

赵恺辉, 包云轩, 黄建平, 等. 2019. 华南地区春季平流层入侵对对流层低层臭氧影响的模拟研究 [J]. 大气科学, 43 (1): 75–86. Zhao Kaihui, Bao Yunxuan, Huang Jianping, et al. 2019. A modeling study of the impact of stratospheric intrusion on ozone enhancement in the lower troposphere in South China [J]. Chinese Journal of Atmospheric Sciences (in Chinese), 43 (1): 75–86, doi:10.3878/j.issn.1006-9895.1801.17224.

华南地区春季平流层入侵对对流层低层臭氧影响的模拟研究

赵恺辉^{1,2} 包云轩¹ 黄建平² 张潇艳^{1,2} 刘诚¹ 戚慧雯^{1,2} 许玮³

1 南京信息工程大学气象灾害预报和评估协同创新中心, 南京 210044

2 耶鲁大学—南京信息工程大学大气环境中心, 南京 210044

3 咸阳市气象局, 陕西省咸阳 712000

摘 要 利用中尺度大气化学模式 WRF/Chem 对 2013 年 3 月 6 日华南地区一次平流层入侵事件及其对对流层低层臭氧的影响进行模拟研究。通过加入 UBC (Upper Boundary Condition) 上边界处理方案, 弥补 WRF/Chem 模式未考虑平流层臭氧化学反应的不足。结合臭氧探空廓线资料、地面 O_3 、 CO 、 NO_x 、相对湿度、温度和风速等观测资料以及再分析资料对模拟结果进行定量评估, 结果表明模式能较为真实地模拟本次平流层入侵过程。模拟分析进一步揭示: (1) 副热带高空急流是本次平流层入侵的主要原因。当华南地区处在副热带急流入口区左侧下沉区域时, 平流层入侵将富含臭氧的干燥空气输送到对流层中低层。(2) 本次平流层入侵对对流层低层臭氧收支有重要影响, 导致香港地区近地层臭氧体积混合比浓度明显上升, 如塔门站夜间臭氧浓度升高 21.3 ppb ($1\text{ ppb}=1\times 10^{-9}$)。地面气象场和化学物种的分析进一步确认了平流层入侵的贡献。(3) 采用动力学对流层顶高度时零维箱式模型和 Wei 公式计算得到的平流层入侵通量相当, 分别为 $-1.42\times 10^{-3}\text{ kg m}^{-2}\text{ s}^{-1}$ 和 $-1.59\times 10^{-3}\text{ kg m}^{-2}\text{ s}^{-1}$, 这一结果与前人研究相吻合, 且与采用热力学对流层顶高度计算所得到的结果具有可比性。

关键词 平流层入侵 臭氧 WRF/Chem 模式 华南地区

文章编号 1006-9895(2019)01-0075-12

中图分类号 P435

文献标识码 A

doi:10.3878/j.issn.1006-9895.1801.17224

A Modeling Study of the Impact of Stratospheric Intrusion on Ozone Enhancement in the Lower Troposphere in South China

ZHAO Kaihui^{1,2}, BAO Yunxuan¹, HUANG Jianping², ZHANG Xiaoyan^{1,2}, LIU Cheng¹,
QI Huiwen^{1,2}, and XU Wei³

1 Collaborative Innovation Center on Forecast Meteorological Disaster Warning and Assessment, Nanjing University of Information Science and Technology, Nanjing 210044

2 Yale–NUIST Center on Atmospheric Environment, Nanjing University of Information Science & Technology, Nanjing 210044

3 Xianyang Meteorological Bureau, Xianyang, Shaanxi Province 712000

Abstract The Weather Research and Forecasting model coupled with Chemistry (WRF/Chem) is used to simulate the stratospheric intrusion event occurring on 6 March 2013 and investigate the impact of stratospheric intrusion on the

收稿日期 2017-08-30; 网络预出版日期 2018-01-16

作者简介 赵恺辉, 男, 1992 年出生, 博士, 主要从事大气环境和空气质量数值模拟研究。E-mail: 645746215@qq.com

通讯作者 黄建平, E-mail: jianping.huang@noaa.gov

资助项目 国家自然科学基金项目 2081021506501, 江苏省科技支撑计划项目 BE2014734, 咸阳市重大科技计划项目 2017K01-35

Funded by National Natural Science Foundation of China (Grant 2081021506501), Jiangsu Science and Technology Support Project (Grant BE2014734), Xianyang City Major Science and Technology Projects (Grant 2017K01-35)

enhancement of ozone in the lower troposphere. An upper boundary condition scheme is employed in the simulations to overcome the problem that WRF/Chem does not have the capability to simulate O_3 formation in the stratosphere. A series of observational data including ozone sounding data, surface O_3 , CO, NO, relative humidity, temperature, winds together with ECMWF (European Centre for Medium-Range Weather Forecasts) Interim data are used to evaluate the model results. The WRF/Chem shows reasonable performance on simulating the meteorological processes that control the stratospheric intrusion. Several findings are identified from the detailed analyses of the modeling results. First, the subtropical jet at high altitude was responsible for this stratospheric intrusion event. When Hong Kong was located at the left side of the entrance of the subtropical jet zone where subsidence was dominated, the ozone-enriched air was transported from the stratosphere to troposphere. Second, the stratospheric intrusion caused substantial enhancement of ozone in the lower troposphere over the Hong Kong region. For instance, the surface ozone increased by 21.3 ppb ($1 \text{ ppb} = 1 \times 10^{-9}$) (nighttime) at Tap Mun station, Hong Kong. The analyses of surface observational data including winds and CO further confirmed the contribution of stratospheric intrusion to the increase in surface O_3 . Third, the stratosphere–troposphere exchange fluxes of ozone calculated with a box model and the Wei formula are comparable to each other ($-1.42 \times 10^{-3} \text{ kg m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ versus $-1.59 \times 10^{-3} \text{ kg m}^{-2} \text{ s}^{-1}$), and consistent with the findings of other studies. Furthermore, the results are comparable when the dynamic and thermodynamic tropopause heights are utilized in the flux calculations.

Keywords Stratosphere intrusion, Ozone, WRF/Chem model, South China region

1 引言

臭氧是一种重要的痕量气体。对流层臭氧约占整个大气柱含量的十分之一，但高浓度臭氧危害人体健康，影响植物光合作用，减少植物光合产物 (NRC, 1991; Chameides et al., 1999)。臭氧作为一种温室气体，可以有效吸收 200~300 nm 波段的短波紫外辐射 (熊秋菊等, 1984)。作为一种强氧化剂，臭氧是大气中氢氧 (OH) 自由基的主要来源之一。因此，对流层臭氧时空分布及其影响因子研究对气候变化、大气环境和大气化学等具有重要意义。

近地层臭氧是氮氧化合物 (NO_x) 和挥发性有机物 (VOCs) 在太阳紫外辐射作用下经过一系列光化学反应形成，且其浓度进一步受区域输送和平流层入侵等过程的显著影响。随着工业化和城市化快速发展，各种人为污染源不断增加，近地层臭氧变化已日益受到广泛关注 (Wang et al., 2009; Li et al., 2014)。为有效控制本地区近地层臭氧浓度，一方面需有效控制本地污染源排放，加强与周边地区特别是上风方进行污染源排放联合控制，减少外来污染物输入；另一方面需考虑平流层入侵等过程对近地层臭氧的影响 (Lin et al., 2012; Langford et al., 2012)。由于平流层的热力、动力和化学属性与对流层不同，平流层臭氧可通过平流层—对流层交换 (Stratosphere–Troposphere Exchange, STE) 向下输送，显著影响对流层臭氧。如 Sudo et al.

