

文章编号:1671-4229(2024)06-0026-10

【遥感技术与应用专题】

专题主持人:杨现坤

粤港澳大湾区2013—2022年对流层甲醛柱浓度时空演变特征

王大康^{1a,1b}, 夏慧^{1a,1b}, 刘佳彬^{1a,1b}, 宋兆龙^{1a,1b}, 莫咏茹^{1a,1b},
郭宇², 王冶^{3*}, 杨现坤^{1a,1b}, 王晋年^{1a,1b}

(1. 广州大学 a. 地理科学与遥感学院, b. 空天遥感创新研究院, 广东 广州 510006; 2. 重庆市地质矿产勘查开发局 107 地质队, 重庆 401120; 3. 河北民族师范学院 资源与环境科学学院, 河北 承德 067000)

摘要: 卫星观测的对流层甲醛(HCHO)垂直柱浓度(Vertical Column Densities, VCD)已成为研究区域挥发性有机物(Volatile Organic Compounds, VOCs)时空演变的重要手段。探索对流层HCHO VCD的时空演变对粤港澳大湾区乃至广东省PM_{2.5}和O₃污染协同控制具有重要意义。文章采用OMI(Ozone Monitoring Instrument)载荷的Level 2 甲醛观测数据,通过自主开发的过采样算法实现2013—2022年粤港澳大湾区对流层HCHO VCD的公里级监测,并分别从自然源和人为源的角度分析大湾区对流层HCHO VCD的影响因素。研究发现,2013—2022年大湾区HCHO VCD总体呈升高趋势,2022年相比于2013年HCHO VCD增长了11.3%,低值主要分布在大湾区周边地势较高地区及沿海一带,高值主要分布在大湾区中部地区,以广州、佛山、东莞为高值中心区,还包括肇庆、惠州及江门部分地区;大湾区HCHO VCD均值表现出冬季<春季<秋季<夏季的周期性规律。肇庆、东莞、广州和佛山表现出冬季<春季<秋季<夏季,惠州表现出冬季<秋季<春季<夏季,沿海城市包括江门、中山、深圳、香港和珠海表现出冬季<春季<夏季<秋季;大湾区植被的增加对甲醛柱浓度的增长有正向贡献,但不太显著。夜间灯光辐射强度与对流层HCHO VCD的相关系数不高,而大湾区年度GDP与对流层HCHO VCD表现出显著的正相关关系,表明GDP的增长对对流层甲醛柱浓度的升高具有重要贡献。

关键词: 粤港澳大湾区; 对流层甲醛; 挥发性有机物; OMI; 过采样

中图分类号: X51

文献标志码: A

Temporal and spatial evolution of tropospheric formaldehyde in the Guangdong-Hong Kong-Macao Greater Bay Area from 2013 to 2022

WANG Da-kang^{1a,1b}, XIA Hui^{1a,1b}, LIU Jia-bin^{1a,1b}, SONG Zhao-long^{1a,1b}, MO Yong-ru^{1a,1b},
GUO Yu², WANG Ye^{3*}, YANG Xian-kun^{1a,1b}, WANG Jin-nian^{1a,1b}

(1. a. School of Geography and Remote Sensing, b. Institute of Aerospace Remote Sensing Innovations, Guangzhou University, Guangzhou 510006, China; 2. 107 Geology Team, Chongqing Bureau of Geology and Mineral Development, Chongqing 401120, China; 3. School of Resources and Environmental Sciences, Hebei Minzu Normal University, Chengde 067000, China)

Abstract: The vertical column densities (VCD) of tropospheric formaldehyde (HCHO) observed by satellites have become an important means for studying the spatiotemporal evolution of volatile organic

收稿日期: 2024-08-08; 修回日期: 2024-10-23

基金项目: 国家重点研发资助项目(2021YFE0117300); 国家自然科学基金资助项目(42401435)

作者简介: 王大康(1989—),男,讲师,博士. E-mail: wangdk@gzhu.edu.cn

*通信作者. E-mail: wangye1991@hbun.edu.cn

引文格式: 王大康, 夏慧, 刘佳彬, 等. 粤港澳大湾区2013—2022年对流层甲醛柱浓度时空演变特征[J]. 广州大学学报(自然科学版), 2024, 23(6): 26-35.

compounds (VOCs) at the regional scale. Exploring the spatiotemporal evolution of HCHO VCD in the troposphere is of great significance for the coordinated control of PM_{2.5} and O₃ pollution in the Guangdong-Hong Kong-Macao Greater Bay Area (GBA) and even in Guangdong Province. To explore the spatiotemporal evolution of tropospheric HCHO VCD in the GBA, this research processed Level 2 formaldehyde observations from Ozone Monitoring Instrument (OMI) using a self-developed oversampling algorithm to achieve kilometer-level monitoring of tropospheric HCHO VCD in the GBA from 2013 to 2022. The influencing factors of tropospheric HCHO VCD in the GBA were diagnosed from the perspectives of natural and anthropogenic sources. Research has found that the HCHO VCD of GBA showed a rising trend from 2013 to 2022. Compared with 2013, HCHO VCD increased by 11.3% in 2022. Low HCHO VCD are mainly distributed in the surrounding areas of the GBA with higher terrain and coastal areas, while high VCD are mainly located in the central area of the GBA, with Guangzhou, Foshan, Dongguan as the high-value center region, as well as parts in Zhaoqing, Huizhou, and Jiangmen. The average VCD in GBA shows a periodic pattern of winter < spring < autumn < summer. Cities such as Zhaoqing, Dongguan, Guangzhou, and Foshan exhibit winter < spring < autumn < summer, while coastal cities including Jiangmen, Zhongshan, Shenzhen, Hong Kong, and Zhuhai present winter < spring < summer < autumn. The increase in vegetation in the GBA holds a positive contribution to the rise in tropospheric HCHO VCD, but it is not very significant. The correlation coefficient between nighttime light radiation intensity and tropospheric HCHO VCD is not high, while the annual GDP of GBA shows a significant positive correlation with tropospheric HCHO VCD, indicating that GDP growth plays an important role in the ascension of tropospheric HCHO VCD.

