滕永跃,金素雅,郑佳乐,等.人为源减排对长三角臭氧生成敏感性的影响 [J]. 中国环境科学, 2025,45(7):3564-3572.
Teng Y Y, Jin S Y, Zheng J L, et al. Effects of anthropogenic emission reduction on ozone formation sensitivity in the Yangtze River Delta [J]. China Environmental Science, 2025,45(7):3564-3572.

人为源减排对长三角臭氧生成敏感性的影响

滕永跃[1],金素雅[1],郑佳乐[1],张 佩[1],叶浩然[1],安静宇[2],田俊杰[2],黄 成[3],姜建惠[1,4*] (1.华东师范大学生态与环境科学学院,上海 200241；2.上海市环境科学研究院,上海 200233；3.上海市环境监测中心,上海 200235；4.华东师范大学崇明生态研究院,上海 200241)

摘要：对基于空气质量模型 CAMx 的臭氧(O_3)生成敏感性判断指标($PH_2O_2/PHNO_3$)进行优化,研究长三角地区 O_3 浓度以及 O_3 生成敏感性的时空格局;选择减排政策的关键时间节点 2013、2017、2020 和 2030 年,模拟并预测了不同排放情景下的 O_3 浓度以及 O_3 生成敏感性的变化.结果表明,长三角地区 O_3 浓度分布呈现北高南低的空间分布特征;O_3 生成敏感性以安庆-南京-苏州-嘉兴为分界线,分界线以北地区以 VOCs 限制区为主,占据长三角总面积的 43.3%,分界线以南为 NO_x 限制区为主,占总面积的 45.3%,其余为过渡区域.在气象条件不变的前提下,随着前体物排放的持续降低,长三角地区日最大 8h O_3 平均浓度(MDA8)有所下降,并且区域敏感性逐渐向 NO_x 限制区转变.在 2030 年碳达峰情景下,长三角地区平均 O_3 浓度降低但上海等局部地区 O_3 出现上升;O_3 生成机制持续向 NO_x 限制转变,NO_x 限制区面积占比较 2013 年增长了 30.2%,仅长江沿岸部分城市及交通要道仍保持 VOCs 限制.在排除气候变化因素影响的前提下,当前减排政策能够降低长三角地区 O_3 平均 MDA8 浓度,但处于 VOCs 限制主导的城市地区仍需要重视 NO_x 和 VOCs 的协同减排,避免局部地区出现 O_3 反升.

关键词：臭氧；空气质量模型；前体物排放；臭氧生成敏感性；减排政策
中图分类号：X511 **文献标识码**：A **文章编号**：1000-6923(2025)07-3564-09

Effects of anthropogenic emission reduction on ozone formation sensitivity in the Yangtze River Delta. TENG Yong-yue[1], JIN Su-ya[1], ZHENG Jia-le[1], ZHANG Pei[1], YE Hao-ran[1], AN Jing-yu[2], TIAN Jun-jie[2], HUANG Cheng[3], JIANG Jian-hui[1,4*] (1.School of Ecological and Environmental Sciences, East China Normal University, Shanghai 200241, China；2.Shanghai Academy of Environment Sciences, Shanghai 200233, China；3.Shanghai Environmental Monitoring Center, Shanghai 200235, China；4.The Institute of Eco-Chongming, East China Normal University, Shanghai 200241, China). *China Environmental Science*, 2025,45(7)：3564~3572

Abstract：This study investigated the spatiotemporal variations of ozone (O_3) pollution and O_3 formation sensitivity in the Yangtze River Delta (YRD) with the air quality model CAMx and an optimized photochemical indicator ($PH_2O_2/PHNO_3$). The critical years of emission reduction strategies (2013, 2017, 2020, and 2030) were selected to simulate and predict changes in ozone concentration and formation sensitivity under different emission scenarios. The results revealed a north-south gradient in O_3 concentrations, with higher levels in northern areas and lower levels in southern areas. The ozone formation sensitivity regimes were divided by an Anqing-Nanjing-Suzhou-Jiaxing line. The northern aeras of the line were governed by a VOCs-limited regime (occupying 43.3% of the total area) and the southern areas were predominantly NO_x-limited (45.3%), with transitional zones covering the remaining area. Under fixed meteorological conditions, continuous reduction in anthropogenic emissions during 2013~2020led to a sustained decline in the daily maximum 8-hour average (MDA8) O_3 concentration, and a shift of the ozone formation regime from VOCs-limited to NO_x-limited. In 2030, O_3 levels in urban hotspots such as Shanghai are likely to increase, despite an overall reduction in regional O_3 levels. The shift towards the NO_x-limited region will continue, increasing by 30.2% from 2013 levels. Only specific cities along the Yangtze River and areas with heavy traffic emissions will remain VOCs-limited. In summary, excluding the impact of climate change, the emission mitigation strategies can effectively decrease the ozone levels in the YRD. Meanwhile it is still necessary to coordinate the reduction rates of NO_x and VOCs in VOCs-limited cities to prevent increases in O_3 levels.

Key words：ozone；air quality model；precursor emissions；ozone formation sensitivity；emission reduction policy

2013~2019 年间,中国城市站点记录的日最大 8 小时 O_3 平均浓度(MDA8)以每年 4.7μg/m^3 趋势增长[1],O_3 污染已成为制约了我国空气质量持续改善的关键问题.O_3 浓度受到前体物排放、气象条件、

收稿日期：2024-11-28
基金项目：国家自然科学基金资助项目(42207122);上海市浦江人才计划项目(21PJ1402800)
* 责任作者, 研究员, jhjiang@des.ecnu.edu.cn

远距离传输等一系列因素影响,其中人为源排放已被多项研究证明是影响当前 O_3 浓度变化趋势的主要原因[2−4].