(2003) 通过模式计算发现，1990 至 2100 年期间受气候变化影响平流层臭氧输入可导致对流层臭氧升高近 80%。

国内外先后开展了光化学反应、区域输送和平流层入侵对流层臭氧贡献的影响研究。比如，Liu et al. (2002) 利用西北太平洋沿岸臭氧探空数据结合全球三维化学模型 GEOS-CHEM (Bey et al., 2001)，评估东南亚地区生物质燃烧产物对春季对流层低层臭氧浓度升高的影响。Jacob et al. (1999) 发现美国西部地区臭氧的升高与东亚远距离输送密切相关。Fishman and Crutzen (1978) 指出光化学反应是对流层臭氧的重要来源。Penkett et al. (2004) 通过对光化学示踪剂过氧乙酰硝酸酯 (PAN) 的分析，发现对流层光化学反应是北大西洋地区春季对流层臭氧明显升高的主要原因。同时，其他研究也指出平流层入侵对流层臭氧有显著影响。杨健和吕达仁 (2003) 通过对东亚地区一次切断低压过程的数值模拟，发现强切断低压可引起对流层顶折叠，导致平流层入侵。李丹等 (2014) 通过分析臭氧探空数据和再分析资料，发现 2010 年 6 月我国长春地区平流层入侵事件是由对流层顶折叠所造成的；平流层入侵伴随舌状高浓度臭氧、高位势涡度和干冷空气向下输送等特征。郑永光等 (2008) 发现副热带急流入口区左侧为高空辐合下沉区域，存在位涡大于 1 个位势涡度单位 (PVU, $1 \text{ PVU} = 10^{-6} \text{ K m}^2 \text{ s}^{-1} \text{ kg}^{-1}$) 的高值区，建议作为判断平流层入侵的指标。Lin et al. (2015) 研究了平

流层入侵与强拉尼娜事件的关系，指出晚冬强拉尼娜事件可导致第二年春季平流层入侵事件次数明显增多，进而影响近地层臭氧浓度。崔宏等（2005）通过数值模拟，发现副热带地区春季平流层对流层交换活跃，对流层臭氧浓度明显升高。一方面，对流层顶至平流层低层观测资料稀缺，使得通过观测定量评估平流层对对流层臭氧贡献非常困难。另一方面，现有全球大气化学模式垂直分辨率较低，不能准确地描述平流层对对流层动力输送过程，加上现有的平流层对流层通量计算方法的不完整，使得定量评估平流层对对流层臭氧贡献的不确定性进一步加大。

春季香港低层，如 2~4 km 高度处经常观测到臭氧浓度的明显升高。Chan et al.（2000）通过对 1994 年 4 月的个例分析，发现东南亚（如缅甸）生物质燃烧产物通过远距离输送是其发生的主要原因。郑永光等（2008）和 Liu et al.（2002）结合臭氧探空资料和后向轨迹模式，进一步证实了这一发现。Oltmans et al.（2004）利用香港、台北等 9 个站点臭氧探空资料，结合卫星反演火点资料以及后向轨迹模型，发现了 30°N 以南地区生物质燃烧是对流层低层臭氧浓度明显升高的重要原因，而 30°N 以北地区平流层入侵是主要原因。香港地处副热带地区，4~5 月份的高温高湿天气有利于臭氧的光化学反应（Ding et al., 2013），导致边界层臭氧浓度升高（Dickerson et al., 1995; Li et al., 2002; Kim and Lee, 2010）。受夏季风环流影响，香港地区春季对流活动较为活跃，有利于 STE 过程发生。

本文通过引进 UBC（Upper Boundary Condition）上边界处理方案（Barth et al., 2012），弥补 WRF/Chem 模式未考虑平流层臭氧化学反应的不足，对 2013 年 3 月 6 日发生在华南地区的一次平流层入侵过程进行数值模拟。结合臭氧探空实验资料和地面观测资料以及 ECMWF 再分析资料，定量评估 WRF/Chem 模式对气象和臭氧时空分布特征的模拟效果，并评估平流层入侵对香港地区春季对流层低层臭氧浓度升高的影响。利用零维箱式模型和 Wei 公式，估算本次事件平流层入侵的臭氧输送通量。

2 方法与数据

2.1 WRF/Chem 模拟设计

WRF（Weather Research Forecast, Skamarock et al., 2005）是美国国家大气研究中心（NCAR）、美

国国家海洋和大气管理局国家环境预报中心（NOAA/NCEP）等联合开发的中尺度天气数值预报模式。WRF/Chem 模式是在气象模型（WRF/ARW）框架上在线耦合化学模块（Chem）（Grell et al., 2005）。由于气象与化学模块采用相同水平网格和垂直分层，避免了离线模型插值所产生的偏差，同时考虑了气象和化学过程之间的相互反馈作用。该模拟系统已在气象、大气环境等领域的科学研究和业务预报中得到了广泛的应用（如 Safieddine et al., 2014）。

表 1 给出了 WRF/Chem 模式采用的各种物理参数化方案。其中包括 Lin 微物理参数化方案（Lin et al., 1983），Goddard 短波辐射传输方案（Suarez and Chou, 1994），RRTM 长波辐射传输方案（Mlawer et al., 1997），YSU 边界层参数化方案（许平等, 2015），RAMD2 气相化学反应机理（Stockwell et al., 1990），和 Fast-J 光解速率计算方案（Wild et al., 2000）。

表 1 WRF/Chem 模式参数化方案设置

Table 1 Parameterization schemes selected in the WRF/Chem model

物理过程及化学机理	使用的参数化方案
微物理	Lin Microphysics
短波辐射	Goddard
陆面过程	Noah Land Surface Model
长波辐射	Rapid Radiative Transfer Model
边界层	Yonsei University Planetary
气态化学机理	RAMD2
光解速率系数	Fast-J Photolysis

模拟采用三层网格嵌套，模拟区域如图 1 所示。水平分辨率分别为 27 km、9 km 和 3 km，对应水平网格点分别为 140×130、130×118 和 118×106。垂直层数为 46 层，模式顶高为 50 hPa。气象初始场及边界条件由 NCEP/NCAR 再分析资料得到。再分析资料时间分辨率为 6 h，水平空间分辨率为 1°×1°，垂直方向从 1000~10 hPa 共 26 层。化学物种初始场及边界条件采用 MOZART-4（Model for Ozone and Related Chemical Tracers, version 4, Emmons et al., 2010）模拟结果，其水平分辨率为 1.9°×2.5°，垂直分层为 56 层。