Key words: GBA; tropospheric formaldehyde; volatile organic compounds; OMI; oversampling

大气对流层中的甲醛(HCHO)是一种有毒并且致癌的挥发性有机物(Volatile Organic Compounds, VOCs)^[1-2],寿命仅有几小时。全球尺度上大气甲醛的背景浓度很低,主要来源于甲烷的不完全氧化^[3-5]。大陆地区的甲醛来源包括自然源和人为源,自然源主要来自于植被排放异戊二烯的氧化分解^[6];人为源主要包括交通运输工具排放的尾气、工厂排放的废气、生物质燃烧产生的烟气等,这是人类活动造成区域甲醛高值的主要原因^[7]。近年来我国大气污染问题转变为以细颗粒物(PM_{2.5})和臭氧(O₃)为特征污染物的区域复合型污染^[8-10]。作为臭氧和PM_{2.5}的共同前体物,VOCs和NO_x的平衡减排是臭氧和PM_{2.5}协同控制的重点^[11]。2021年3月“十四五”规划纲要提出,大气污染治理将继续以VOCs减排为抓手,加快补齐VOCs污染防治短板,确保排放总量降低10%以上。2023年2月,《广东省臭氧污染防治(氮氧化物和挥发性有机物协同减排)实施方案(2023—2025年)》指出,聚焦臭氧前体物NO_x和VOCs,完

善臭氧和VOCs监测体系,完成10000余项固定源VOCs减排项目,以实现臭氧生成前体物NO_x和VOCs持续下降的工作目标。粤港澳大湾区(GBA)是珠三角地区经济发展最为迅速的城市群,探索GBA VOCs时空演变对GBA乃至广东省的PM_{2.5}和O₃污染协同控制具有重要意义。监测VOCs是实现PM_{2.5}和O₃污染协同控制的关键^[12-13]。然而VOCs种类繁多,来源复杂且理化性质各不相同,这是导致其直接监测难度大的重要原因^[14-15]。对流层中甲醛的产生近似正比于活性VOCs与过氧化氢自由基的总反应速率^[16],因此,监测甲醛的浓度可以有效追踪VOCs的排放状况、来源及其时空演变^[17-19]。

地基光谱仪(如MAX-DOAS、Pandora、FTIR等)可通过自下而上的探测方式^[20-22],提供观点大气甲醛柱浓度的日变化特征,但在我国尚不能满足大尺度监测需求。卫星遥感的大面积覆盖、高时频监测优势使之成为在大尺度和广域上监测大气甲醛的重要手段。自1995年实现卫星

遥感探测大气甲醛开始,国际上现已公开了诸多监测甲醛的卫星遥感产品,包括 GOME 系列(1995、2006、2012、2018)、SCIAMACHY(2002)、OMI(2004)、OMPS 系列(2011、2017)、TROPOMI(2017)、GEMS(2020)以及即将发布数据的 TEMPO(2023)等。OMI(Ozone Monitoring Instrument)载荷是使用最广泛的星载大气甲醛探测器之一,已有诸多研究采用 OMI 载荷观测的甲醛柱浓度产品对我国大气甲醛分布特征进行了丰富的分析讨论^[5, 23-26],但大多关注的时间序列短,且空间分辨率粗(10 km 级),鲜有关于粤港澳大湾区长时序、高空间分辨率的大气甲醛卫星观测的研究。

OMI 载荷自 2004 年发射至今,仍在持续提供甲醛卫星遥感监测数据,是目前在轨运行时长最长的痕量气体监测载荷,是从大尺度和长时序角度探索甲醛排放时空演变的优秀选择,但原始的 OMI 卫星甲醛产品空间分辨率相对较粗(13 km × 24 km),本团队开发的过采样算法,通过叠加多时相痕量气体卫星信号对网格的贡献权重,从而获得信噪比和空间分辨率更高的公里级网格化卫星数据。该算法已成功用于监测美国德克萨斯州东部地区(包括休斯顿、达拉斯等地)的工业羽流^[27],以及美国东南部由于生物源异戊二烯氧化引起的甲醛高值现象^[28]。本研究采用过采样算法,设置筛选阈值叠加高质量像元,获得粤港澳大湾区高信噪比的公里级网格化 OMI HCHO 数据,用于诊断 2013—2022 年粤港澳大湾区对流层甲醛柱浓度的时空分布特征及其演变。

1 材料与方 法

1.1 研究区概况

粤港澳大湾区(21.5°~24.5°N、111.5°~115.5°E)地处中国大陆东南沿海珠江出海口,包括香港、澳门两个特别行政区和广东省广州、深圳、珠海、佛山、惠州、东莞、中山、江门、肇庆 9 个地市,总面积约 $5.6 \times 10^4 \text{ km}^2$ 。大湾区三面环山,一面沿海,形成中部平缓边缘起伏的地势特征(图 1)。根据《2023 年广东省国民经济和社会发展统计公报》报道,2023 年大湾区常住人口超 8 600 万,是中国开放程度最高、经济活力最强的区域之一,2023 年粤港澳大湾区贡献了超 14 万亿元的

GDP,约占全国经济总量的 11%。大湾区属南亚热带湿润季风气候,雨季集中在 4~9 月,年降水量为 1 300~2 100 mm,平均气温为 23 °C。近年来,随着对大气污染防治的重视,珠江三角洲地区 PM_{10} 和 $\text{PM}_{2.5}$ 持续下降, $\text{PM}_{2.5}$ 连续 5 年达标,平均质量浓度低于 $35 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ^[29],但大湾区 O_3 浓度逐渐上升^[30],成为近年来大湾区污染防治面临的重大问题。监测 VOCs 是实现 $\text{PM}_{2.5}$ 和 O_3 污染协同控制的关键,卫星观测的对流层 HCHO 是从区域尺度上指示 VOCs 时空演变的重要参考。

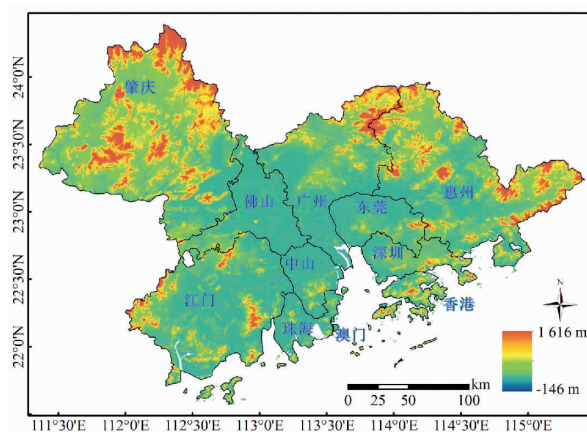


图 1 粤港澳大湾区地形图

Fig. 1 Topographic map of the Guangdong-Hong Kong-Macao Greater Bay

注:底图来源于自然资源部 <http://bzdt.ch.mnr.gov.cn/>(审图号:GS(2024)0650)

