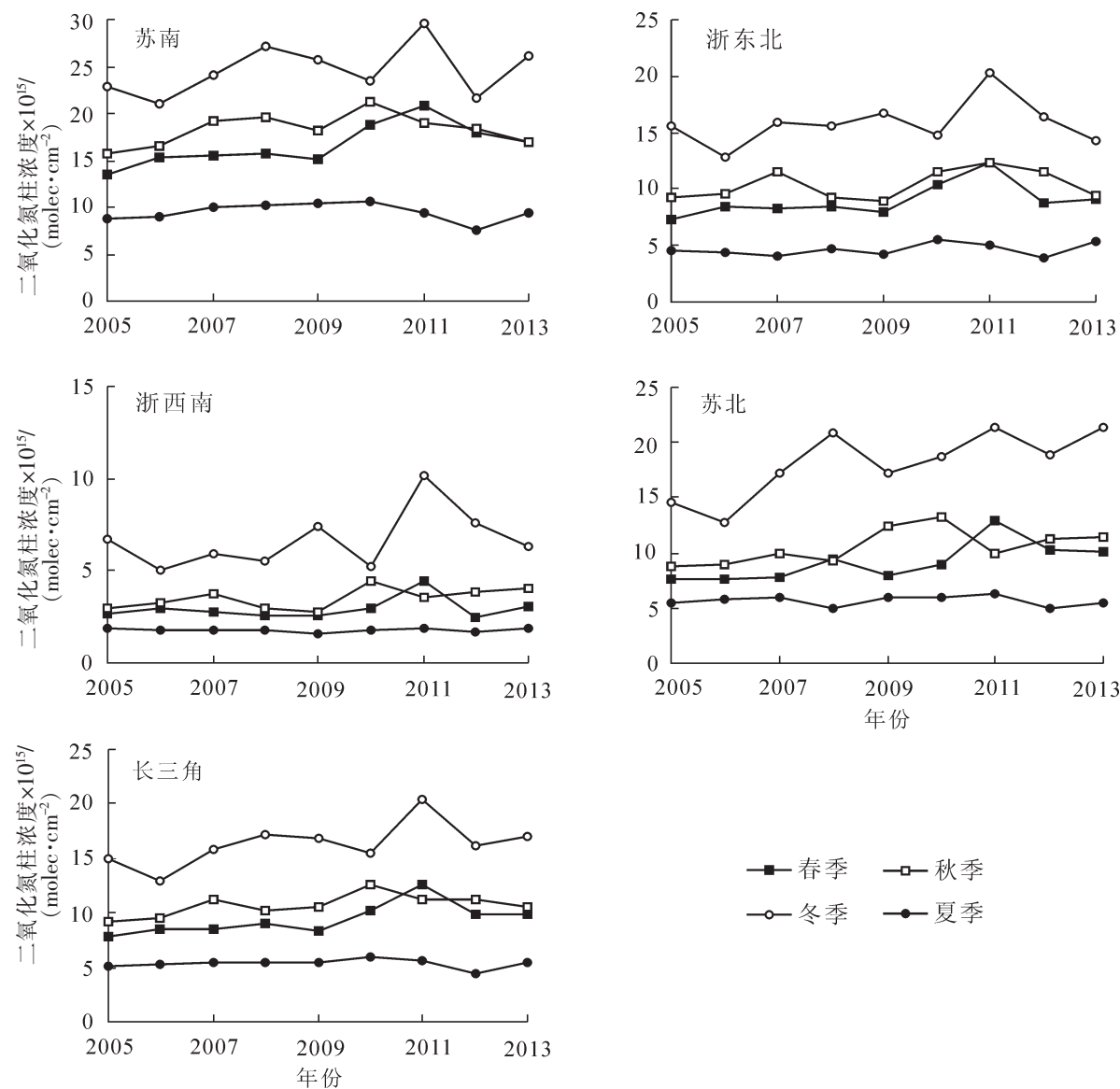


图 3 2005–2013 年长三角地区二氧化氮柱浓度季节变化  
Figure 3 Seasonal change of TroNO<sub>2</sub> from 2005 to 2013 in the Yangtze River Delta