鉴于 WRF/Chem 模式自身没有考虑平流层化学反应，本文在模拟中采用美国大气研究中心地球系统实验室（NCAR/ESL）开发的上边界强迫方案。该方案将 WRF/Chem 模式顶层设置在对流层顶以上的某个高度（如 50 hPa），先将 WRF/Chem 模式

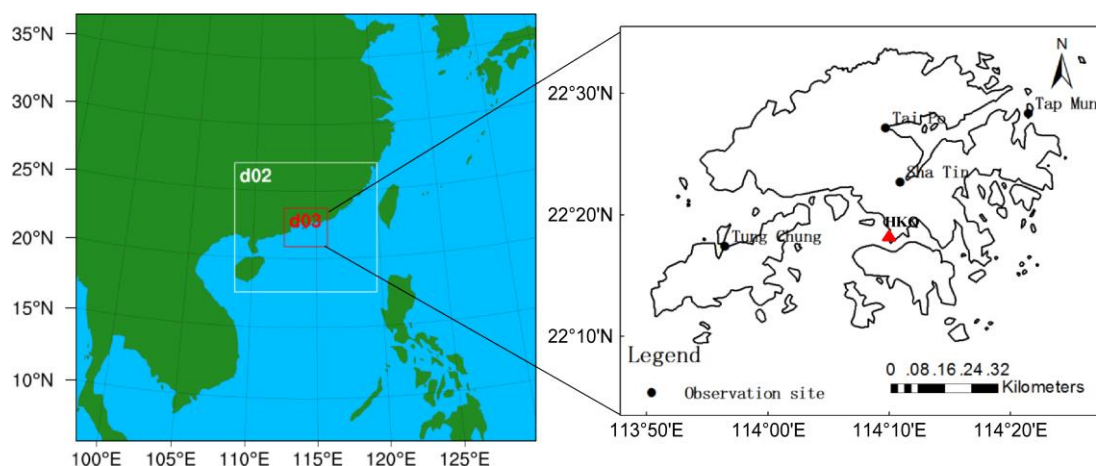


图1 WRF/Chem 模式模拟区域和四个地面空气质量监测站（黑点，站点信息见表3）、臭氧探空站（HKO，红三角）位置

Fig. 1 Triple-nested domains in the WRF/Chem (Weather Research and Forecasting model coupled with Chemistry), locations of four air quality monitoring sites (black dots, detailed descriptions are given in Table 3) and ozone sounding (HKO, red triangle) in Hong Kong

上边界层上的各关键化学物种浓度设置为各自气候平均值，然后采用与全球大气化学模式（如 CAM-Chem）相同算法将对流层顶至 WRF/Chem 模式上边界层之间大气层的各化学物种浓度（如 O_3 、 NO 、 NO_2 、 HNO_3 、 CH_4 、 CO 、 N_2O 及 N_2O_5 ）调整到与全球大气化学模式模拟值相一致，从而使 WRF/Chem 模式能较准确地模拟出平流层入侵对对流层各化学物种浓度的影响。

2.2 污染源及观测资料

污染源排放清单对于准确模拟对流层臭氧及其他相关大气化学物种起着重要作用。本次模拟采用清华大学主持开发的亚洲排放清单（MICS-Asia）（Lei et al., 2011; Li et al., 2015）。该排放源清单整合了 Multi-resolution Emission Inventory for China（MEIC）（中国）、Regional Emission inventory in Asia（REAS2）（日本、台湾）、PKU-NH3（中国北京大学的氨排放清单）、Clean Air Policy Support System（CAPSS）（韩国）、Argonne National Laboratory（ANL-India）（印度）等亚洲国家和地区的源排放数据。源清单包括电力、工业、民用、交通和农业等主要人为排放源。源排放数据为月平均，空间分辨率为 0.25° 。

定量评估模拟结果的观测资料包括：地面气象观测和垂直探空廓线（如温度、湿度和风等），以及臭氧的地面和探空资料。臭氧探空资料由香港天文台提供，探空施放地点为香港天文台所在地（ $22.31^\circ N$, $114.17^\circ E$ ），海拔 66 m，每周一次。臭氧探空仪为芬兰 Vaisala 电化学池（ECC-6A），探测

要素包括臭氧、温度、相对湿度和风等要素。为便于分析，对原始数据进行了等间距线性内插。此外，欧洲中心再分析数据 ERA-Interim 用于评估 WRF/Chem 模式高空场模拟结果。该资料时间分辨率为 6 小时，水平分辨率为 $0.125^\circ \times 0.125^\circ$ ，垂直方向为 37 层。

2.3 平流层—对流层交换（STE）通量计算

平流层—对流层交换通量是定量估算平流层入侵影响的重要指标。目前用于计算 STE 通量的方法主要包括 Wei 公式（Wei et al., 1987; Wirth et al., 1995）和箱式模型法（Hegglin and Shepherd, 2009）。前者考虑水平和垂直方向输送的贡献，计算较为复杂；后者假设水平方向净贡献近似为零，箱式内通量交换主要由垂直输送所引起，该法计算相对简单，过去较多用于全球尺度平流层—对流层交换通量的估算。本文在应用 Wei 公式估算平流层入侵通量的同时，探讨箱式模型法在区域尺度上的应用。

对流层顶高度是估算 STE 通量的重要参数。根据 WMO 推荐，并参考文献（Danielsen et al., 1968; Lamarque and Hess, 1994），本文选取 1 PVU 作为确定本地区对流层顶高度的位涡阈值。 p 坐标系下，计算 STE 通量的 Wei 公式为

$$F(m) = -\frac{\omega}{g} + \frac{1}{g} V_h \cdot \nabla p_p + \frac{1}{g} \frac{\partial p_p}{\partial t}, \quad (1)$$

其中， ω 为垂直速度， V_h 为水平速度， p_p 为对流层顶气压， g 为重力加速度。公式（1）右边第一项表示垂直运动引起的通量交换，第二项为水平运动引起的通量交换，第三项为对流层顶变化所引起的通

量交换。

箱式模型法是以 (22.31°N, 114.17°E) 为计算区域中心, 在对流层顶附近选取一定体积的箱子进行计算。箱式模型计算时, 水平范围为 $1^{\circ} \times 1^{\circ}$ (即 22°N~23°N, 113.5°E~114.5°E), 共有 1156 个网格点参与计算; 垂直方向上, 箱子上边界选在对流层顶以上 17 km 处, 下边界选在对流层顶以下 15.6 km 处, 其厚度为 1.4 km。计算时间范围为 2013 年 3 月 6 日 00~23 时 (北京时, 以下不特殊说明均为北京时)。假定 F_{in} 表示从上边界输入箱子的臭氧通量, F_{out} 表示从箱子输出的臭氧通量, 箱式模型计算时是假定水平方向上流入箱子和流出箱子的臭氧达到动态平衡, 从而忽略水平项贡献。STE 通量可表示为

$$F_{out} = F_{in} - \frac{dm}{dt}, \quad (2)$$

其中, dm/dt 为箱子内臭氧质量浓度 (单位: kg m^{-3}) 随时间的变化。

3 模拟结果分析和评估

3.1 平流层臭氧入侵事件发生的天气背景分析

臭氧探空资料显示, 2013 年 3 月 6 日香港地区对流层低层 2~4 km 处臭氧浓度出现明显升高 (达 75 ppb, 1 ppb = 1×10^{-9})。由图 2 给出的天气背景分析表明, 本次事件发生前两天中国东南部地区受高压天气系统控制, 之后高压系统由江西省向东移入东海, 3 月 6 日高压中心东移到日本南部, 香港处在高压底部。图 3 给出 200 hPa 高空天气图显示,