1.2 数据来源

OMI 是搭载于 Aura 卫星上以天顶模式观测的紫外/可见光谱仪,于 2004 年 7 月 15 日发射,以极日同步模式绕地球运行,自 2004 年 8 月 9 日开始采集数据。OMI 可测量 264~504 nm 的光谱范围,光谱分辨率为 0.42~0.63 nm,星下点空间分辨率为 $13 \times 24 \text{ km}^2$,每日全球覆盖,当地过境时间 13:38。本研究采用 SAO(Smithsonian Astrophysical Observatory)发布的 OMI HCHO Level 2 数据(版本 3),选取 2013 年 1 月 1 日—2022 年 12 月 31 日的 OMI HCHO 数据检测粤港澳大湾区甲醛柱浓度时空分布。据 González 等^[7]研究,OMI 甲醛柱浓度(HCHO Vertical Column Densities, HCHO VCD)经过两步反演过程获得,首先采用基本光学差分光谱法(BOAS)对 OMI 辐射进行光谱拟合反演斜柱浓度(SCD),其次,采用辐射传输模型离线

计算的大气质量因子(AMF)将SCD转换为VCD,再经过优化数据的后处理形成稳定的OMI HCHO产品,综合光谱拟合产生的40%~100%不确定性,以及大气质量因子带来的30%不确定性,OMI L2 HCHO的综合不确定性为50%~105%。通过初步的阈值(包括cloud fractions (<30%), solar zenith angles (<60°), and quality assurance value (>0.5))对OMI L2 HCHO实施数据质量检验,筛选后的OMI HCHO数据将被用于过采样至0.05°(约5 km)的空间分辨率,降低原始数据的不确定性水平,提高OMI HCHO数据质量。

1.3 过采样算法

本团队开发的OMI二级像元过采样算法,通过加权叠加多时相甲醛信号,在提高OMI HCHO空间覆盖比例和分辨率的同时,还可降低甲醛空间分布数据的不确定性水平。假设网格*i*与卫星像元*p*相交,相交面积为*A(p, i)*,像元*p*的HCHO柱浓度为 $\Omega(p)$,其对网格*i*的甲醛信号贡献为其柱浓度与权重的乘积,权重由相交面积与像元面积*S(p)*确定,考虑到多个像元*N(i)*对网格*i*的甲醛信号贡献,网格*i*的甲醛柱浓度 $\bar{\Omega}(i)$ 如公式(1)所示:

$$\bar{\Omega}(i) = \frac{\sum_{p=1}^{N(i)} \frac{A(p, i)}{S(p)} \Omega(p)}{\sum_{p=1}^{N(i)} \frac{A(p, i)}{S(p)}} \quad (1)$$

本研究采用改进的过采样算法处理2013—2022年每日Level2 OMI 甲醛数据,获得粤港澳大湾区空间分辨率0.05°(约5 km)的网格化甲醛柱浓度数据。

2 结果与分析

2.1 交叉验证

本研究在分析粤港澳大湾区对流层甲醛时空分布特征之前,首先采用收集到的2019—2021年每日TROPOMI卫星甲醛卫星遥感产品数据对其进行交叉验证。基于过采样算法处理TROPOMI Level2的每日甲醛数据获得空间分辨率0.05°(约5 km)的粤港澳大湾区月均网格化甲醛数据。提取粤港澳大湾区2019—2021年各地市的OMI和TROPOMI HCHO月均值共377组数据进行对比,

图2显示二者相关系数达到0.72,表现出显著相关。在不考虑两者载荷技术指标由于星上环境变化引起的系统误差及过采样过程中误差传播的情况下,过采样算法处理得到的高分辨率OMI HCHO网格化产品可用于长时序的大湾区甲醛时空分布监测。

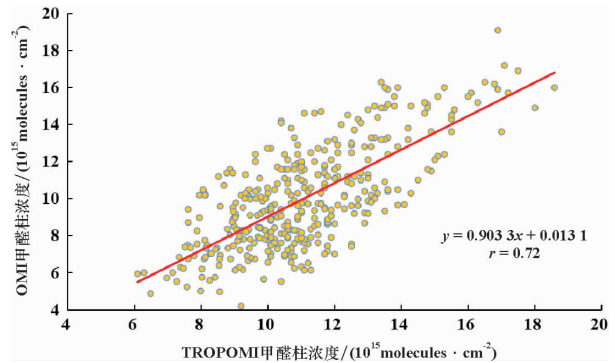


图2 大湾区OMI与TROPOMI HCHO VCD对比

Fig. 2 Comparison of OMI and TROPOMI HCHO VCD in the Greater Bay Area

2.2 空间分布特征

2.2.1 年度空间分布

图3为粤港澳大湾区2013—2022年HCHO VCD年度空间分布图。由图3可知,2013—2022年大湾区甲醛柱浓度总体呈升高趋势,甲醛柱浓度的低值($<9.0 \times 10^{15}$ molecules/cm²)主要分布在大湾区周边地势较高地区及沿海一带,包括肇庆、惠州、江门的形势较高地带以及香港、澳门及珠海;高值($>12.0 \times 10^{15}$ molecules/cm²)主要分布在大湾区中部地区,以广州、佛山、东莞为高值中心区,还包括肇庆、惠州、江门部分地区。2013—2019年,甲醛柱浓度高值区范围有逐年增加趋势,2020年高值区范围明显缩小,其原因可能是2019年底爆发的新冠疫情降低了生产活动水平,从而减少了人为源的甲醛排放。随着疫情得以控制以及人们对疫情的恐惧意识得以舒缓,2020—2022年生产活动逐渐复苏,甲醛柱浓度高值区范围又呈现出增加趋势。从城市尺度来看,从2013年开始,广州、佛山和东莞始终是甲醛高值的中心,2013—2015年该高值区逐渐向大湾区中部地区扩散,2016年开始,甲醛高值区进一步向西部和东部扩散,至2018年和2019年甲醛高值区范围达到最大,之后受疫情影响高值区范围有所减小。