2.4 对流层二氧化氮的影响因子分析

如表 2 所示：二氧化氮柱浓度与国内生产总值、用电量和机动车保有量均呈显著正相关，与降水量、温度和风速呈负相关，与气压成正相关，但均未达到双尾检验显著性水平。总体来看，这与前文影

表 2 2005–2013 年长三角地区二氧化氮柱浓度及各影响因子相关系数矩阵

Table 2 TroNO <sub>2</sub> column density from 2005 to 2013 in the Yangtze River Delta and the impact factor correlation coefficient matrix								
因子	GDP	用电量	机动车保有量	降水量	温度	风速	气压	时间序列
二氧化氮柱浓度	0.743*	0.758*	0.774*	−0.320	−0.574	−0.588	0.308	0.737*
国内生产总值		0.997**	0.964**	0.000	−0.594	−0.504	−0.331	0.995**
用电量			0.966**	0.012	−0.549	−0.549	−0.329	0.996**
机动车保有量				0.044	−0.550	−0.608	−0.304	0.979**
降水量					0.088	−0.007	−0.346	0.043
温度						−0.098	−0.250	−0.565
风速							0.120	−0.540
气压								−0.348

说明：\*\*0.01 水平上极显著相关，\*0.05 水平上显著相关。

响因子分析结果是相符的。就各因子之间的相关性来看, 9 a 间 3 个人为活动指示因子之间呈极显著正相关, 且相关系数均在 0.900 以上, 而 4 个气候因子之间均未表现出明显相关性。

采用逐步回归算法对自变量进行筛选, 最终确定年用电量作为人为活动影响因子( $x_1$ ), 气压作为气候影响因子( $x_2$ )与二氧化氮柱浓度进行多元线性拟合, 决定系数  $R^2$  为 0.895。模型参数如表 3 所示,  $x_1$  和  $x_2$  的偏回归系数显著性均小于 0.05, 具有统计学意义, 通径系数(标准回归系数)表明: 人为影响因子对二氧化氮柱浓度直接作用程度约为气候影响因子的 1.50 倍。目前, 人类活动所释放的温室气候和对流层气溶胶除了导致全球变暖外, 还可直接影响海平面气压的变化<sup>[41]</sup>, 进而影响高压对中国大陆地区的控制情况, 导致污染物在边界层以及对流层中的积累、输送、汇聚和清除过程出现变化<sup>[42]</sup>。由此可知: 长三角地区 2005–2013 年间二氧化氮柱浓度水平受人为活动和气候的共同作用(2011 年春季就是一个典型例子)影响, 但就直接作用程度来看, 以人为活动排放为主导。

表 3 回归模型参数检验

Table 3 Regression model parameter test

	偏回归系数	标准误差	标准回归系数	<i>t</i> 值	显著水平
截距	-1 112.218	217.078		-5.124	0.002
$x_1$	0.001	0.000	0.963	7.955	0.000
$x_2$	1.104	0.214	0.624	5.154	0.002

## 2.5 对流层 NO<sub>2</sub> 的年际空间变化

自 2011 年开始长三角地区二氧化氮柱浓度出现逐年下降趋势, 由此对年际时间序列线性回归结果造成一定影响。为深入剖析不同时间段二氧化氮空间变化趋势特征, 本研究分别选择 2005–2011 年、2005–2012 年和 2005–2013 年 3 个时间段进行拟合, 结果如图 4 所示。