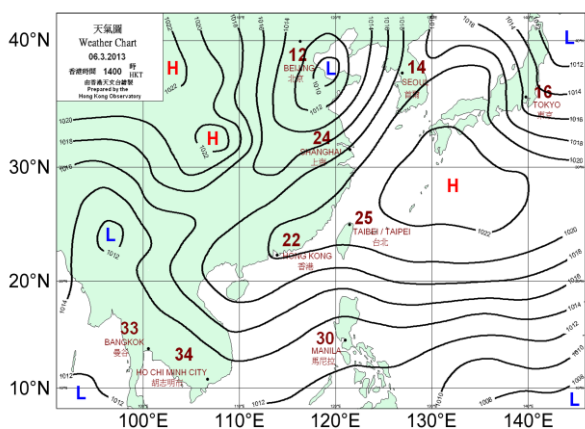


图 2 2013 年 3 月 6 日 14 时 (当地标准时间) 地面天气图 (由香港天文台提供)

Fig. 2 Surface weather chart (provided by Hong Kong Observatory) at 1400 LST (Local Standard Time) 6 March 2013

西南急流到达华南地区后, 向东北方向移动, 香港处在高空急流的入口区方 (图略)。受高空急流影响, 150~300 hPa 高空, 香港位于辐合区 (散度为 -10^{-5} s^{-1}), 高空辐合有利于下沉输送, 水汽含量低 (云图的暗色区), 表示平流层干燥空气入侵。

3.2 气象场和臭氧场模拟分析

气象场是确定平流层—对流层交换的重要因子。WRF/Chem 模式从 2013 年 3 月 4 日 08 时 (北京时) 开始, 共模拟 72 小时。图 4 比较了模拟风速、位温及臭氧浓度的纬度—高度剖面及相对应的 ECMWF 再分析资料, 其中粗实线为对流层顶高度 (1 PVU 位涡等值线)。模式较好地模拟了各要素空间分布特征, 如对流层顶高度存在从南向北降低的趋势, 且在 25°N 附近从 100 hPa 高度骤降到 400 hPa 高度左右。在 400~200 hPa 高度层存在风速大于 40 m s^{-1} 的急流区, 该急流区是导致对流层顶折叠的主要原因。高空急流区上方存在强垂直风切变, 急流入口区左侧为辐合区, 急流区所在高度层内位温水平梯度显著增加。强等位温梯度区通常与高空锋区相联系 (郑永光等, 2008)。平流层空气从左后方辐合区通过“急流锋”输送到右前方辐合区。高空辐合与低层辐散共同作用, 导致高空气流下沉。受其影响, 平流层臭氧向下输送到对流层中低层, 导致了本次平流层臭氧入侵。这一途径也是平流层入侵的主要机制之一 (Reiter, 1975; Shapiro, 1976, 1980)。

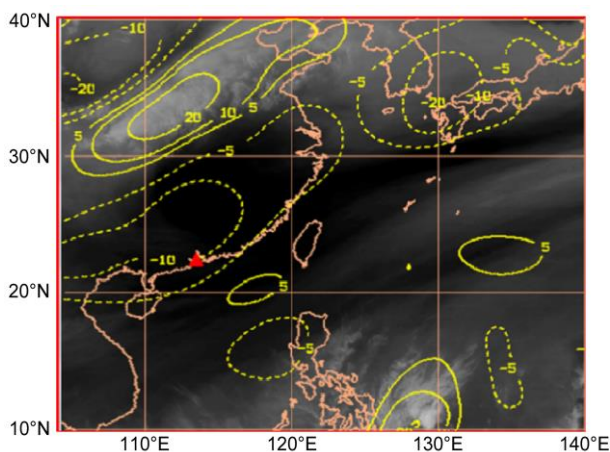


图 3 2013 年 3 月 6 日 14 时 (当地标准时间) GMS-5 卫星 (日本) 云图和 300~150 hPa 高空散度场平均 (等值线, 单位: 10^{-5} s^{-1}) 水平分布。红色三角表示香港

Fig. 3 The Japanese GMS-5 (Geostationary Meteorological Satellite 5) retrieved cloud coverage (shaded areas) and mean divergence (contours, units: 10^{-5} s^{-1}) over 300–150 hPa at 1400 LST 6 March 2013. Red triangle: Hong Kong location

图 5 为 WRF/Chem 模式模拟的 2013 年 3 月 6 日 14 时 300 hPa 高度上臭氧浓度和位势涡度水平分布及与 ECMWF 再分析资料的对比。可以看出, 模拟结果与 ECMWF 再分析资料吻合较好。在 25°N~35°N 范围内, 臭氧高浓度区存在明显的西南—东北向的带状分布, 最大值中心位于湖南、江西和浙江北部地区。位涡与臭氧浓度分布对应地很好, 即平流层入侵空气的高浓度臭氧对应高位涡区。此外, 图中高位涡区与图 3 中水汽图像暗区 (低值区) 相对应。

图 6 比较了 WRF/Chem 模式模拟的 300 hPa 高

度上相对湿度和风场水平分布及与 ECMWF 再分析资料。20°N~30°N 范围内存在一急流带, 与图 5 中臭氧浓度的西南—东北向分布类型相一致。且该急流区内相对湿度小于 10% (白色区域)。这些分布特征进一步表明这是一次受副热带急流显著影响的平流层入侵事件。

综上所述, 这次入侵过程中, 香港位于副热带急流入口区左侧, 处在负涡度平流区。高空辐合及低空辐散, 利于平流层空气入侵, 并下传进一步影响对流层中低层, 导致香港上空低层臭氧浓度明显升高 (浓度大于 70 ppb, 图 7d)。