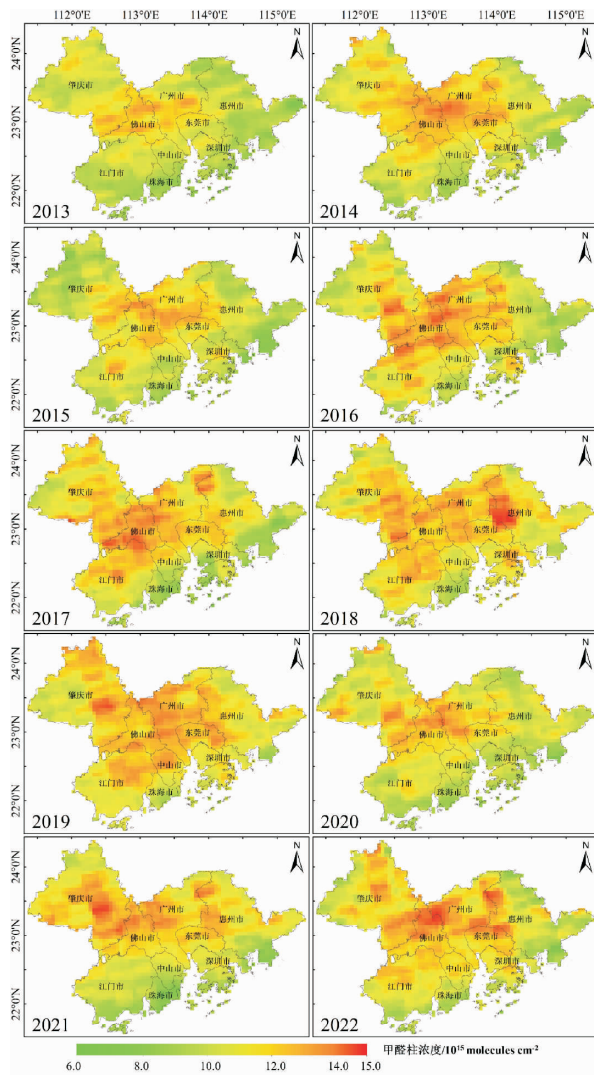


图3 大湾区2013—2022年HCHO VCD年度空间分布
Fig. 3 Annual spatial distribution of HCHO VCD in the Greater Bay Area from 2013 to 2022

2.2.2 季节空间分布

图4为粤港澳大湾区2013—2022年HCHO VCD季节空间分布。与年度空间分布特征不同,季度甲醛高值的分布范围在春季、夏季和秋季更广,冬季大湾区全域甲醛柱浓度水平较低。甲醛柱浓度的季节差异表现得较为明显。冬季气温较低,一方面,较低的气温降低了植被叶片细胞内的反应活性导致植被排放的异戊二烯减少,异戊二烯的氧化反应活性也受气温影响而下降;另一方面,较低的气温也降低了大气氧化能力,使大气中的VOCs的氧化反应活性降低。此外,寒冷的天气也降低了人们的生产活动水平,综合导致了冬季较低的甲醛柱浓度水平。大湾区甲醛柱浓度的季

节变化表现出明显的温度依赖特征,即随着季节性气温的变化,冬季甲醛柱浓度最低,春季甲醛柱浓度有所升高,夏季甲醛柱浓度达到最高。从城市尺度来看,冬季大湾区所有地市的甲醛柱浓度均较低且相差不大,春季甲醛柱浓度高值区集中在大湾区中北部,以广州、佛山和惠州西部为主,惠州西部的甲醛柱浓度最高,夏季甲醛高值水平进一步提高,高值覆盖范围在大湾区中北部进一步扩大,以经济较为发达的广州、佛山、东莞和惠州西部为高值中心,秋季随着气温的下降,甲醛高值水平有所降低,但高值区范围向南扩张,覆盖广州、佛山、东莞、江门、中山、深圳、香港和肇庆东部地区,夏季惠州的高甲醛水平在秋季降低明显。

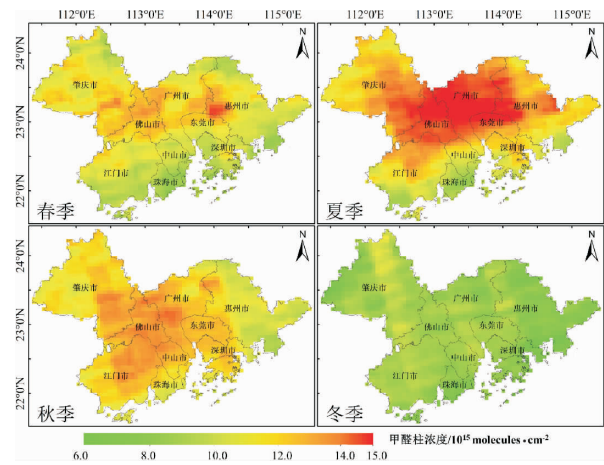


图4 大湾区2013—2022年HCHO VCD季节空间分布
Fig. 4 Quarterly spatial distribution of HCHO VCD in the Greater Bay Area from 2013 to 2022

2.3 时间演变特征

2.3.1 年度演变

图5显示了粤港澳大湾区2013—2022年HCHO VCD年度变化特征。2013—2022年间大湾区的10年甲醛柱浓度均值为 10.4×10^{15} molecules/cm²,最低值出现在2013年,为 9.6×10^{15} molecules/cm²,最高值为2019年的 11.0×10^{15} molecules/cm²。总体来看,大湾区年度HCHO VCD呈上升趋势,2022年相比于2013年HCHO VCD增长了11.3%。在2013—2022年间,出现两个明显低值年份,分别为2015年的 9.8×10^{15} molecules/cm²(相比2014年下降4.7%)和2020年的 10.1×10^{15} molecules/cm²(相比2019年下降8.1%)。2013年2月,广东省发布《广东省珠江三

角洲清洁空气行动计划——第二阶段(2013—2015年)空气质量持续改善实施方案》,严格环境准入,减少大气污染物新增排放量,全面开展工业VOCs排放治理,加大生活VOCs控制力度,可能是2015年大湾区HCHO VCD下降的重要因素。而2019年底爆发的新冠疫情,全国范围内对生产和出行实行严格管理。人为源的急剧减少可能是导致2020年大湾区HCHO VCD明显下降的主要原因。2013—2022年间,大湾区HCHO VCD增长率最快的年份为2014年,相比2013年增加了7.18%,其次为2016年(相比2015年增加了6.92%)和2021年(相比2020年增加了3.96%),2021年HCHO VCD的明显增加反映了大湾区对疫情防控的有效性和民众对疫情担忧的舒缓,促进了大湾区生产活动的逐渐复苏。