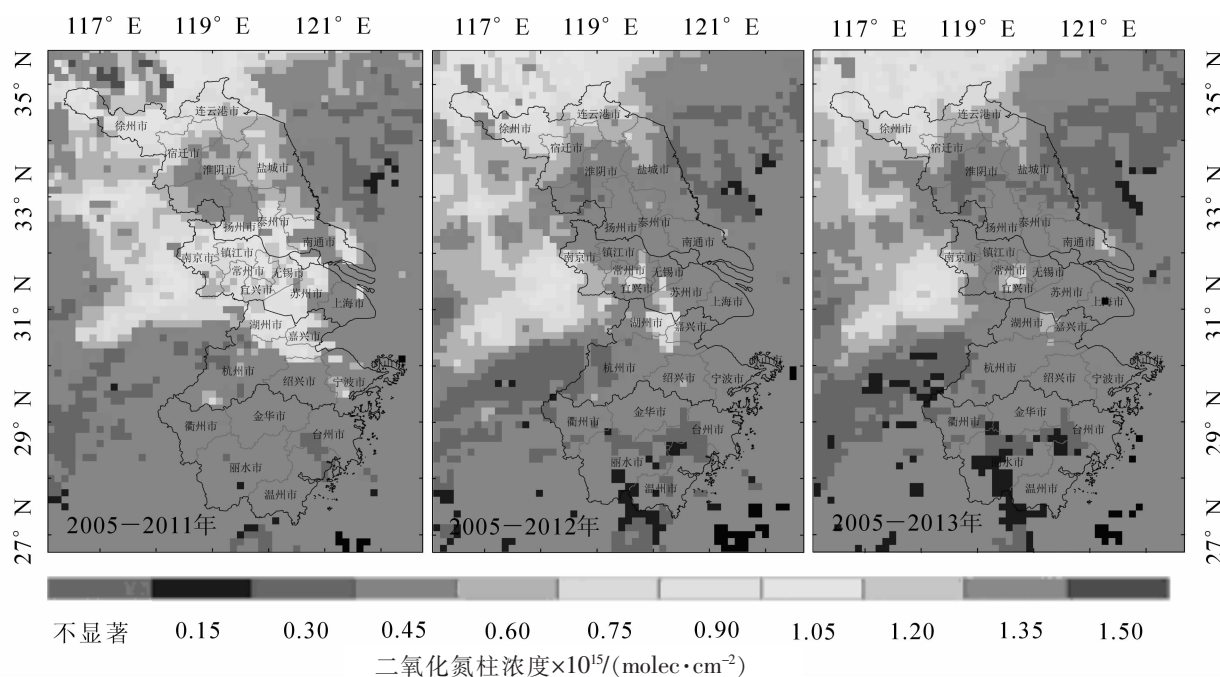


图 4 不同时间段长三角地区二氧化氮柱浓度空间变化

Figure 4 Space change of TroNO<sub>2</sub> column density in the Yangtze River Delta in different time

总体来看, 长三角地区 3 个时间段二氧化氮柱浓度均未出现显著降低区域, 其中, 2005–2011 年有 56.26% 的地区出现了显著增长, 主要集中在苏南、苏北的大部分地区以及浙江杭嘉湖地区; 2005–2012 年二氧化氮柱浓度显著增长的地区下降至 41.33%, 主要集中在淮阴、盐城以北, 苏南西部, 浙东北的北部和西部以及浙西南台州、丽水小部分地区; 2005–2013 年显著增长地区占 38.78%, 依然集中在淮阴、盐城以北, 苏南西部以及浙西南中部地区。由此, 可以清楚地看到: 9 a 间苏北和浙西南中部地区

二氧化氮柱浓度一直呈持续增长势态, 而苏南和浙东北地区正趋于平稳。毫无疑问, 期间受生产成本及政策压力, 长江三角洲核心区域的经济产业结构调整, 以及大量工业项目的北迁和南移是背后的主要驱动力。

为解决苏北发展滞后问题, 江苏省近 10 a 来加大了实施“区域共同发展战略”的力度, 提出要举全省之力支持苏北加快发展, 其中, 加快推进工业化是苏北振兴的重要方略。2012 年苏北地区新开工 500.00 万元以上产业转移项目 2 107 个, 总投资 2 549.40 亿元, 实际引资额 1 471.10 亿元, 同比分别增长 20.7% 和 22.4%; 2013 年新开工 500.00 万元以上产业转移项目 2 080 个, 项目总投资 2 920.60 亿元, 实际引资额 1 758.10 亿元, 同比分别增长 14.6% 和 19.5%。而作为浙江省欠发达地区的丽水市近年来也有较大发展举措, 2012 年该市完成全部工业产值 1 921.93 亿元, 增长 16.3%, 其中规模以上工业产值 1 533.76 亿元, 增长 16.6%, 增幅位居全省第 1 位, 2013 年该市实现地区生产总值 983.08 亿元, 比上年增长 9.2%, 增速列全省第 2 位。