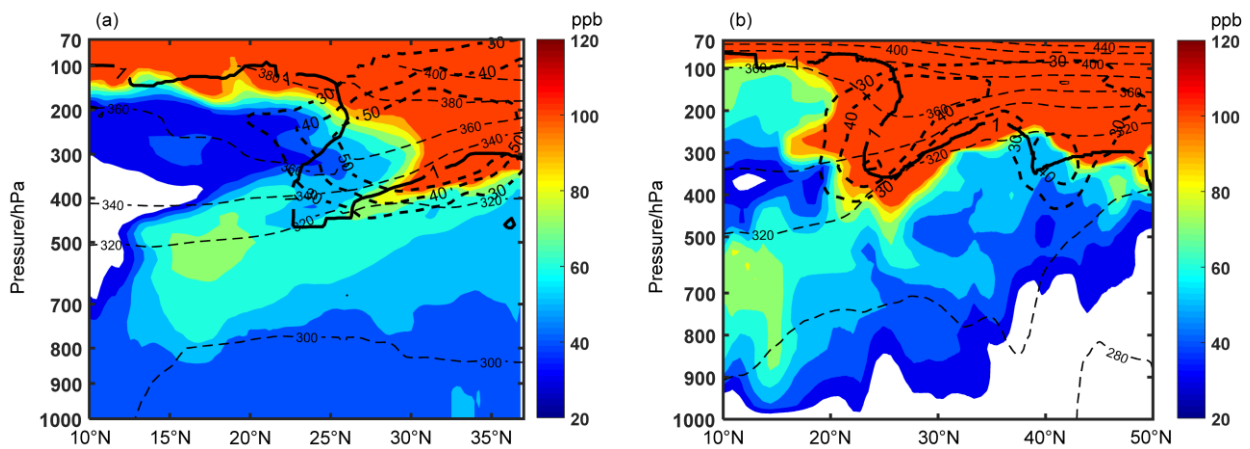


图 4 2013 年 3 月 6 日 14 时 (北京时) 香港 (114.17°E) 上空臭氧浓度 (填色区, 单位: ppb)、风速 (黑色细实线, 单位: m s^{-1})、位温 (黑色虚线, 单位: K)、对流层顶高度 (黑色粗实线) 的纬度—气压垂直剖面: (a) WRF/Chem 模拟; (b) ECMWF 再分析资料

Fig. 4 Latitude–pressure cross sections of ozone concentration (color shadings, units: ppb), wind speed (thin black solid lines, units: m s^{-1}), potential temperature (black dashed lines, units: K), and the height of the tropopause (bold black lines) at Hong Kong (114.17°E) at 1400 BJT (Beijing time) 6 March 2013: (a) WRF/Chem simulations; (b) ECMWF reanalysis data

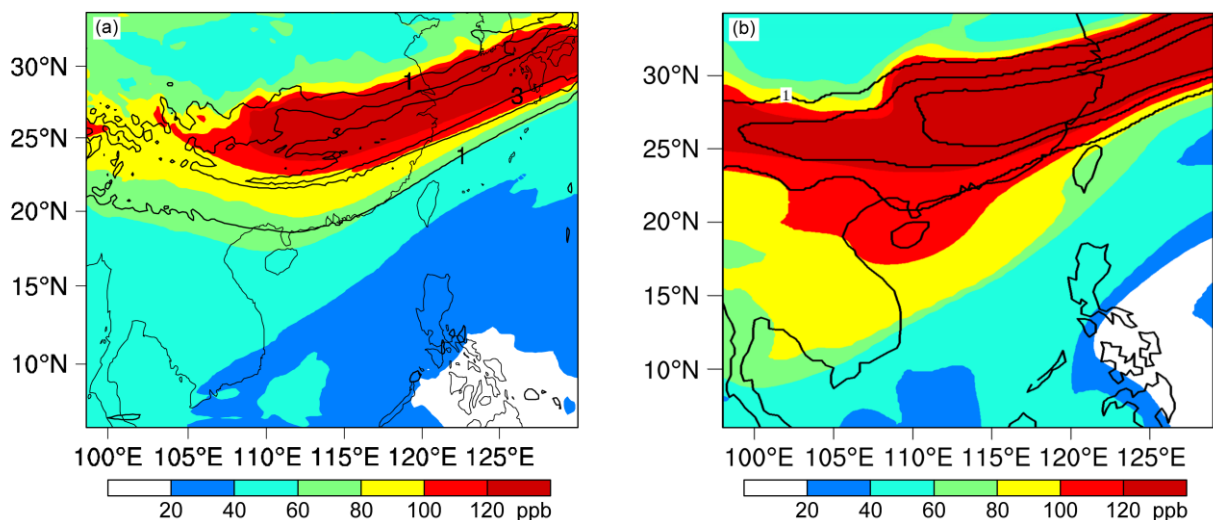


图 5 2013 年 3 月 6 日 14 时 (北京时) 300 hPa 高度上 (a) WRF/Chem 模式模拟、(b) ECMWF 再分析资料的臭氧浓度 (填色区, 单位: ppb) 和位势涡度 (黑色等值线, 单位: PVU)

Fig. 5 Ozone concentration (color shadings, units: ppb) and potential vorticity (black contours, units: PVU) at 300 hPa at 1400 BJT 6 March 2013: (a) WRF/Chem simulations; (b) ECMWF reanalysis data

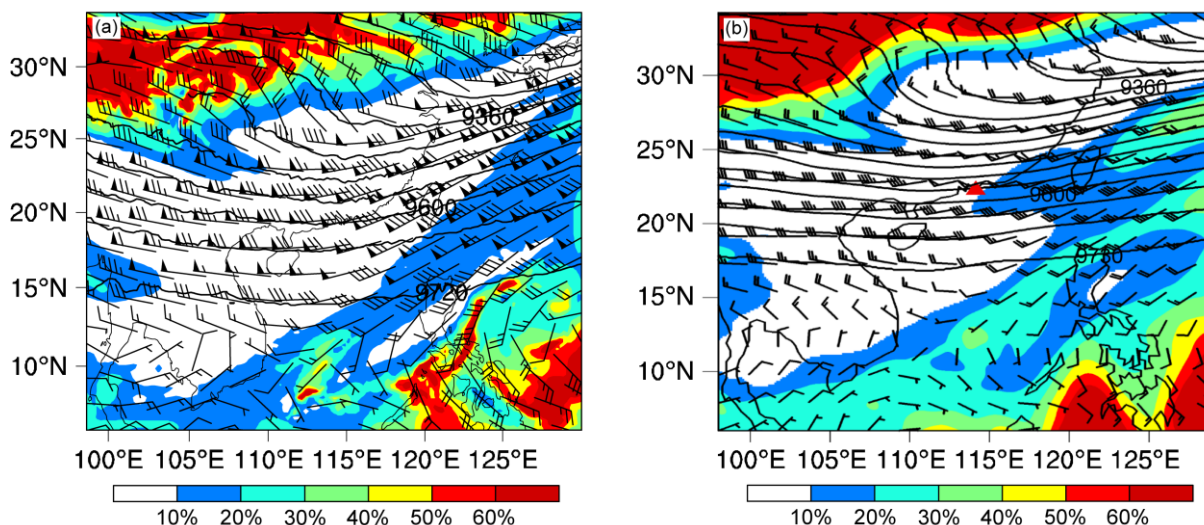


图 6 2013 年 3 月 6 日 14 时（北京时）300 hPa 高度上（a）WRF/Chem 模式模拟、（b）ECMWF 再分析资料的相对湿度（填色）、风场（风向杆）和位势高度场（黑色等值线，单位：gpm）