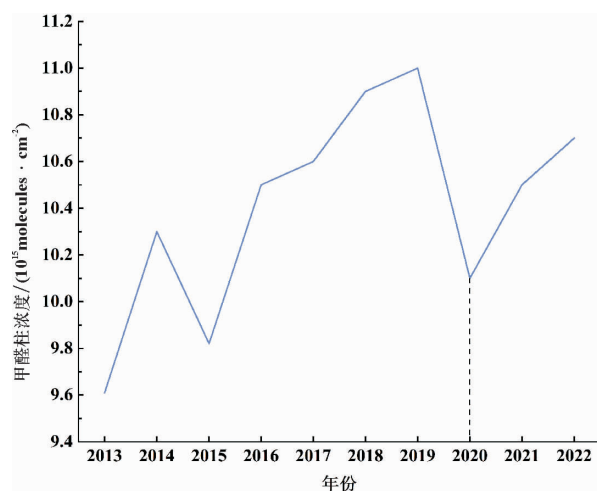


图5 大湾区2013—2022年HCHO VCD年度变化特征
Fig.5 Characteristics of annual changes in HCHO VCD in the Greater Bay Area from 2013 to 2022

图6显示了粤港澳大湾区各地市2013—2022年HCHO VCD年度变化特征。各地市的甲醛柱浓度情况为:澳门(8.10×10^{15} molecules/cm²) < 珠海(8.70×10^{15} molecules/cm²) < 香港(9.59×10^{15} molecules/cm²) < 惠州(9.743×10^{15} molecules/cm²) < 深圳(9.746×10^{15} molecules/cm²) < 中山(10.10×10^{15} molecules/cm²) < 江门(10.18×10^{15} molecules/cm²) < 肇庆(10.55×10^{15} molecules/cm²) < 东莞(11.07×10^{15} molecules/cm²) < 广州(11.26×10^{15} molecules/cm²) < 佛山(11.74×10^{15} molecules/cm²)。造成澳门、珠海、香港

HCHO VCD较低的可能原因是地域面积较小,且城市HCHO VCD易受海风驱散,第二产业占比不高也是澳门、香港HCHO VCD较低的可能原因。

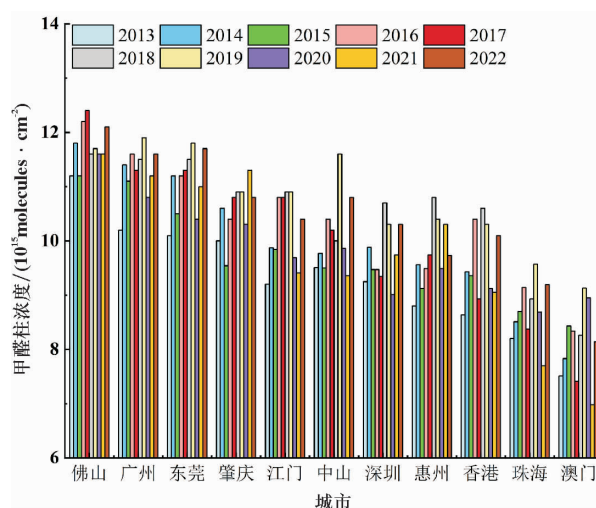


图6 大湾区各地市2013—2022年HCHO VCD年度变化特征

Fig.6 Characteristics of annual changes of HCHO VCD in various cities from 2013 to 2022

从各地市甲醛柱浓度演变来看,都表现出前期(2013—2015年)相对较低,而后总体增加的趋势。大部分地市在2018—2019年达到最高。面积较小的澳门、珠海和香港甲醛柱浓度均值最低,经济相对发达的广州、佛山和东莞等地的甲醛柱浓度最高。各地市2022年甲醛柱浓度水平相比于2013年的增长率为:肇庆(8%) < 佛山(8.04%) < 澳门(8.39%) < 惠州(10.57%) < 深圳(11.35%) < 珠海(12.07%) < 江门(13.04%) < 中山(13.56%) < 广州(13.73%) < 东莞(15.84%) < 香港(16.90%)。

2.3.2 季节演变

图7为粤港澳大湾区及各地市2013—2022年10年HCHO VCD季节变化特征,总体上由沿海城市到内陆城市甲醛柱浓度呈增加趋势。粤港澳大湾区及各地市甲醛柱浓度大致表现出较为一致的季节性差异,冬季最低,其次为春季,秋季与夏季的甲醛柱浓度因地区而异,就大湾区而言,比较明显的季节特征是:冬季(7.77×10^{15} molecules/cm²) < 春季(10.20×10^{15} molecules/cm²) < 秋季(11.19×10^{15} molecules/cm²) < 夏季(12.07×10^{15} molecules/cm²)。就城市尺度而言,内陆的肇庆、

东莞、广州和佛山表现出冬季 < 春季 < 秋季 < 夏季, 惠州表现出冬季 < 秋季 < 春季 < 夏季, 而沿海城市包括江门、中山、深圳、香港和珠海表现出冬季 < 春季 < 夏季 < 秋季, 海洋的调温作用使东南部沿海城市的夏季时间得以延长, 导致秋季气温与夏季相差不大甚至更高, 这是造成秋季甲醛柱浓度高于夏季的可能原因之一。冬季甲醛柱浓度最低值出现在澳门 (6.63×10^{15} molecules/cm²), 最高值出现在肇庆 (8.13×10^{15} molecules/cm²); 春季甲醛柱浓度最低值出现在澳门 (7.83×10^{15} molecules/cm²), 最高值出现在佛山 (11.57×10^{15} molecules/cm²); 秋季甲醛柱浓度最低值出现在澳门 (9.87×10^{15} molecules/cm²), 最高值出现在佛山 (12.51×10^{15} molecules/cm²); 夏季甲醛柱浓度最低值出现在澳门 (7.50×10^{15} molecules/cm²), 最高值出现在佛山 (14.40×10^{15} molecules/cm²)。

图 8 显示了粤港澳大湾区 2013—2022 年 HCHO VCD 季节变化特征, 可以看到, 2013—2022 年间大湾区甲醛柱浓度均值表现出冬季 < 春季 < 秋季 < 夏季的周期性规律。最低值出现在 2013 年的冬季 (7.10×10^{15} molecules/cm²), 最高值出现在 2018 年的夏季 (13.45×10^{15} molecules/cm²)。