### 3 结论

本研究利用 9 a (2005–2013 年) 臭氧监测仪传感器 DOMINO version 2.0 产品数据, 对长江三角洲对流层二氧化氮柱浓度的时空分布变化特征展开分析, 得到以下结论: ①2005–2013 年间长三角地区二氧化氮柱浓度平均值为  $9.72 \times 10^{15} \text{ molec} \cdot \text{cm}^{-2}$ , 年均复合增长率为 2.10%, 年增长值为  $0.26 \times 10^{15} \text{ molec} \cdot \text{cm}^{-2}$ 。二氧化氮柱浓度空间分布的地域差异表现为苏南 > 苏北 > 浙东北 > 浙西南。长三角地区作为外向型经济的代表, 二氧化氮柱浓度变化趋势与国内经济发展状况十分契合。②9 a 间长三角地区二氧化氮柱浓度基本呈现冬季 > 秋季 > 春季 > 夏季的趋势, 其中秋季略高于春季, 约为 1.14 倍, 冬季是夏季的 3.12 倍, 异常的低温干旱气候会使二氧化氮柱浓度明显提升。研究区二氧化氮柱浓度水平受人为活动和气候的共同作用影响, 但就直接作用程度来看, 以人为活动排放为主导。③9 a 间苏北和浙西南中部地区二氧化氮柱浓度一直呈持续增长势态, 而苏南和浙东北地区正趋于平稳, 受生产成本及政策压力, 长三角核心区域的经济产业结构调整, 以及大量工业项目的北迁和南移是背后的主要驱动力, 但由此对欠发达地区造成的大气氮沉降污染情况也是不容忽视的。

随着工业化特别是重化工工业以及城市化的快速发展, 自然资源供应紧张和环境污染问题将逐步显现, 尤其是极易被忽视的大气氮沉降污染。2005–2011 年间太湖地区二氧化氮柱浓度年增长值高达  $0.88 \times 10^{15} \text{ molec} \cdot \text{cm}^{-2}$ , 大气湿沉降中氮营养盐对太湖富营养化的贡献及其带来的水生态系统的影响是不容忽视<sup>[43]</sup>。另外, 以临安为代表的杭州西南部山区, 虽然本地人为源排放较低, 但该区盛行东北风, 加之受地形条件影响, 不利于大气污染物的扩散稀释, 导致来自长三角核心区的大气污染物不断积聚 (2005–2012 年间二氧化氮柱浓度呈显著增加趋势), 成为重度酸雨区。目前, 环境危机正在越来越严重地制约着长三角地区的经济发展, 不断增长的国内生产总值如果是建立在资源环境和公众健康不断透支的基础之上的, 那将是野蛮的和不可持续的。2005–2013 年, 就国内生产总值平均发展水平来看, 最高的上海市 (15 313.00 亿元) 是最低的舟山市 (580.00 亿元) 的 26.40 倍, 而就二氧化氮平均柱浓度来看, 最高的苏州市 ( $18.83 \times 10^{15} \text{ molec} \cdot \text{cm}^{-2}$ ) 是最低的丽水市 ( $2.12 \times 10^{15} \text{ molec} \cdot \text{cm}^{-2}$ ) 的 8.88 倍, 9 a 间经济发展的空间差异性远高于二氧化氮柱浓度的空间差异性, 因此, 各城市经济发展的环境成本存在较大差异。中国经济高速发展了 30 多年, 其成就举世瞩目, 如今日益高昂的环境成本使传统粗放的经济增长方式难以为继, 日益严峻的环境问题, 已经对部分地区公众的日常生活产生威胁, 这迫切需要各级政府把环境保护放在首位, 坚持走可持续发展之路。

### 4 参考文献

- [1] ALLEY R, BEMTSEN T, BINDOFF N L, et al. *Climate Change 2007: The Physical Science Basis Summary for Policymakers Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change* [M]. Cambridge: Cambridge University Press, 2007.
- [2] LIN J J. Satellite constraint for emissions of nitrogen oxides from anthropogenic, lightning and soil sources over East China on a high-resolution grid [J]. *Atmos Chem Phys*, 2012, 12(6): 2881 – 2898.