Fig. 6 Relative humidity (color shadings), wind speed (barbs, units: m s^{-1}), and geopotential height (contours, units: gpm) at 300 hPa at 1400 BJT 6 March 2013: (a) WRF/Chem simulations; (b) ECMWF reanalysis data

3.3 垂直廓线分布

图 7 比较了 2013 年 3 月 6 日 14 时（当地时间）WRF/Chem 模式模拟的温度、相对湿度、风速及 O_3 垂直廓线与探空资料，以及采用和不采用上边界方案时模拟结果的差异。探空时间为北京时间下午 13~14 时，模式给出的是 0600 UTC（北京时间 14 时）的结果，两者时间基本吻合。空间上，选取与香港天文台站最接近的网格点上模拟的垂直廓线与探空廓线进行对比。从图可以看出，WRF/Chem 模式较为准确地模拟了各气象要素的垂直分布。采用上边界处理方案后，平流层、对流层内臭氧浓度垂直分布的模拟得到明显改进，但近地层 4 km 以下臭氧浓度的模拟值比观测值偏低 10~15 ppb（图 7d）。这可能与边界层内风速模拟值偏高（图 7c）、臭氧前体物如氮氧化物和可挥发性有机化学物排放源清单不准确以及 WRF/Chem 模式对夹卷过程考虑不周等有关。对流层中上层大气相对湿度均小于 10%，平流层干空气已入侵到达对流层低层 5 km 处。8~14 km 处出现急流区，水平风速极大值达 50 m s^{-1} 。香港地处副热带地区，受经向低纬垂直环流（即哈德雷环流）影响，对流层上部至平流层盛行下沉气流。当高空急流存在时，急流轴上方为较强垂直风切变，急流入口区左侧为辐合区。平流层空气从左后方辐合区通过“急流锋”（通常与高空急流相联系）输送到右前

方的辐合区。高空辐合区与低层辐散区相联系，平流层空气在高空辐合低空辐散下沉气流影响下，将平流层臭氧向下输送到对流层中低层。该机制是导致该地区平流层臭氧入侵的重要途径之一（Reiter, 1975; Shapiro, 1976, 1980）。受其影响，高浓度臭氧从 16 km 高度向下传输，10~12 km 处出现浓度大于 100 ppb 的峰值，低层臭氧浓度超过 70 ppb。高浓度臭氧通过夹卷过程导致边界层臭氧浓度上升，近地层臭氧浓度达到 60 ppb。与探空曲线相比，模式在高层和低层均低估了实际臭氧浓度，但仍较准确地模拟出臭氧垂直廓线。表 2 给出了 WRF/Chem 模式模拟的探空廓线统计评估。模式较为准确地模拟垂直廓线，其与观测值之间的相关系数大于 0.7，通过了显著性水平为 0.01 的显著性检验。

表 2 臭氧浓度、相对湿度、风速、温度垂直廓线的 WRF/Chem 模式模拟与观测的相关系数 (R)、显著性水平 (P)、均方根误差 (RMSE)、平均偏差 (MB)

Table 2 Correlation coefficient (R), significance level (P), root-mean-square error (RMSE), and mean bias (MB) between WRF/Chem simulated and observed ozone concentration profile, relative humidity profile, wind speed profile, temperature profile

	相关系数 (R)	显著性水平 (P)	均方根误差 (RMSE)	平均偏差 (MB)
臭氧垂直廓线	0.73	<0.0001	22.4 ppb	10.3 ppb
相对湿度垂直廓线	0.76	<0.0001	21%	-8.2%
风速垂直廓线	0.9638	<0.0001	4.9 m s^{-1}	-1.7 m s^{-1}

温度垂直廓线0.998<0.00012.8℃2.2℃

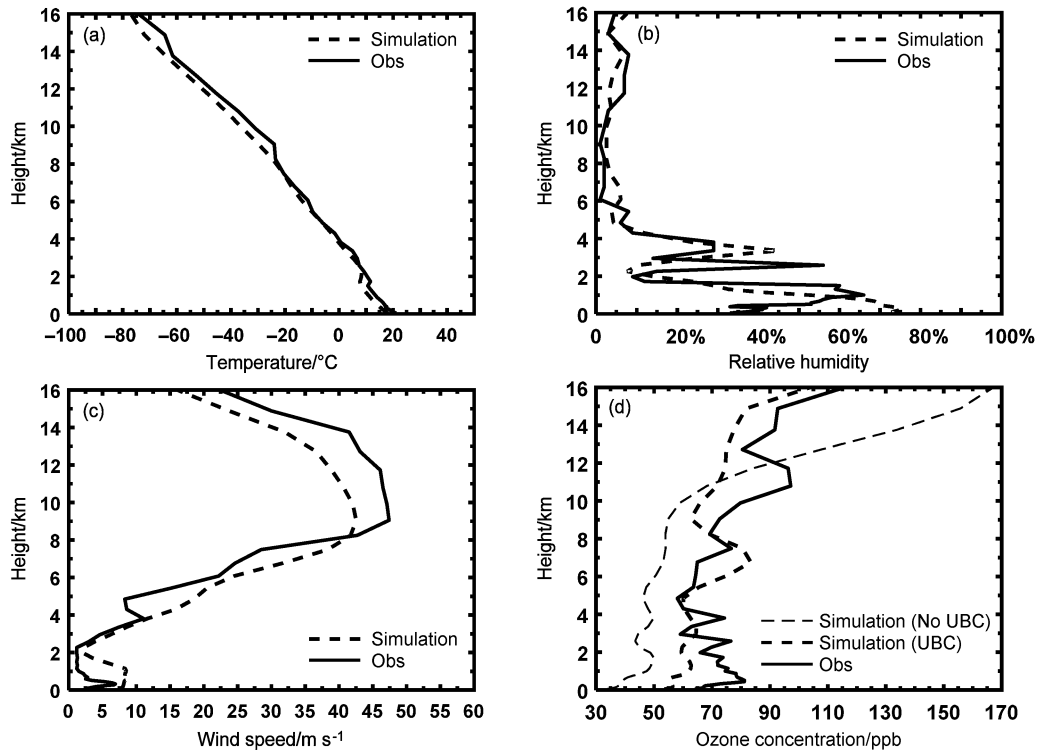


图 7 2013 年 3 月 6 日 14 时（当地标准时间）香港的（a）温度（单位：℃）、（b）相对湿度、（c）风速（单位： m s^{-1} ）、（d）臭氧浓度（单位：ppb）WRF/Chem 模式模拟和探空观测的对比。实线：观测值；虚线：WRF/Chem 模式模拟值

Fig. 7 Comparison of WRF/Chem simulations with observed (a) temperature (units: $^{\circ}\text{C}$), (b) relative humidity, (c) wind speed (units: m s^{-1}), and (d) ozone concentration (units: ppb) in Hong Kong at 1400 LST 6 March 2013