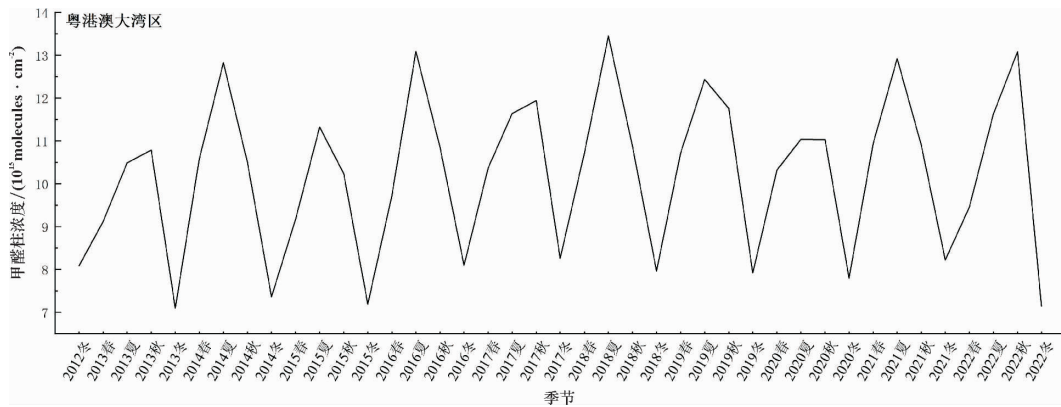


图 8 大湾区 2013—2022 年 HCHO VCD 季节变化特征

Fig. 8 Characteristics of quarterly changes of HCHO VCD in the Greater Bay Area and various cities from 2013 to 2022

2.4 影响因素分析

植被排放的异戊二烯的氧化反应是对流层甲醛的主要自然来源^[23]。作为植被特征的经典指标, 本研究选取 NDVI 研究粤港澳大湾区植被排放对对流层甲醛柱浓度的影响。夜间灯光辐射强度是近年来广泛使用的城市化表征, Pu 等^[31]的研究表明在区域尺度上夜间灯光辐射强度与甲醛

柱浓度有不错的相关性, 但还未在粤港澳大湾区得以证实, 因此, 本研究选取夜间灯光强度探索粤港澳大湾区城市化水平对对流层甲醛柱浓度的影响。生产总值是经济发展水平的另一个指标, 被广泛用于分析人为因素对对流层甲醛柱浓度的影响, 本文选取粤港澳大湾区年度生产总值开展研究。

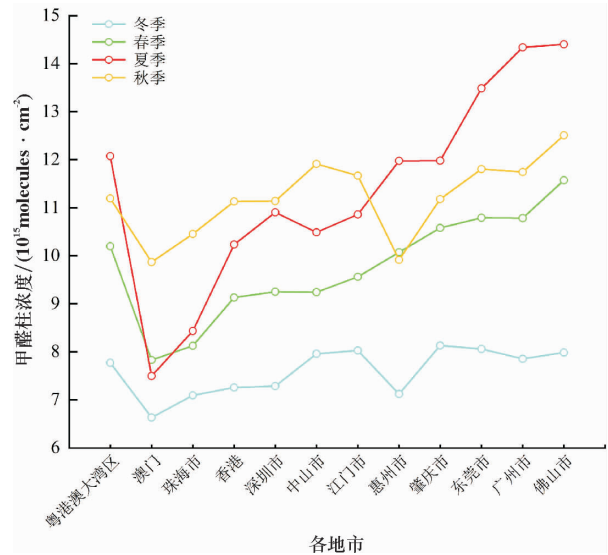


图 7 大湾区及各地市 2013—2022 年 10 年 HCHO VCD 季度变化特征

Fig. 7 Characteristics of quarterly changes of HCHO VCD in the Greater Bay Area and various cities from 2013 to 2022

图9表明,粤港澳大湾区各地市NDVI与对流层甲醛柱浓度呈正相关关系,相关系数 r 为0.47,表明植被的增加对大湾区对流层甲醛柱浓度的增长有正向贡献,但此贡献并不太显著。作为经济水平的两个重要指标,本研究首先验证了夜间灯光辐射强度在大湾区的准确性,图10(a)显示了粤港澳大湾区年均夜间灯光辐射强度与GDP的相关性,结果表明二者存在显著的正相关性,相关系数 r 达到0.92,大湾区夜间灯光数据可用于指示经济发展水平。图10(b)显示了粤港澳大湾区年均夜间灯光辐射强度与对流层甲醛柱浓度的相关性,二者表现出正相关关系,表明随着夜间灯光辐射强度的增加,对流层甲醛柱浓度表现出上升趋势,城市化的发展对甲醛柱浓度的增加存在正向贡献,但夜间灯光辐射强度与对流层甲醛柱浓度

的相关系数不高,不是人为源对对流层甲醛产生贡献的有力证明。

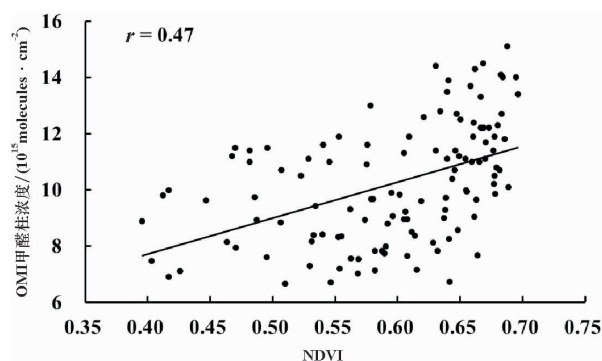


图9 大湾区各地市月均NDVI与对流层甲醛柱浓度相关性
Fig.9 Correlation between monthly average NDVI and tropospheric HCHO VCD in various cities in the Greater Bay Area

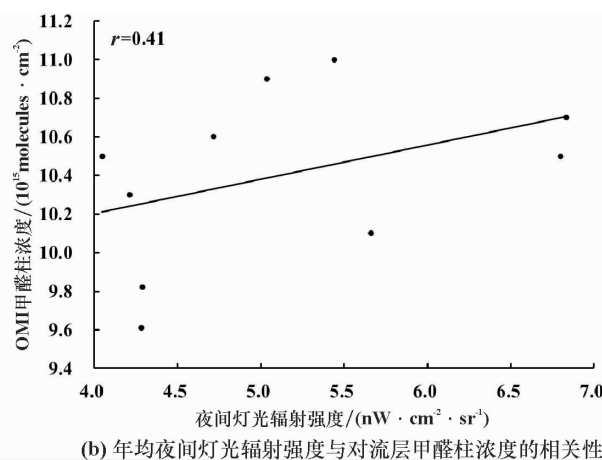
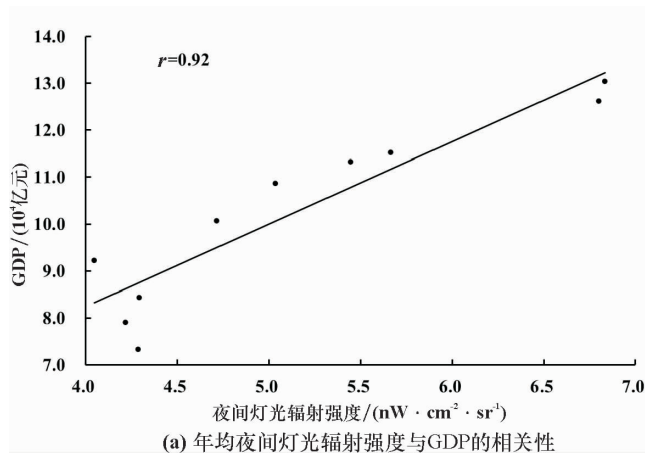