- [3] 曹国良, 张小曳, 龚山陵, 等. 中国区域主要颗粒物及污染气体的排放源清单[J]. 科学通报, 2011, **56**(3): 261 – 268.  
CAO Guoliang, ZHANG Xiaoye, GONG Shanling, *et al.* Emission inventories of primary particles and pollutant gases for China [J]. *Chin Sci Bull*, 2011, **56**(3): 261 – 268.
- [4] 李林, 郝吉明, 胡京南. 北京市能源利用对空气质量的影响分析和预测[J]. 中国环境科学, 2005, **25**(6): 746 – 750.  
LI Lin, HAO Jiming, HU Jingnan. Analysis and prediction of air quality influence from energy utilization in Beijing [J]. *China Environ Sci*, 2005, **25**(6): 746 – 750.
- [5] SCHAUB D, BRUNNER D, BOERSMA K F, *et al.* SCIAMACHY tropospheric NO<sub>2</sub> over Switzerland: estimates of NO<sub>x</sub> lifetimes and impact of the complex Alpine topography on the retrieval [J]. *Atmos Chem Phys*, 2007, **7**(23): 5971 – 5987.
- [6] 丁宇宇, 彭丽, 冉靓, 等. 利用 OMI 卫星资料计算 NO<sub>2</sub> 地面浓度的方法研究[J]. 北京大学学报: 自然科学版, 2011, **47**(4): 671 – 676.  
DING Yuyu, PENG Li, RAN Jing, *et al.* A method of inferring ground level NO<sub>2</sub> using satellite-borne OMI observations [J]. *Acta Sci Nat Univ Pekin*, 2011, **47**(4): 671 – 676.
- [7] 范洋, 樊曙先, 张红亮, 等. 临安冬夏季 SO<sub>2</sub>, NO<sub>2</sub> 和 O<sub>3</sub> 体积分数特征及与气象条件的关系[J]. 大气科学学报, 2013, **36**(1): 121 – 128.  
FAN Yang, FAN Shuxian, ZHANG Hongliang, *et al.* Characteristics of SO<sub>2</sub>, NO<sub>2</sub>, O<sub>3</sub> volume fractions and their relationship with weather conditions at Linan in summer and winter [J]. *Trans Atmos Sci*, 2013, **36**(1): 121 – 128.
- [8] PETRITOLI A, BONASONI P, GIOVANELLI G, *et al.* First comparison between ground-based and satellite-borne measurements of tropospheric nitrogen dioxide in the Po basin [J]. *J Geophys Res Atmos*, 2004, **109**(D15). doi: 10.1029/2004JD004547.
- [9] 王杨, 谢品华, 李昂, 等. 直射太阳光差分吸收光谱法测量合肥 NO<sub>2</sub> 整层柱浓度[J]. 物理学报, 2012, **61**(11): 297 – 305.  
WANG Yang, XIE Pinhua, LI Ang, *et al.* Measurement of NO<sub>2</sub> total vertical columns by direct-sun differential optical absorption spectroscopy in Hefei City [J]. *Acta Phys Sin*, 2012, **61**(11): 297 – 305.