3.4 近地层气象要素和臭氧浓度模拟评估

以上垂直廓线（表 2）分析表明，平流层入侵对近地层臭氧有重要影响。图 8 进一步给出了 2013 年 3 月 5~6 日香港地区地面臭氧浓度的模拟与观测值对比。与前一天相比，3 月 6 日臭氧浓度白天极大值和夜间浓度分别升高 13.9 ppb 和 21.3 ppb。塔门站由于地处香港东北远郊，受人为自然排放源影响较小，其 O_3 浓度增加主要是由于边界层以上升高的 O_3 通过夹卷过程向下输送造成的（戚慧文等，2018）。与其他区域气象或空气质量模式相同，WRF/Chem 模式未能准确地考虑夹卷过程的影响（Moeng et al., 1999），因此无法模拟本次平流层臭氧入侵对边界层内臭氧浓度的影响。受来自东南方向的海洋性气团影响，加上人为排放源如一氧化氮（ NO ）处在一天中最低值，其他三个站点 6 日凌晨均观测到了浓度接近臭氧背景浓度（约 30~40 ppb）的日次高峰值。模式未能准确模拟复杂地形条件下风场特征，导致模拟本次峰值出现较大误差。表 3 是 WRF/Chem 模拟地面臭氧的统计评估结

果。模式虽未能模拟出夹卷过程对边界层内臭氧的

影响，但总体而言还是较为准确地模拟出臭氧的时空变化，且其相关系数均在 0.6 以上。

表 3 沙田站、塔门站、大埔站、东涌站的海拔高度以及 4 个站点的臭氧浓度 WRF/Chem 模式模拟结果与观测的相关系数（ R ）、显著性水平（ P ）、均方根误差（RMSE）、平均偏差（MB）

Table 3 The height of Sha Tin, Tap Mun, Tai Po, Tung Chung stations and the correlation coefficient (R), significance level (P), root-mean-square error (RMSE), and mean bias (MB) between WRF/Chem simulated and observed ozone concentration at four stations

	海拔高度/m	相关系数 (R)	显著性水平 (P)	均方根误差 (RMSE)/ppb	平均偏差 (MB)/ppb
沙田站	6	0.69	<0.0001	13.2	-7.1
塔门站	24	0.69	<0.0001	13.8	9
大埔站	15	0.76	<0.0001	18.7	-16.2
东涌站	46	0.72	<0.0001	22.1	-19.6

图 9 进一步给出了相对湿度、风速、 NO_x 、和 CO 模拟与观测的对比，其统计评估结果如表 4 所示。模式较准确地模拟了香港地区地面各个气象要

素的时间变化。其中 3 月 6 日相对湿度出现明显下

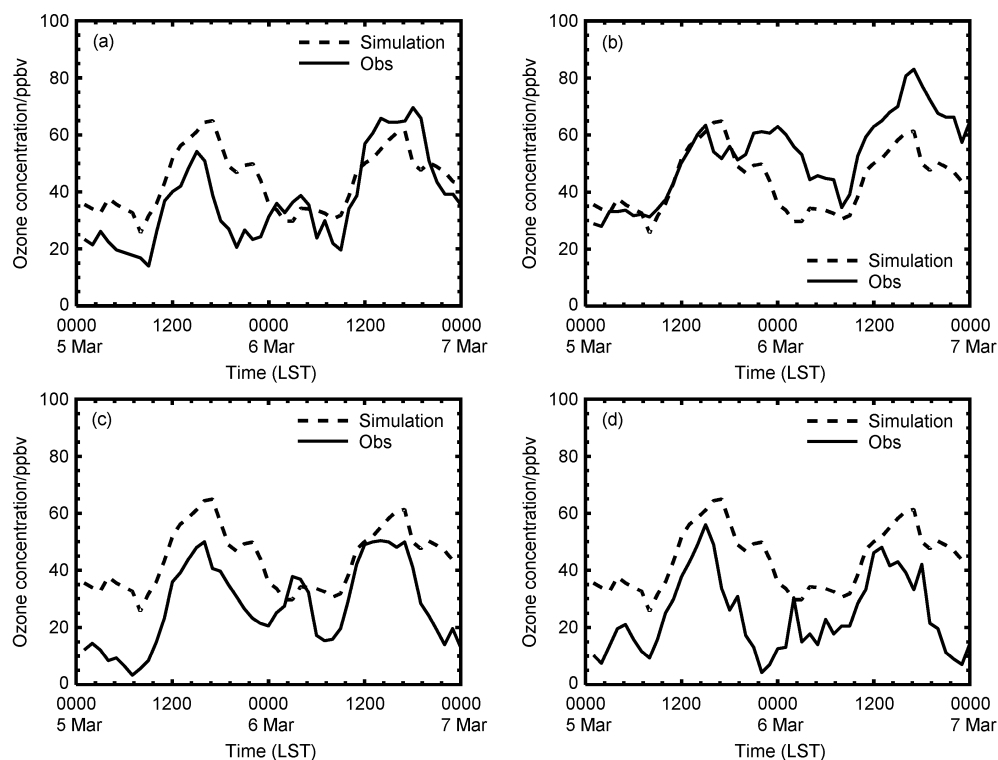


图8 2013年3月5~6日模拟(虚线)地面臭氧浓度(单位: ppb)与实测值(实线)对比: (a) 沙田站; (b) 塔门站; (c) 大埔站; (d) 东涌站
Fig. 8 Simulated (dashed lines) and observed (solid lines) surface ozone concentrations (units: ppb) during 5–6 March 2013 at (a) Sha Tin station, (b) Tap Mun station, (c) Tai Po station, and (d) Tung Chung station