图10 大湾区年均夜间灯光辐射强度与GDP和对流层甲醛柱浓度的相关性

Fig.10 Correlation between annual nighttime light radiation intensity and GDP and tropospheric HCHO VCD in the Greater Bay Area

图11显示了粤港澳大湾区年度GDP与对流层甲醛柱浓度的相关性,结果表明GDP与对流层甲醛柱浓度呈显著的正相关关系,相关系数 r 为0.64,表明GDP的增长对对流层甲醛柱浓度的升高具有重要贡献。综合来看,大湾区甲醛柱浓度与NDVI、夜间灯光辐射强度和GDP的相关系数均未达到较高的水平,大湾区对流层甲醛柱浓度应是自然源和人为源综合影响的结果,同时可能受沿海风场的影响导致排放的甲醛存在快速的区域传输而导致与多项关键因子的相关性不够显著。

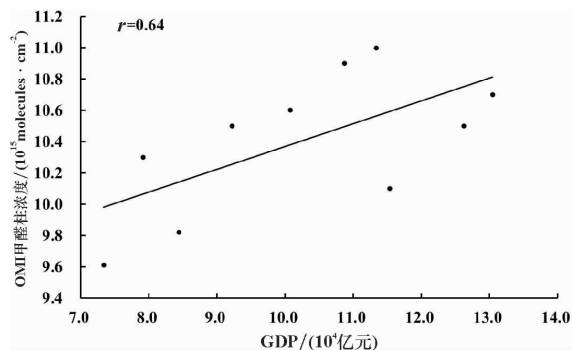


图11 大湾区年度GDP与对流层甲醛柱浓度的相关性
Fig.11 Correlation between annual GDP and tropospheric HCHO VCD in the Greater Bay Area

基于以上结果与分析,粤港澳大湾区甲醛柱浓度与 NDVI 和 GDP 均呈正相关,植被是 HCHO VCD 的主要自然源,导致 HCHO VCD 与 NDVI 相关性不够显著的原因值得进一步探索。GDP 与 HCHO VCD 表现出不错的相关性,但作为人类生产活动的综合性指标无法进一步明确造成 HCHO VCD 升高的人为源排放类型,研究各地市三次产业占比与其 HCHO VCD 的排放关系,将有助于探索导致本地 HCHO VCD 升高的主导产业。此外,粤港澳大湾区地处我国东南沿海,海陆风场的作用亦可能是影响 NDVI 和 GDP 与 HCHO VCD 的相关性的因素。

3 结 论

(1) OMI 载荷与 TROPOMI 载荷的甲醛卫星遥感产品在粤港澳大湾区表现出显著相关性,相关系数为 0.72。

(2) 2013—2022 年大湾区甲醛柱浓度总体呈升高趋势,2022 年相比于 2013 年 HCHO VCD 增长了 11.3%,甲醛柱浓度的低值主要分布在大湾区周边地势较高地区及沿海一带,包括肇庆、惠州、江门地势较高地带以及香港、澳门及珠海,高值主要分布在大湾区中部地区,以广州、佛山、东莞为高值中心区,还包括肇庆、惠州、江门部分地区。各地市的甲醛柱浓度比较为澳门 < 珠海 < 香港 < 惠州 < 深圳 < 中山 < 江门 < 肇庆 < 东莞 < 广州 < 佛山。面积较小的澳门、珠海和香港甲醛柱

浓度均值最低,经济相对发达的广州、佛山和东莞等地市的甲醛柱浓度最高。

(3) 粤港澳大湾区及各地市 2013—2022 年 10 年 HCHO VCD 季节变化特征,总体上由沿海城市到内陆城市甲醛柱浓度呈增加趋势。大湾区甲醛柱浓度均值表现出冬季 < 春季 < 秋季 < 夏季的周期性规律。而内陆的肇庆、东莞、广州和佛山表现出冬季 < 春季 < 秋季 < 夏季,惠州表现出冬季 < 秋季 < 春季 < 夏季,沿海城市包括江门、中山、深圳、香港和珠海表现出冬季 < 春季 < 夏季 < 秋季。冬季大湾区各地市的甲醛柱浓度均较低且相差不大,春季甲醛柱浓度高值区集中在大湾区中北部,以广州、佛山和惠州西部为主,惠州西部的甲醛柱浓度最高,夏季甲醛高值覆盖范围在大湾区中北部进一步扩大,以经济较为发达的广州、佛山、东莞和惠州西部为高值中心,秋季甲醛高值水平有所降低,高值区范围向南扩张。

(4) 粤港澳大湾区植被的增加对大湾区对流层甲醛柱浓度的增长有正向贡献,但并不太显著。作为经济水平指标之一的夜间灯光辐射强度与对流层甲醛柱浓度的相关系数不高,而粤港澳大湾区年度 GDP 与对流层甲醛柱浓度表现出显著的正相关关系,表明 GDP 的增长对对流层甲醛柱浓度的升高具有重要贡献。但综合来看,可能受沿海风场的影响导致排放的甲醛存在快速的区域传输而导致大湾区甲醛柱浓度与 NDVI、夜间灯光辐射强度和 GDP 的相关系数均未达到较高的水平。

参考文献:

- [1] Salthammer T. Formaldehyde sources, formaldehyde concentrations and air exchange rates in European housings[J]. *Building and Environment*, 2019, 150: 219-232.
- [2] 张莹, 邵毅, 王式功, 等. 北京市空气污染物对呼吸系统疾病门诊人数的影响[J]. *中国环境科学*, 2014, 34(9): 2401-2407.
- [3] Chance K, Palmer P I, Spurr R J D, et al. Satellite observations of formaldehyde over North America from GOME[J]. *Geophysical Research Letters*, 2000, 27(21): 3461-3464.
- [4] 王雅鹏, 陶金花, 余超, 等. 基于卫星遥感的甲醛和乙二醛监测与应用综述[J]. *三峡生态环境监测*, 2020, 5(3): 43-52.
- [5] Liu R, Feng T, Wang S, et al. OMI satellite observed formaldehyde column from 2006 to 2015 over Xishuangbanna, southwest China, and validation using ground based zenith-sky DOAS[J]. *Science of the Total Environment*, 2018, 613/614: 168-175.
- [6] Li D, Wang S, Xue R, et al. OMI-observed HCHO in Shanghai, China, during 2010—2019 and ozone sensitivity inferred by an improved HCHO/NO₂ ratio[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2021, 21(20): 15447-15460.
- [7] González A G, Liu X, Chance K, et al. Updated Smithsonian Astrophysical Observatory Ozone Monitoring Instrument (SAO OMI) formaldehyde retrieval[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2015, 8(1): 19-32.
- [8] Yousefi R, Shaheen A, Wang F, et al. Fine particulate matter (PM_{2.5}) trends from land surface changes and air pollution

- policies in China during 1980—2020[J]. *Journal of Environmental Management*, 2023, 326: 116847.
- [9] 汪兵, 唐钰寒, 刘玉芝, 等. 长三角地区 O₃ 与 PM_{2.5} 复合污染机制研究[J]. *环境保护科学*, 2021, 47(4): 38-46.
- [10] 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.
- [11] Wang Y, Zhao Y, Liu Y, et al. Sustained emission reductions have restrained the ozone pollution over China[J]. *Nature Geoscience*, 2023, 16(11): 967-974.
- [12] Ding D, Xing J, Wang S, et al. Optimization of a NO_x and VOC cooperative control strategy based on clean air benefits[J]. *Environmental Science & Technology*, 2022, 56(2): 739-749.
- [13] Zhao Q, Bi J, Liu Q, et al. Sources of volatile organic compounds and policy implications for regional ozone pollution control in an urban location of Nanjing, East China[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2020, 20(6): 3905-3919.
- [14] Kaiser J, Wolfe G M, Min K E, et al. Reassessing the ratio of glyoxal to formaldehyde as an indicator of hydrocarbon precursor speciation[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2015, 15(13): 7571-7583.
- [15] Vivaldo G, Masi E, Taiti C, et al. The network of plants volatile organic compounds[J]. *Scientific Reports*, 2017, 7(1): 11050.
- [16] Li Y, Wu Z, Ji Y, et al. Comparison of the ozone formation mechanisms and VOCs apportionment in different ozone pollution episodes in urban Beijing in 2019 and 2020: Insights for ozone pollution control strategies[J]. *Science of the Total Environment*, 2024, 908: 168332.
- [17] Su W, Liu C, Hu Q, et al. Primary and secondary sources of ambient formaldehyde in the Yangtze River Delta based on Ozone Mapping and Profiler Suite (OMPS) observations[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2019, 19(10): 6717-6736.
- [18] Guo Y, Wang S, Zhu J, et al. Atmospheric formaldehyde, glyoxal and their relations to ozone pollution under low- and high-NO_x regimes in summertime Shanghai, China[J]. *Atmospheric Research*, 2021, 258: 105635.
- [19] Zhang Y, Li R, Min Q, et al. The controlling factors of atmospheric formaldehyde (HCHO) in Amazon as seen from satellite[J]. *Earth and Space Science*, 2019, 6(6): 959-971.
- [20] Rivera Cárdenas C, Guarán C, Stremme W, et al. Formaldehyde total column densities over Mexico City: Comparison between multi-axis differential optical absorption spectroscopy and solar-absorption Fourier transform infrared measurement[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2021, 14(1): 595-613.
- [21] Ryan R G, Marais E A, Gershenson-Smith E, et al. Measurement report: MAX-DOAS measurements characterise Central London ozone pollution episodes during 2022 heatwaves[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2023, 23(12): 7121-7139.
- [22] Müller J F, Stavrakou T, Oomen G M, et al. Bias correction of OMI HCHO columns based on FTIR and aircraft measurements and impact on top-down emission estimates[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2024, 24(4): 2207-2237.
- [23] Fan J, Ju T, Wang Q, et al. Spatiotemporal variations and potential sources of tropospheric formaldehyde over eastern China based on OMI satellite data[J]. *Atmospheric Pollution Research*, 2021, 12(1): 272-285.
- [24] Shen L, Jacob D J, Zhu L, et al. The 2005—2016 trends of formaldehyde columns over China observed by satellites: Increasing anthropogenic emissions of volatile organic compounds and decreasing agricultural fire emissions[J]. *Geophysical Research Letters*, 2019, 46(8): 4468-4475.
- [25] Baek K H, Kim J H, Park R J, et al. Validation of OMI HCHO data and its analysis over Asia[J]. *Science of the Total Environment*, 2014, 490: 93-105.
- [26] Sun W, Zhu L, De Smedt I, et al. Global significant changes in formaldehyde (HCHO) columns observed from space at the early stage of the COVID-19 pandemic[J]. *Geophysical Research Letters*, 2021, 48(4): 2e020GL091265.
- [27] Zhu L, Jacob D J, Mickley L J, et al. Anthropogenic emissions of highly reactive volatile organic compounds in eastern Texas inferred from oversampling of satellite (OMI) measurements of HCHO columns[J]. *Environmental Research Letters*, 2014, 9(11): 114004.
- [28] Zhu L, Mickley L J, Jacob D J, et al. Long-term (2005—2014) trends in formaldehyde (HCHO) columns across North America as seen by the OMI satellite instrument: Evidence of changing emissions of volatile organic compounds[J]. *Geophysical Research Letters*, 2017, 44(13): 7079-7086.
- [29] 廖彤, 熊鑫, 王在华, 等. 世界三大湾区大气污染治理经验及对粤港澳大湾区的启示[J]. *生态环境学报*, 2022, 31(11): 2242-2250.
- [30] 赵伟, 高博, 卢清, 等. 2006—2019年珠三角地区臭氧污染趋势[J]. *环境科学*, 2021, 42(1): 97-105.
- [31] Pu D, Zhu L, De Smedt I, et al. Response of anthropogenic volatile organic compound emissions to urbanization in Asia probed with TROPOMI and VIIRS satellite observations [J]. *Geophysical Research Letters*, 2022, 49(18): e2022GL099470.