- [10] 徐晋, 谢品华, 司福祺, 等. 机载多轴差分吸收光谱技术获取对流层 NO<sub>2</sub> 垂直柱浓度的研究[J]. 物理学报, 2012, **61**(2): 282 – 288.  
XU Jin, XIE Pinhua, SI Fuqi, *et al.* Determination of tropospheric NO<sub>2</sub> by airborne multi axis differential optical absorption spectroscopy [J]. *Acta Phys Sin*, 2012, **61**(2): 282 – 288.
- [11] 李先欣, 刘文清, 司福祺, 等. 广州亚运期间对流层 NO<sub>2</sub> 和 SO<sub>2</sub> 地基多轴差分吸收光谱仪测量研究[J]. 大气与环境光学学报, 2012, **7**(1): 18 – 23.  
LI Xianxin, LIU Wenqing, SI Fuqi, *et al.* Tropospheric NO<sub>2</sub> and SO<sub>2</sub> monitoring research by MAX-DOAS during the Sixteenth Asian Games [J]. *J Atmos Environ Opt*, 2012, **7**(1): 18 – 23.
- [12] 罗宇涵, 孙立广, 刘文清, 等. 采用 MAX-DOAS 观测北极新奥尔松地区夏季 NO<sub>2</sub> 的柱浓度与垂直分布[J]. 光谱学与光谱分析, 2012, **32**(9): 2336 – 2340.  
LUO Yuhan, SUN Liguang, LIU Wenqing, *et al.* MAX-DOAS measurements of NO<sub>2</sub> column densities and vertical distribution at Ny-Ålesund, arctic during summer [J]. *Spectrosc Spectral Anal*, 2012, **32**(9): 2336 – 2340.
- [13] 徐晋, 谢品华, 司福祺, 等. 奥运期间北京对流层 NO<sub>2</sub> 柱浓度地基多轴差分吸收光谱仪观测与 OMI 的对比[J]. 大气与环境光学学报, 2009, **4**(5): 347 – 355.  
XU Jin, XIE Pinhua, SI Fuqi, *et al.* Comparison of OMI and ground-based MAX-DOAS measurements of tropospheric nitrogen dioxide in Beijing during the Olympic Games [J]. *J Atmo Environ Opt*, 2009, **4**(5): 347 – 355.
- [14] BURROWS J P, BORRELL P, PLATT U. *The Remote Sensing of Tropospheric Composition from Space* [M]. Heidelberg: Springer, 2011.
- [15] ZHOU Yipin, BRUNNER D, HUEGLIN C, *et al.* Changes in OMI tropospheric NO<sub>2</sub> columns over Europe from 2004 to 2009 and the influence of meteorological variability [J]. *Atmos Environ*, 2012, **46**: 482 – 495.
- [16] LAMSAL L N, MARTIN R V, van DONKELAAR A, *et al.* Indirect validation of tropospheric nitrogen dioxide retrieved from the OMI satellite instrument: insight into the seasonal variation of nitrogen oxides at northern midlati-