近地面 O_3 主要由氮氧化物(NO_x)和挥发性有机物(VOCs)在特定的气象条件下发生光化学反应生成[5],其污染水平与 NO_x、VOCs 呈现复杂的非线性关系.根据 O_3 生成对 NO_x 与 VOCs 的敏感性差异,可将 O_3 生成敏感区分成 NO_x 限制区、VOCs 限制区和过渡区[6].其中在 VOCs 限制区,NO_x 减排将削弱一氧化氮对 O_3 的滴定作用,从而有利于 O_3 的生成;而在 NO_x 限制区,减排 NO_x 将通过去除自由基而阻碍 O_3 的生成.通常 NO_x 排放较高的城市地区多处于 VOCs 限制区,而农村地区则多处于 NO_x 限制区[7].近年来,随着 O_3 前体物排放的变化,我国京津冀、珠三角、长三角等典型城市群的 O_3 生成机制已显现出从 VOCs 限制向 NO_x 限制的转变趋势[8−9].随着碳中和背景下减污降碳政策的持续推进,明确当前政策对未来 O_3 污染格局与生成机制的影响,对区域精细化减排政策的制定至关重要.然而相关的预测研究仍相对缺乏,且已有研究多基于政府间气候变化专门委员会(IPCC)提出的全球性社会经济路径设计未来排放情景[10−12],未充分考虑我国减污降碳协同减排的实际进展.

常见的 O_3 生成敏感性分区方法包括经验动力学模拟法(EKMA 曲线)[13]、基于遥感数据的甲醛与二氧化氮比值法(FNR)[14]以及空气质量模型法等.其中空气质量模型是评估区域尺度 O_3 敏感性的重要工具,但现有模型对 O_3 生成敏感性判定结果的准确性还存在争议.H_2O_2 与 HNO_3 的生成速率比值($P_{H_2O_2}/P_{HNO_3}$)是模型最常用于判断 O_3 生成敏感性的光化学指标[15].传统模型通常采用 Sillman[16]提出的 0.35 作为临界值:当 $P_{H_2O_2}/P_{HNO_3}<0.35$ 时判定为 VOCs 限制区,$P_{H_2O_2}/P_{HNO_3}>0.35$ 时被认定为 NO_x 限制区,然而越来越多研究指出 0.35 的临界值在区域应用中存在局限[17−18].以针对我国的研究为例,Du 等[19]结合 OMI 遥感数据和 CAMx−DDM,提出中国过渡区 $P_{H_2O_2}/P_{HNO_3}$ 范围在 0.540~0.830;Zhang 等[20]指出华北平原夏季过渡区的 $P_{H_2O_2}/P_{HNO_3}$ 范围约为 0.08~0.2;Ye 等[21]则计算出珠三角地区过渡区 $P_{H_2O_2}/P_{HNO_3}$ 范围为 0.54~0.62;Li 等[22]在以江苏省为例的研究中计算出适用于长三角地区的 $P_{H_2O_2}/P_{HNO_3}$ 阈值范围为 0.55~0.75,并且指出该指标不容易受到云层等气象因素的影响,相比基于遥感的 $HCHO/NO_2$ 指标更加准确.综上,模型光化学指标阈值存在明显的地域差异,采用均一化标准极有可能导致 O_3 生成敏感性的误判,在实际应用中有必要结合观测数据进行调整优化.

长三角地区作为中国东部工业密集、人口稠密的区域,O_3 前体物排放强度高,O_3 污染日趋严重[23-24].近年来,大量研究报道了《清洁空气行动计划》实行[25]、疫情封城期间[26]等特定时段,或是不同减排比例情景下[27]人为源排放变化对 O_3 生成敏感性的影响,然而当前减排政策对未来 O_3 生成机制的影响尚不明确.此外,大部分模型研究仍基于传统的 O_3 生成阈值指标开展敏感性判定,指标阈值的改变将如何影响长三角 O_3 生成敏感性时空格局仍有待进一步探究.因此本研究选择长三角地区作为研究区域,基于空气质量模型 CAMx 与优化后的光化学指标,研究了 2013 年以来减排政策对夏季 O_3 污染时空分布与 O_3 生成敏感性的影响,并利用中国未来排放动态评估模型未来情景模拟预测 2030 年 O_3 污染格局变化,以期为长三角地区精细化减排政策的制定提供参考.研究结果将有助于明确人为源减排过程中 O_3 与前体物的关系,为科学防治 O_3 污染提供参考.

1　数据与方法

1.1　空气质量模拟

模拟区域与时段:采用美国 Ramboll 公司开发的空气质量模型 CAMx v7.2 模拟长三角地区 2017 年 8 月的 O_3 分布特征.研究范围为 115°E~124°E 和 27°N~35°N,包括江苏省、上海市、浙江省、安徽省(图 1).模型空间分辨率为 4km×4km,垂直方向划分为 14 层,覆盖了 20~8000m 的海拔高度范围.

模型参数设置:CAMx 模型主要包括气象输入、排放清单、光解率、边界条件初始场和 O_3 柱浓度 5 个模块.气象输入数据由气象模型 WRF v4.3.3 版本制备,WRF 使用欧洲中期天气预报中心的第五代全球大气再分析数据(ERA5)驱动.排放清单由人为源排放与自然源排放两个部分组成,其中人为源排放来自上海市环境科学研究院的长三角地区高分辨大气污染物排放清单[28],自然源排放数据包括异戊二烯、萜烯等生物源挥发性有机物(BVOCs)和土壤排放一氧化氮(NO),由美国国家大气研究中心

(NCAR)开发的 MEGAN v2.1 模型制备.光解率由 NCAR 开发的对流层紫外辐射传输模型(TUV v4.8)模拟生成.边界条件与初始场数据则来自全球模型 CAM-chem.O_3 柱浓度数据来自美国国家航空航天局的 OMI-TOMS 卫星遥感柱数据.

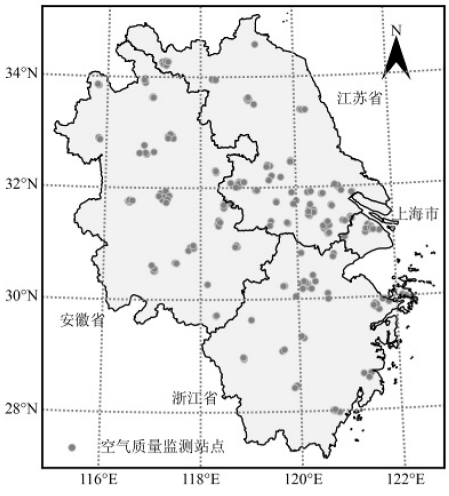


图 1 研究区域以及空气质量监测站点位置

Fig.1 The Yangtze River Delta region and the locations of air quality monitoring stations

审图号:GS(2024)0650 号

模型评估:采用来自美国国家海洋和大气管理局的气象观测数据(包括地面温度、风速、湿度)验证 WRF 模型表现,中国国家环境监测中心网站(http://www.mee.gov.cn/hjzl/dqhj/)发布的全国城市空气质量观测数据(站点分布如图 1 所示)评估 CAMx 模拟结果.研究选取平均偏差(MB)、平均误差(ME)、平均分数偏差(MFB)、平均分数误差(MFE)以及均方根误差(RMSE)来量化评估模型在主要气象参数和大气污染物的模拟表现[29].

1.2 减排场景设定

为探讨人为源减排对 O_3 生成敏感性的影响,在 2017 年基准情景(base)的基础上,结合我国空气质量政策,设计了 3 个不同的人为源排放情景:高排放情景(em2013),2013 年《大气十条》发布年时的人为排放水平;低排放情景(em2020),2020 年是《打赢蓝天保卫战三年行动计划》的目标达标年份;未来情景(em2030),2030 年碳达峰时的排放水平.除人为源排放外,包括气象条件在内的其他输入参数(表 1)均与 2017 年基准情景保持一致.2013、2017、2020 年的人为源排放输入制备主要基于清华大学发布的中国多尺度排放清单(MEIC v1.4, http://meicmodel.org.cn)[30],而 2030 年未来排放情景则主要基于中国未来排放动态预测模型 v1.2 的碳达峰与清洁空气协同情景.该情景融合了碳达峰、碳中和目标与最佳污染控制政策,且强化了 2030 年前的碳减排政策以实现提前达峰,代表了最强有力的污染控制政策情景,能够充分体现我国减污降碳政策对未来 O_3 污染格局的影响[31-32].首先在网格尺度计算了 2013、2020 和 2030 年排放情景相对于 2017 年的变化率,进而制备与本研究空间分辨率相匹配的排放输入.不同排放情景下各省份的 NO_x 和 VOCs 排放情况如表 1 所示.

表 1 各省份不同排放情景下人为源前体物排放总量

Table 1 Total precursor emissions under different scenarios in different provinces

气象数据	人为源排放情景	NO_x 排放(Tg)				AVOCs 排放(Tg)			
		上海	浙江	江苏	安徽	上海	浙江	江苏	安徽
met2017	em2013	0.28	0.87	1.58	1.05	0.47	1.42	2.11	0.91
met2017	em2017(base)	0.25	0.70	1.23	0.87	0.44	1.46	2.10	0.95
met2017	em2020	0.24	0.66	1.09	0.80	0.43	1.42	1.99	0.86
met2017	em2030	0.10	0.52	0.70	0.62	0.35	1.45	1.87	0.66

1.3 O_3 生成敏感性分析

采用 CAMx 模型过程分析(PA)模块输出的 H_2O_2 与 HNO_3 生成速率比值($PH_2O_2/PHNO_3$)作为 O_3 生成敏感性的判定指标.在模型默认 $PH_2O_2/PHNO_3$=0.35 的基础上,根据最新研究数据,采用 Li 等[22]提出的 0.55 与 0.75 作为 VOCs 限制区与 NO_x 限制区的边界阈值.在之前的研究中[22]已经证实了新阈值在长三角地区的适用性以及准确性.优化后的判定指标能够更准确地反映长三角地区 O_3 生成敏感性的变化.

为量化长三角地区 O_3-NO_x-VOCs 之间的非线性关系,绘制了 O_3 等值曲线,分析了在不同前体物减排比例下的 O_3 控制效果.在基准情景基础上,设置了人为源 VOCs 和 NO_x 分别减少 10%、20%、25%、

30%、50%、75%的配比排放情景.此外,为了涵盖高排放年份,模拟了在 NO_x 排放为基准 125%的排放情景.共计 34 个情景用于模拟 O_3-NO_x-VOCs 之间的关系,最终通过插值法构建 O_3 等值线,并分析了 O_3 对前体物变化的响应.

2　结果与讨论

2.1　模型验证

表 2 为研究时段内主要气象参数(地表气温、风速、湿度)与大气污染物(NO_2、SO_2、O_3、$PM_{2.5}$)浓度模拟值与观测值之间的统计学指标结果.WRF 模型对各个气象要素的模拟结果与站点观测数据之间有较好的一致性.如图 2(a)所示,地表(2m)气温日均值模拟值与观测值基本沿 1:1 线分布.大部分气象参数的统计学指标能达到 Emery[33]提出的气象模型表现标准.其中风速由于系统性误差存在高估的情况,主要表现在平原以及沿江临海地区等风速带存在偏高的现象,这一现象在相关研究中也有报道[34-35],因此模拟结果总体在可接受的范围之内.

表 2　长三角地区气象与主要污染物浓度模拟值与观测值的统计学指标

Table 2　Statistical results of modeled and observed meteorological conditions and concentrations of major air pollutants in the YRD

类型	指标	MB[a]	ME[a]	RMSE[a]	MFB(%)	MFE(%)	评价标准[b]
气象	气温	−0.1	0.8	1.4	0.1	0.3	MB≤±0.5K,ME≤2K
	风速(>2m/s)	0.6	0.7	0.8	26.9	29.4	MB≤±0.5m/s,RMSE≤2m/s
	湿度	−0.5	1.8	3.2	−4.3	11.5	MB≤±1g/kg,ME≤2g/kg
空气污染物	NO_2	1.7	8.1	10.7	2.7	20.3	
	SO_2	−6.4	7.6	8.7	−63.7	68.4	
	O_3	−4.5	9.0	11.3	−6.9	13.9	MFB≤±15%,MFE≤±30%
	$PM_{2.5}$	−6.1	11.1	14.4	−17.9	25.9	MFB≤±30%,MFE≤±50%

注:[a]气温的单位为K,风速的单位为m/s,湿度的单位为g/kg,空气污染物浓度单位均为μg/m^3;[b]气象参数的评价标准来自于Emery等[33],空气污染物参数的评价标准来自Boylan等[39].