- tudes [J]. *J Geophys Res*, 2010, **115**(D5). doi: 10.1029/2009JD013351.
- [17] 尉鹏, 任阵海, 苏福庆, 等. 中国 NO<sub>2</sub> 的季节分布及成因分析[J]. 环境科学研究, 2011, **24**(2): 155 – 161.  
WEI Peng, REN Zhenhai, SU Fuqing, *et al.* Seasonal distribution and cause analysis of NO<sub>2</sub> in China [J]. *Res Environ Sci*, **24**(2): 155 – 161.
- [18] BOERSMA K F, JACOB D J, TRAINIC M, *et al.* Validation of urban NO<sub>2</sub> concentrations and their diurnal and seasonal variations observed from the SCIAMACHY and OMI sensors using in situ surface measurements in Israeli cities [J]. *Atmos Chem Phys*, 2009, **9**(12): 3867 – 3879.
- [19] WANG Siwen, ZHANG Qiang, STREETS D G, *et al.* Growth in NO<sub>x</sub> emissions from power plants in China: bottom-up estimates and satellite observations [J]. *Atmos Chem Phys*, 2012, **12**(10): 4429 – 4447.
- [20] LAMSAL L N, MARTIN R V, PADMANABHAN A, *et al.* Application of satellite observations for timely updates to global anthropogenic NO<sub>x</sub> emission inventories [J]. *Geophys Res Lett*, 2011, **38**(5): L05810. doi: 10.1029/2010GL046476.
- [21] ZHANG Q, STREETS D G, HE K, *et al.* NO<sub>x</sub> emission trends for China, 1995–2004: The view from the ground and the view from space [J]. *J Geophys Res*, 2007, **112**(D22): D22306. doi: 10.1029/2007JD008684.
- [22] BEIRLE S, BOERSMA K F, PLATT U, *et al.* Megacity emissions and lifetimes of nitrogen oxides probed from space [J]. *Science*, 2011, **333**(6050): 1737 – 1739.
- [23] BOERSMA K F, ESKES H J, MEIJER E W, *et al.* Estimates of lightning NO<sub>x</sub> production from GOME satellite observations [J]. *Atmos Chem Phys*, 2005, **5**(5): 2311 – 2331.
- [24] LEE C J, BROOK J R, EVANS G J, *et al.* Novel application of satellite and in-situ measurements to map surface-level NO<sub>2</sub> in the Great Lakes region [J]. *Atmos Chem Phys Discuss*, 2011, **11**(6): 11761 – 11775.
- [25] GHUDE S D, KULKARNI S H, JENA C, *et al.* Application of satellite observations for identifying regions of dominant sources of nitrogen oxides over the Indian Subcontinent [J]. *J Geophys Res Atmos*, 2013, **118**(2): 1075 – 1089.
- [26] RICHTER A, BURROWS J P, NÜSS H, *et al.* Increase in tropospheric nitrogen dioxide over China observed from space [J]. *Nature*, 2005, **437**(7055): 129 – 132.
- [27] van DER A R J, ESKES H J, BOERSMA K F, *et al.* Trends, seasonal variability and dominant NO<sub>x</sub> source derived from a ten year record of NO<sub>2</sub> measured from space [J]. *J Geophys Res Atmos*, 2008, **113**(D4). doi: 10.1029/2007JD009021.
- [28] 张兴赢, 张鹏, 张艳, 等. 近 10 a 中国对流层 NO<sub>2</sub> 的变化趋势、时空分布特征及其来源解析[J]. 中国科学 D 辑: 地球科学, 2007, **37**(10): 1409 – 1416.  
ZHANG Xingying, ZHANG Peng, ZHANG Yan, *et al.* The troposphere in recent 10 years in China the change trend of NO<sub>2</sub> parsing, the characteristic of time and space distribution and source [J]. *Sci China Sert D*, 2007, **37**(10): 1409 – 1416.
- [29] HE Yongjiang, UNO I, WANG Zifa, *et al.* Variations of the increasing trend of tropospheric NO<sub>2</sub> over central east China during the past decade [J]. *Atmos Environ*, 2007, **41**(23): 4865 – 4876.
- [30] 肖钟湧, 江洪, 程苗苗. 利用 OMI 遥感数据研究中国区域大气 NO<sub>2</sub>[J]. 环境科学学报, 2011, **31**(10): 2080 – 2090.  
XIAO Zhongyong, JIANG Hong, CHENG Miaomiao. Characteristics of atmospheric NO<sub>2</sub> over China using OMI remote sensing data [J]. *Acta Sci Circumst*, 2011, **31**(10): 2080 – 2090.
- [31] ITAHASHI S, UNO I, IRIE H, *et al.* Trend analysis of tropospheric NO<sub>2</sub> column density over East Asia during 2000–2010: multi-satellite observations and model simulations with the updated REAS emission inventory [J]. *Atmos Chem Phys Discuss*, 2013, **13**(4): 11247 – 11268.
- [32] HILBOLL A, RICHTER A, BURROWS J P. Long-term changes of tropospheric NO<sub>2</sub> over megacities derived from multiple satellite instruments [J]. *Atmos Chem Phys Discuss*, 2013, **13**(8): 4145 – 4169.
- [33] BECHLE M J, MILLET D B, MARSHALL J D. Remote sensing of exposure to NO<sub>2</sub>: satellite versus ground-based measurement in a large urban area [J]. *Atmos Environ*, 2013, **69**: 345 – 353.
- [34] BOERSMA K F, ESKES H J, DIRKSEN R J, *et al.* An improved tropospheric NO<sub>2</sub> column retrieval algorithm for the Ozone Monitoring Instrument [J]. *Atmos Measur Techn Discuss*, 2011, **4**(9): 1905 – 1928.
- [35] ZYRICHIDOU I, KOUKOULI M, BALIS D, *et al.* Evaluation of high resolution simulated and OMI retrieved tropo-