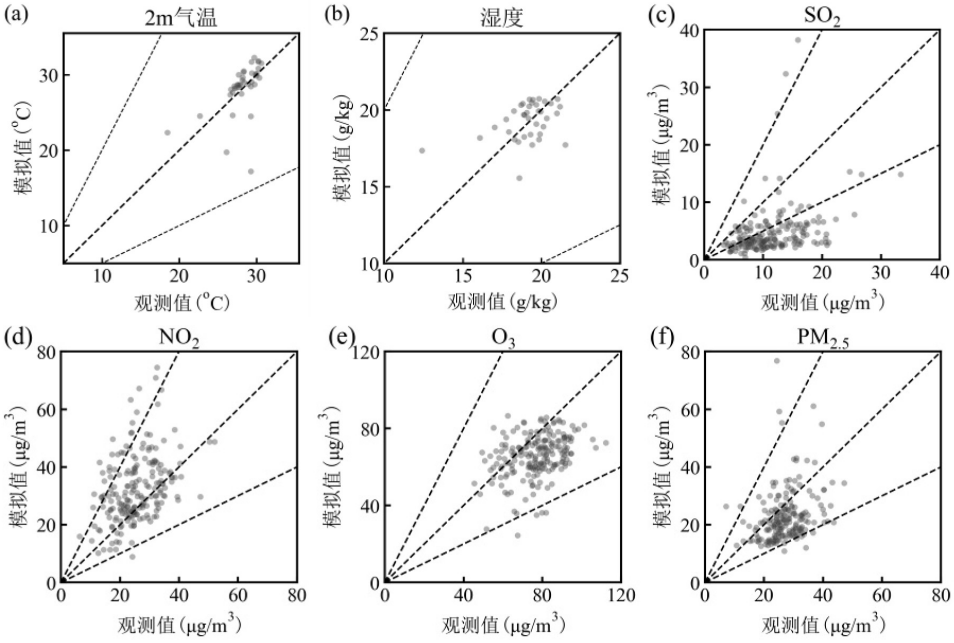


图 2　长三角气象以及空气污染物站点的模拟值与检测值对比

Fig.2　Comparison of modeled and observed concentrations at monitoring stations in the Yangtze River Delta

3 条虚线分别代表模拟值/观测值比值等于 2,1,1/2

CAMx 模型验证结果显示,SO_2 存在较为严重的低估情况(图 2(c)),一方面归结于排放清单中民用煤炭燃烧排放存在低估[28],另一方面则由于 SO_2 主要来自点源排放,受模型分辨率的局限容易低估排放

源附近点位的 SO_2 浓度[36],尤其是位于江苏、安徽等工业分布密集区域的观测点位.其他污染物的模拟表现要明显优于 SO_2,大多数点位的模拟值与观测值比值介于 1/2~2 的范围内(图 2(d~f)).其中 O_3 的 MFB 与 MFE 分别为−6.9%、13.9%,$PM_{2.5}$ 的 MFB 与 MFE 分别为−17.9%、25.9%.模拟所得的 O_3 和 $PM_{2.5}$ 模拟值略微低估,其中 $PM_{2.5}$ 的表现很大程度上归结于二次有机气溶胶组分的低估[37-38].尽管如此, O_3 与 $PM_{2.5}$ 的模拟结果均能满足通行的空气质量模型表现标准值[39],并与已有模型的结果具有较高的可比性[40-41].可见,本研究所采用的模型能够满足 O_3 区域性污染格局的研究需求.

2.2 O_3 时空分布格局

由图 3 可见,在基准情景下(em2017, base), $MDA8O_3$ 浓度呈现出北高南低的分布特征,并且沿海地区 O_3 浓度高于内陆地区.长三角地区 $MDA8O_3$ 浓度高值地区浓度均值可达 98.0μg/m^3 以上,主要分布在安徽北部(亳州、淮北、宿州、阜阳)、江苏部分地区(徐州、宿迁、连云港、苏州、无锡)、浙江部分地区(嘉兴、杭州、宁波、台州、温州)以及上海;低值地区主要在安徽南部(安庆、池州、铜陵、黄山、宣城)和浙江西北部(衢州、丽水).长三角地区的 $MDA8O_3$ 浓度受到气象条件以及人为排放的双重影响.在夏季东南风影响下,O_3 及其前体物从南向北和向西传输,增加了长三角西北地区近地面 O_3 浓度[42-43].江苏北部与安徽北部作为各自省份工业发展较为集中的地区,本地人为源排放量大,O_3 污染较为严重.相比之下,安徽南部与浙江西北部山区海拔较高,人口密度低,O_3 污染程度较低.

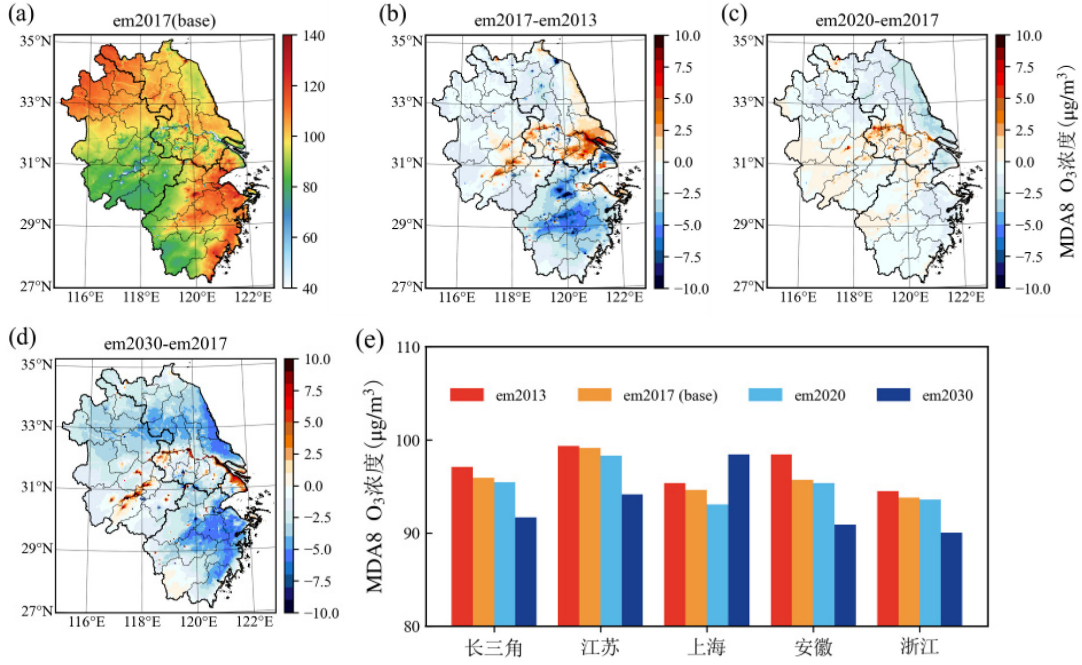


图 3 2017 年长三角地区 O_3 空间分布及不同人为源排放情景对 O_3 浓度的影响

Fig.3 Spatial distribution of surface ozone in the Yangtze River Delta in 2017 (base),and effects of different anthropogenic emission scenarios on ozone concentrations

审图号:GS(2024)0650 号

随着人为源排放的降低,长三角地区 $MDA8O_3$ 浓度变化呈现“整体下降,局部上升”的特征.在 2013~2020 年减排过程中(图 3(e)),长三角地区 $MDA8O_3$ 浓度整体呈下降趋势.具体而言,相对于高排放情景(em2013),2017 年大部分地区 O_3 浓度下降,但在长江沿岸如苏州等城市地区 $MDA8O_3$ 浓度升高了 0.78~4.5μg/m^3 左右.进一步来看相比于基准情景(em2017, base),em2020 的 $MDA8O_3$ 浓度下降幅度有限(下降了 0.4μg/m^3),在南京地区 $MDA8O_3$ 浓度出现了升高 1.0μg/m^3 左右的现象.在未来情景(em2030)中,这种变化趋势仍然延续,区域整体下降幅度明显增加,$MDA8O_3$ 浓度下降了 2.7μg/m^3.从省份来看,与

2017 年相比,em2030 情景中江苏、安徽、浙江三省的 $MDA8O_3$ 平均浓度分别下降了 5.1μg/m^3、4.7μg/m^3 和 3.7μg/m^3,而上海地区 $MDA8O_3$ 平均浓度则上升了 3.7μg/m^3.不同排放情景对地区 O_3 浓度变化影响的原因将结合敏感性在 2.4 章节中进一步讨论.

2.3　O_3 生成敏感性

光化学指标 $PH_2O_2/PHNO_3$ 的阈值选择直接影响 O_3 生成敏感性判定结果.如图 4 所示,默认 $PH_2O_2/PHNO_3$=0.35 的阈值仅能区分 NO_x 或 VOCs 限制区(无过渡区),其中 VOCs 限制区多集中在城区及交通要道,其余大部分地区处于 NO_x 限制区;而新阈值(0.55<$PH_2O_2/PHNO_3$<0.75)的判定结果以安庆−南京−苏州−嘉兴为分界线,分界线以北的工业人为活动密集地区以 VOCs 限制区为主,以南则主要为 NO_x 限制区,此外江苏和安徽北部部分地区被判定为过渡区.与基于遥感数据方法[7,44-45]以及模型模拟方法[19]的敏感性判断结果对比,发现新阈值结果与已有研究具有更高的一致性,因此本研究分析将基于新阈值的结果.

比较不同排放情景发现,在减排过程中,长三角地区 O_3 生成敏感性逐渐向 NO_x 限制区转变(图 5).2017 年夏季,长三角地区的 VOCs 限制区占总面积 43.3%,NO_x 限制区占 45.3%,过渡区占 11.4%. VOCs 限制区主要在上海、江苏和安徽的大部分地区,其中上海几乎全部地区都处于 VOCs 限制区,江苏省和安徽省分别有 71.1%和 37.8%的面积受到 VOCs 限制.相比之下,浙江南部由于植被丰富导致 BVOCs 排放相对较高,主要为 NO_x 限制区(76.6%),浙江北部以及沿海城市则属于 VOCs 限制区.相比之下,浙江南部由于植被丰富导致 BVOCs 排放相对较高,主要为 NO_x 限制区(76.6%),浙江北部以及沿海城市则属于 VOCs 限制区.

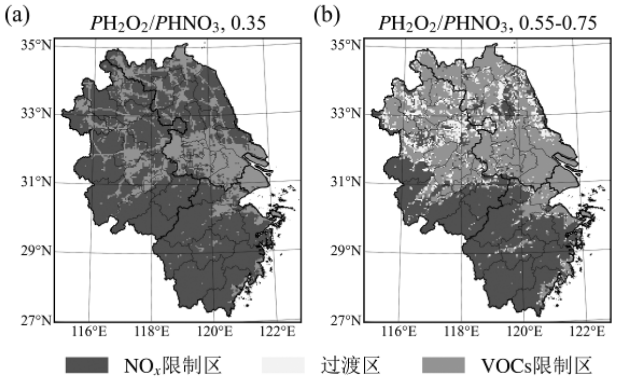


图 4　不同 $PH_2O_2/PHNO_3$ 阈值下 2017 年夏季 O_3 生成敏感性分布

Fig.4　Spatial distribution of ozone formation sensitivity under different thresholds of $PH_2O_2/PHNO_3$

审图号:GS(2024)0650 号

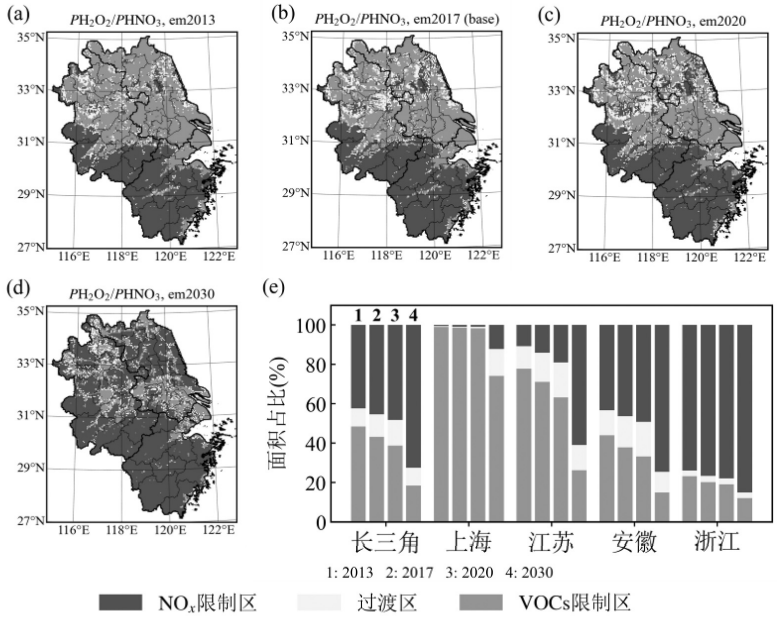


图 5　人为源排放情景下 O_3 生成敏感性分布及面积占比

Fig.5　Distribution and percentage in areas of ozone formation sensitivity regime under different emission scenarios

审图号:GS(2024)0650 号

高排放情景(em2013)和基准情景(em2017)的 O_3 敏感性分布相近:在长三角地区江苏苏北地区有更多的 VOCs 限制(48.5%),NO_x 限制区为 42.4%.在前体物同时下降的低排放情景(em2020)中,NO_x 限制区面积增长了 2.9%,VOCs 限制区则缩小了 4.4%,同时过渡区范围有扩张的趋势.在碳达峰的未来情景下,预计前体物排放量大大减少,长三角地区 NO_x 限制区面积将显著增加至 72.5%,VOCs 限制区将减少到 18.5%,过渡区面积占比为 9.0%.长三角地区 O_3 敏感性以 NO_x 限制为主,仅在分界线以北的城市中心市区以及长江沿岸仍为 VOCs 限制区.