- spheric NO<sub>2</sub> column densities over Southeastern Europe [J]. *Atmos Res*, 2013, **122**: 55 – 66.
- [36] IRIE H, BOERSMA K F, KANAYA Y, *et al.* Quantitative bias estimates for tropospheric NO<sub>2</sub> columns retrieved from SCIAMACHY, OMI, and GOME-2 using a common standard for East Asia [J]. *Atmos Measur Techn Discuss*, 2012, **5** (10): 2403 – 2411.
- [37] LIN J T, MARTIN R V, BOERSMA K F, *et al.* Retrieving tropospheric nitrogen dioxide over China from the Ozone Monitoring Instrument: effects of aerosols, surface reflectance anisotropy, and vertical profile of nitrogen dioxide [J]. *Atmos Chem Phys Discuss*, 2014, **14**(3): 1441 – 1461.
- [38] 高大伟, 张小伟, 蔡菊珍, 等. 浙江省植被覆盖时空动态及其与生态气候指标的关系[J]. 应用生态学报, 2010, **21**(6): 1518 – 1522.
- GAO Dawei, ZHANG Xiaowei, CAI Juzhen, *et al.* Spatiotemporal variations of vegetation cover in Zhejiang Province and their relations to eco-climatic indices [J]. *Chin J Appl Ecol*, 2010, **21**(6): 1518 – 1522.
- [39] 田贺忠, 王艳, 赵丹, 等. 中国太行山东麓 NO<sub>x</sub> 重污染成因分析[J]. 科学通报, 2011, **56**(18): 1464 – 1469.
- TIAN Hezhong, WANG Yan, ZHAO Dan, *et al.* Formation and causes of NO<sub>x</sub> pollution on the east side of the Taihang Mountains in China [J]. *Chin Sci Bull*, 2011, **56**(18): 1464 – 1469.
- [40] 李令军, 王英. 基于卫星遥感与地面监测分析北京大气 NO<sub>2</sub> 污染特征[J]. 环境科学学报, 2011, **31**(12): 2762 – 2768.
- LI Lingjun, WANG Ying. The characterization of NO<sub>2</sub> pollution in Beijing based on satellite and conventional observation data [J]. *Acta Sci Circumst*, 2011, **31**(12): 2762 – 2768.
- [41] GILLET N P, ZWIERS F W, WEAVER A J, *et al.* Detection of human influence on sea-level pressure [J]. *Nature*. 2003, **422**(6929): 292 – 294.
- [42] 尉鹏, 王文杰, 吴昊, 等. 基于卫星遥感的中国 NO<sub>2</sub> 月际演变及污染源分析[J]. 环境工程技术学报, 2013, **3** (4): 331 – 336.
- WEI Peng, WANG Wenjie, WU Hao, *et al.* Analysis of monthly variability and polluting sources of NO<sub>2</sub> in China based on satellite remote sensing [J]. *J Environ Eng Technol*, 2013, **3**(4): 331 – 336.
- [43] 余辉, 张璐璐, 燕姝雯, 等. 太湖氮磷营养盐大气湿沉降特征及入湖贡献率[J]. 环境科学研究, 2011, **24** (11): 1210 – 1219.
- YU Hui, ZHANG Lulu, YAN Shuwen, *et al.* Atmospheric wet deposition characteristics of nitrogen and phosphorus nutrients in Taihu Lake and contributions to the lake [J]. *Res Environ Sci*, **24**(11): 1210 – 1219.