2.4 O_3 对前体物排放控制变化的响应

图 6(a)中脊线以上区域可认为是 VOCs 限制区,以下区域则为 NO_x 限制区.2013 至 2020 年间,区域整体倾向于 VOCs 限制,因此尽管在此时段内长三角 NO_x 排放降低了 26.2%,其对 O_3 污染控制的贡献十分有限,这与图 3 和图 5 基于模型光化学指标法得到的结果相符.从空间尺度看,局地 O_3 的上升现象主要集中在长江沿岸城市如苏州、常州、无锡、南京、上海等地(图 3).究其原因,这些地区均处于 VOCs 限制区,因此在 VOCs 排放几乎不变的情况下,NO_x 排放降低一定程度上削弱了 NO 对 O_3 的滴定作用,导致了 O_3 浓度的上升.

未来情景下(em2030),长三角地区除上海外的大部分区域(图 6(c~e))都将进入 NO_x 限制区,因此 NO_x 的大幅降低能够有效降低区域平均 $MDA8O_3$ 浓度,其降幅显著高于 2013 至 2020 年.局地 O_3 上升现象仍然集中在长江沿岸的 VOCs 限制区域,其中上海市的增长尤为明显.基于空气质量模型与 EKMA 曲线的研究结果均显示,2030 年上海仍将处于 VOCs 限制区(图 6(b)).类似的 NO_x 排放下降导致的 O_3 反升现象在 2022 年上海因新冠疫情封控期间多有报道.Wang 等[46]对其进行了归因研究,发现上海地区封控期间 NO_x 与 VOCs 的减排比大于 1:1 时 O_3 可能会发生增加.根据排放数据(表 1),2017 至 2030 年间上海地区 NO_x 与 VOCs 减排比远大于 1:1,与已有研究结论相符.此外,尽管区域 VOCs 排放总量较 2017 年下降了 15.6%,2030 年部分城市(如南京、无锡、苏州、合肥、宁波、衢州)仍有可能出现 VOCs 排放上升.同时,这些城市多位于 VOCs 限制区,VOCs 排放上升、NO_x 排放下降的双重影响极易导致 O_3 浓度的上升(图 3(d)).由此可见,在不考虑气候变化因素影响的前提下,未来长三角大部分地区处于 NO_x 限制区,通过 NO_x 减排就可以有效控制 O_3 浓度;而在人口密集的城市(多仍处于 VOCs 限制区),在减排 O_3 的同时加大 VOCs 减排力度,才能实现 O_3 污染的有效控制.

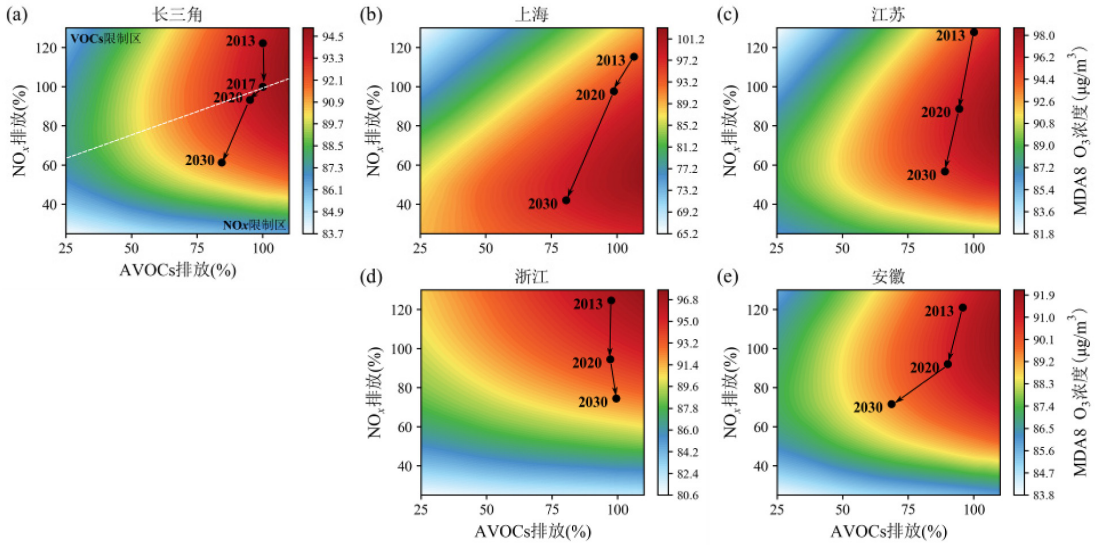


图 6 长三角地区及各省市 $MDA8O_3$ 浓度等值线

Fig.6 Ozone isopleths in the Yangtze River Delta and Shanghai, Jiangsu, Zhejiang, and Anhui

3 结论

3.1 模拟结果显示,2017 年夏季长三角的 $MDA8O_3$ 浓度呈现北高南低的空间分布特征.以安庆-南京-苏州-嘉兴为分界线,分界线以北地区(尤其是长江沿岸城市群)以 VOCs 限制区为主(占总面积 43.3%),

而分界线以南的浙江和安徽南部大部分地区为 NO_x 限制区为主(占总面积 45.3%);江苏和安徽部分地区(蚌埠、阜阳、淮安等)处于过渡区,面积占比 11.4%.

3.2　在剔除气候变化因素的影响后,2013~2020 年间长三角地区 $MDA8O_3$ 浓度随前体物排放的逐步削减而呈现整体下降局部上升的趋势.2020 年长三角 $MDA8O_3$ 浓度较 2017 年下降 0.4μg/m^3.在 2030 年的碳达峰情景中,$MDA8O_3$ 较 2017 年明显下降了 2.7μg/m^3,但上海出现 $MDA8O_3$ 则升高 3.7μg/m^3,其原因主要归结于上海位于 VOCs 限制区,城市内 NO_x 排放降低削弱了 NO 对 O_3 的滴定作用.

3.3　人为源减排措施导致长三角地区 O_3 生成敏感性的空间格局发生了显著变化.2013~2020 年部分 VOCs 限制区逐渐向过渡区转变:VOCs 限制区面积占比从 2013 年的 48.5%减少到 2020 年的 38.9%,而过渡区面积占比从 9.1%增长至 13.0%;到 2030 年,长三角大部分地区(72.5%)的 O_3 生成机制将以 NO_x 限制为主,VOCs 限制区减少到 18.5%,过渡区为 9.0%.长三角地区可以通过 NO_x 减排有效控制 O_3 污染,而上海、苏南以及长江沿岸部分仍处于 VOCs 限制区的城市,必须在减排 NO_x 的同时加大 VOCs 减排力度.

参考文献：

[1] Lu X, Zhang L, Wang X, et al. Rapid increases in warm-season surface ozone and resulting health impact in China since 2013 [J]. Environmental Science & Technology Letters, 2020,7(4):240-247.

[2] Liu Y, Wang T. Worsening urban ozone pollution in China from 2013 to 2017 – Part 2: The effects of emission changes and implications for multi-pollutant control [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2020, 20(11):6323-6337.

[3] Wang W, Li X, Cheng Y, et al. Ozone pollution mitigation strategy informed by long-term trends of atmospheric oxidation capacity [J]. Nature Geoscience, 2024,17(1):20-25.

[4] 刘　建,吴　兑,范绍佳,等.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, 2017,37(3):813-820.
Liu J, Wu D, Fan S J, et al. Impacts of precursors and meteorological factors on ozone pollution in Pearl River Delta [J]. China Environmental Science, 2017,37(3):813-820.

[5] 唐孝炎,张远航,邵　敏.大气环境化学 [M]. (第二版).北京:高等教育出版社, 2006.
Tang X Y, Zhang Y H, Shao M, et al. Atmospheric environmental chemistry [M]. (Second Edition). Beijing: China Higher Education Press, 2006.

[6] Wang P, Chen Y, Hu J, et al. Attribution of tropospheric ozone to NO_x and VOC emissions: considering ozone formation in the transition regime [J]. Environmental Science & Technology, 2019,53(3):1404-1412.

[7] Jin X, Holloway T. Spatial and temporal variability of ozone sensitivity over China observed from the Ozone Monitoring Instrument [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2015, 120(14):7229-7246.

[8] Guo J, Zhang X, Gao Y, et al. Evolution of ozone pollution in China: what track will it follow? [J]. Environmental Science & Technology, 2023,57(1):109-117.

[9] Wang W, Van Der A R, Ding J, et al. Spatial and temporal changes of the ozone sensitivity in China based on satellite and ground-based observations [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2021,21(9): 7253-7269.

[10] Liu Z, Doherty R M, Wild O, et al. Tropospheric ozone changes and ozone sensitivity from the present day to the future under shared socio-economic pathways [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2022,22(2):1209-1227.

[11] Wang Y, Liao H, Chen H, et al. Future projection of mortality from exposure to $PM_{2.5}$and O_3under the carbon neutral pathway: roles of changing emissions and population aging [J]. Geophysical Research Letters, 2023,50(15):e2023GL104838.

[12] Du Y, Yuan Z, Yang L, et al. Evolution of ozone-precursor sensitivity in the Guangdong-Hong Kong-Macao Greater Bay Area of China under the backdrop of climate change [J]. Atmospheric Environment, 2024,331:120596.

[13] 张新宇,王晓琦,王传达,等.保定市夏季臭氧生成敏感性及前体物减排方案 [J]. 中国环境科学, 2023,43(6):2703-2713.
Zhang X Y, Wang X Q, Wang C D, et al. Ozone sensitivity and precursor emission reduction scheme in Baoding City in summer [J]. Chinese Environmental Science, 2023,43(6):2703-2713.

[14] 张鸿宇,王　媛,卢亚灵,等.我国臭氧污染控制分区及其控制类型识别 [J]. 中国环境科学, 2021,41(9):4051-4059.
Zhang H Y, Wang Y, Lu Y L, et al. Identification of ozone pollution control zones and types in China [J]. Chinese Environmental Science, 2021,41(9):4051-4059.

[15] 钟博闻,周　俊,王　燕,等.我国臭氧生成敏感性研究进展 [J]. 中国环境科学, 2024,44(12):1-18.
Zhong B W, Zhou J, Wang Y, et al. Review of ozone formation sensitivity in China [J]. Chinese Environmental Science, 2024,44(12): 6522-6537.

[16] Sillman S, He D, Pippin M R, et al. Model correlations for ozone, reactive nitrogen, and peroxides for Nashville in comparison with measurements: Implications for O_3-NO_x-hydrocarbon chemistry [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 1998,103(D17): 22629-22644.

[17] Liang J, Jackson B, Kaduwela A. Evaluation of the ability of indicator species ratios to determine the sensitivity of ozone to reductions in emissions of volatile organic compounds and oxides of nitrogen in northern California [J]. Atmospheric Environment, 2006,40(27):5156-5166.

[18] 蒲东川,王大康,朱　雷,等.基于 OLI 和 TROPOMI 卫星数据的北京市臭氧前体物研究 [J]. 中国环境科学, 2024,44(7):3592-3600.
Pu D C, Wang D K, Zhu X, et al. Study on ozone precursors in Beijing based on OLI and TROPOMI satellite data [J]. China Environmental Science, 2024,44(7):3592-3600.

[19] Du X, Tang W, Cheng M, et al. Modeling of spatial and temporal variations of ozone-NO_x-VOC sensitivity based on photochemical indicators in China [J]. Journal of Environmental Sciences, 2022,114: 454-464.

[20] Wang X, Zhang Y, Hu Y, et al. Decoupled direct sensitivity analysis of

regional ozone pollution over the Pearl River Delta during the PRIDE-PRD2004campaign [J]. Atmospheric Environment, 2011,45(28):4941-4949.

[21] Ye L, Wang X, Fan S, et al. Photochemical indicators of ozone sensitivity: application in the Pearl River Delta, China [J]. Frontiers of Environmental Science & Engineering, 2016,10(6):15.

[22] Li X, Qin M, Li L, et al. Examining the implications of photochemical indicators for O_3–NO_x–VOC sensitivity and control strategies: a case study in the Yangtze River Delta (YRD), China [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2022,22(22):14799-14811.

[23] 米艺华,杜惠云,李 杰,等.我国重点地区臭氧变化特征及与气象要素的关系 [J]. 中国环境科学, 2024,44(4):1894-1904.
Mi Y H, Du H Y, Li J, et al. Ozone pollution characteristics and its relationship with meteorological factors of key regions in China [J]. Chinese Environmental Science, 2024,44(4):1894-1904.

[24] 周明卫,康 平,汪可可,等.2016~2018 年中国城市臭氧浓度时空聚集变化规律 [J]. 中国环境科学, 2020,40(5):1963-1974.
Zhou M W, Kang P, Wang K K, et al. The spatio-temporal aggregation pattern of ozone concentration in China from 2016 to 2018 [J]. Chinese Environmental Science, 2020,40(5):1963-1974.

[25] Fang H, Wang W, Wang R, et al. Ozone and its precursors at an urban site in the Yangtze River Delta since clean air action plan phase II in China [J]. Environmental Pollution, 2024,347:123769.

[26] Shen L, Wang H, Zhu B, et al. Impact of urbanization on air quality in the Yangtze River Delta during the COVID-19lockdown in China [J]. Journal of Cleaner Production, 2021,296:126561.

[27] 周德荣,刘 祎,高 健,等.中国东部地区典型臭氧污染过程防控敏感性及减排情景研究 [J]. 大气科学学报, 2023,46(5):667-678.
Zhou D R, Liu Y, Gao J, et al. Assessment of ozone sensitivity and emission reduction scenarios in typical pollution processes in eastern China [J]. Transactions Atmospheric Sciences, 46(5):667-678.

[28] An J, Huang Y, Huang C, et al. Emission inventory of air pollutants and chemical speciation for specific anthropogenic sources based on local measurements in the Yangtze River Delta region, China [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2021,21(3):2003-2025.

[29] 周广强,瞿元昊,余钟奇.长江三角洲城市臭氧数值预报与释用 [J]. 中国环境科学, 2021,41(1):28-36.
Zhou G Q, Qu Y H, Yu Z Q. Numerical forecast and improvement of ozone over YRD cities [J]. Chinese Environmental Science, 2021,41(1):28-36.

[30] Zheng B, Tong D, Li M, et al. Trends in China's anthropogenic emissions since 2010as the consequence of clean air actions [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2018,18(19):14095-14111.

[31] Tong D, Cheng J, Liu Y, et al. Dynamic projection of anthropogenic emissions in China: methodology and 2015~2050 emission pathways under a range of socio-economic, climate policy, and pollution control scenarios [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2020,20(9):5729-5757.

[32] Cheng J, Tong D, Liu Y, et al. A synergistic approach to air pollution control and carbon neutrality in China can avoid millions of premature deaths annually by 2060 [J]. One Earth, 2023,6(8):978-989.

[33] Emery C, Tai E. Enhanced meteorological modeling and performance evaluation for two Texas ozone episodes [Z]. 2001.

[34] Wang P, Guo H, Hu J, et al. Responses of $PM_{2.5}$ and O_3 concentrations to changes of meteorology and emissions in China [J]. Science of The Total Environment, 2019,662:297-306.

[35] Lang J, Liang X, Li S, et al. Understanding the impact of vehicular emissions on air pollution from the perspective of regional transport: A case study of the Beijing-Tianjin-Hebei region in China [J]. Science of The Total Environment, 2021,785:147304.

[36] Tan J, Zhang Y, Ma W, et al. Impact of spatial resolution on air quality simulation: A case study in a highly industrialized area in Shanghai, China [J]. Atmospheric Pollution Research, 2015,6(2):322-333.

[37] Zhao J, Lv Z, Qi L, et al. Comprehensive assessment for the impacts of S/IVOC emissions from mobile sources on SOA formation in China [J]. Environmental Science & Technology, 2022,56(23):16695-16706.

[38] Hodzic A, Jimenez J L, Madronich S, et al. Modeling organic aerosols in a megacity: potential contribution of semi-volatile and intermediate volatility primary organic compounds to secondary organic aerosol formation [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2010,10(12):5491-5514.

[39] Boylan J W, Russell A G. PM and light extinction model performance metrics, goals, and criteria for three-dimensional air quality models [J]. Atmospheric Environment, 2006,40(26):4946-4959.

[40] 王君悦,刘朝顺.基于 WRF-Chem 的长三角地区 $PM_{2.5}$ 和 O_3 污染协同控制研究 [J]. 环境科学学报, 2022,42(7):32-42.
Wang J Y, Liu C S. Study on the synergistic control of $PM_{2.5}$ and O_3 pollution in the Yangtze River Delta region based on WRF-Chem model [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2022,42(7):32-42.

[41] Tao W, Liu J, Ban-Weiss G A, et al. Effects of urban land expansion on the regional meteorology and air quality of eastern China [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2015,15(15):8597-8614.

[42] 牟显金赞,侯雪伟,朱小东.长三角地区近地层臭氧高值特征及其成因分析 [J]. 环境化学, 2024,44(4):1-14.
Mou X J Z, Hou X W, Zhu X D. Characteristics and cause analysis of surface high ozone in the Yangtze River Delta [J]. Environmental Chemistry, 2024,44(4):1-44.

[43] 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 R, Wang Y L, Zhang Y J, et al. Pollution characteristics and influence factors of ozone in Yangtze River Delta [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2015,35(8):2370-2377.

[44] Zhu S, Ma J, Wang S, et al. Shifts of formation regimes and increases of atmospheric oxidation led to ozone increase in north China plain and Yangtze River Delta from 2016 to 2019 [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2023,128(13):e2022JD038373.

[45] Ren J, Guo F, Xie S. Diagnosing ozone–NO_x–VOC sensitivity and revealing causes of ozone increases in China based on 2013~2021 satellite retrievals [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2022,22(22):15035-15047.

[46] Wang Q, Li Y, Zhong F, et al. Ground ozone rise during the 2022Shanghai lockdown caused by the unfavorable emission reduction ratio of nitrogen oxides and volatile organic compounds [J]. Atmospheric Environment, 2024:120851.

作者简介：滕永跃(1999-),男,江苏连云港人,华东师范大学硕士研究生,主要从事臭氧生成机制模型研究.51253903110@stu.ecnu.edu.cn.