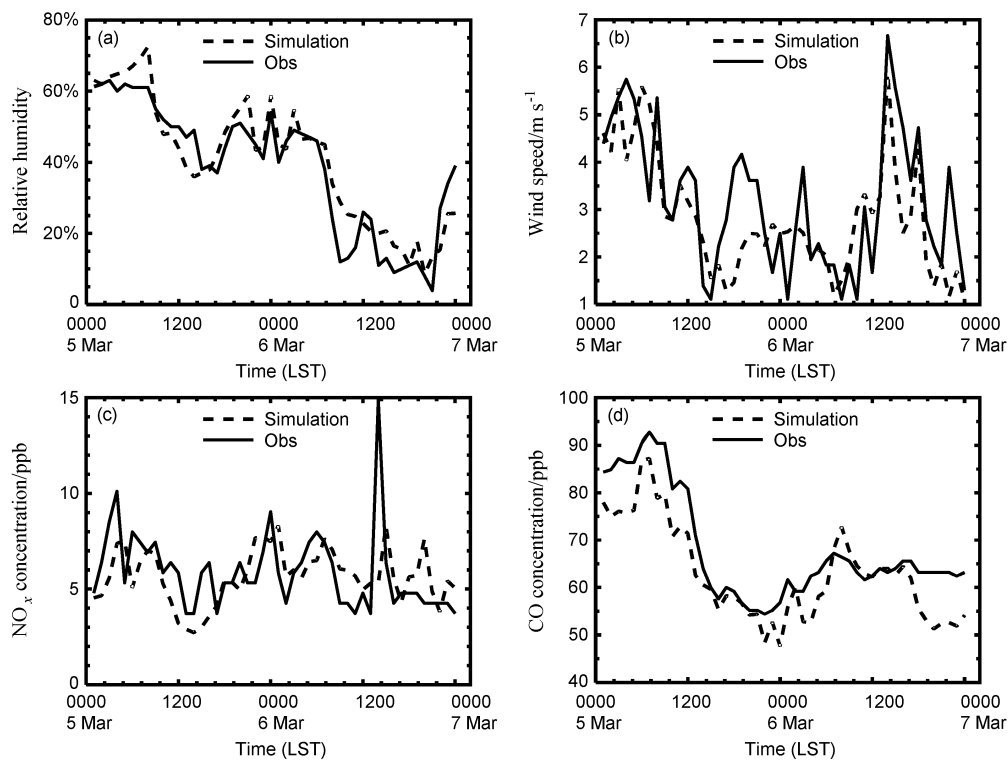


图9 2013年3月5~6日WRF/Chem模式模拟(虚线)与实测值(实线)塔门站的地面(a)相对湿度、(b)风速、(c) NO_x 浓度、(d) CO 浓度逐小时变化

Fig. 9 Simulated (dashed lines) and observed (solid lines) surface parameters at Tap Mun station during 5–6 March 2013: (a) Relative humidity; (b) wind speed; (c) NO_x concentration, (d) CO concentration

降（低于 20%），低相对湿度与高浓度臭氧时间段相吻合，表明 3 月 6 日塔门站观测到的臭氧浓度增加确实是由于来自平流层富含臭氧干燥空气块入侵所造成的。3 月 5 日到 6 日，除 6 日 14 时（北京时）外，其余时间风速均在 $1\sim 5\text{ m s}^{-1}$ 之间变化，且 5~6 日香港地区地面盛行风向均为东风，将海洋清洁空气输送到香港地区，水平输送对臭氧增加贡献不大。臭氧前体物的 NO_x 浓度虽在 14 时（北京时）出现一个快速的跳跃变化，但总体并无明显变化，同时 CO 浓度甚至在 3 月 6 日出现明显下降，表明该时段内光化学反应对臭氧浓度贡献没有增加。

表 4 香港地区 WRF/Chem 模式模拟的地面相对湿度、风速、 NO_x 浓度、CO 浓度与观测的相关系数（ R ）、显著性水平（ P ）、均方根误差（RMSE）、平均偏差（MB）

Table 4 Correlation coefficient (R), significance level (P), root-mean-square error (RMSE), and mean bias (MB) between WRF/Chem simulated and observed relative humidity, wind speed, NO_x concentration, and CO concentration

	相关系数 (R)	显著性水平 (P)	均方根误差 (RMSE)	平均偏差 (MB)
相对湿度	0.93	<0.0001	6.90%	-2.0%
风速	0.7	<0.0001	1.1 m s^{-1}	0.3 m s^{-1}
NO_x 浓度	0.58	<0.0001	1.9 ppb	0.7 ppb
CO 浓度	0.9	<0.0001	6.9 ppb	5.0 ppb

3.5 平流层—对流层交换臭氧通量计算

根据模拟区域最里层（第三层）的模拟结果，采用 Wei 公式和箱式模型分别计算了本次平流层入侵过程中通过对流层顶的 STE 通量，其结果分别为 $-1.42\times 10^{-3}\text{ kg m}^{-2}\text{ s}^{-1}$ 和 $-1.59\times 10^{-3}\text{ kg m}^{-2}\text{ s}^{-1}$ （如表 5 所示），负号表示平流层臭氧通过对流层顶向下输送。两种方法计算结果较为接近，且与崔宏等（2004）和 Ebel et al.（1996）的结果相当，小于 Spaete et al.（1994）和 Wirth（1995）的计算值，但大于 Lamarque and Hess（1994）、杨健和吕达仁（2003）等的计算结果。接着，以热力学方法（温度垂直递减率 $\leq 2\text{ }^{\circ}\text{C km}^{-1}$ ）（Reiter et al., 1975）计算了对流层顶高度，并利用 Wei 公式和箱式模型重新计算了 STE 通量，分别为 $-0.34\times 10^{-3}\text{ kg m}^{-2}\text{ s}^{-1}$ 和 $-1.15\times 10^{-3}\text{ kg m}^{-2}\text{ s}^{-1}$ ，与第一种对流层顶高度计算方法所得到的通量结果具有一定的可比性，但仍发现对流层顶高度的计算方法对 Wei 公式的影响比箱式模型大。

表 5 基于不同对流层顶高度、时间、底面积下的平均瞬时 STE 通量计算结果的对比。改自崔宏等（2004）

Table 5 Comparison of the mean instantaneous STE fluxes with different tropopause height, time, and base area. Adapted from Cui et al. (2004)

	对流层顶高度/PVU	时间/d	底面积/ km^2	平均瞬时 STE 通量/ $10^{-3}\text{ kg m}^{-2}\text{ s}^{-1}$
Lamarque and Hess (1994)	2	4	3.2×10^6	-0.4
Spaete et al. (1994)	3	1	1×10^6	-3.5
Wirth (1995)	2	3	8×10^5	-3.5
Ebel et al. (1996)	3	1.96	2.25×10^5	-1.4
杨健和吕达仁 (2003)	3.5	3.54	2.5×10^6	-0.49
崔宏等（2004）	2	6	1.53×10^7	-1.125
箱式模型（本文研究）	1	1	1.04×10^4	-1.59
Wei 公式（本文研究）	1	1	1.04×10^4	-1.42

4 结论

利用 WRF/Chem 模式，通过加入 UBC 上边界方案，克服了 WRF/Chem 模式未考虑平流层臭氧化学反应的不足，模拟了 2013 年 3 月 6 日发生在华南地区一次平流层入侵过程，并评估了其对平流层低层及地面臭氧浓度的影响。

通过与 ECMWF 再分析资料和探空资料对比，采用上边界方案后，WRF/Chem 模式能较好地模拟本次平流过程中高空温度、湿度、风和臭氧浓度的分布特征和各自的垂直廓线分布。结果表明，与副热带相关的高空急流是导致本次平流层入侵的重要原因。入侵过程中，华南地区处在副热带急流入口区左侧下沉区，平流层入侵将富含臭氧的干燥空气输送到对流层，导致对流层低层及地面臭氧浓度明显上升。如 3 月 6 日香港塔门站臭氧浓度极大值较前一日上升 21.3 ppb。地面气象场和化学物种（如 CO）的模拟观测对比分析，进一步证实了平流层入侵并下传到对流层低层是其升高的主要原因。

利用 Wei 公式和箱式模型计算了本次平流层入侵过程中 STE 通量。两种计算方法结果相当，分别为 $-1.42\times 10^{-3}\text{ kg m}^{-2}\text{ s}^{-1}$ 和 $-1.59\times 10^{-3}\text{ kg m}^{-2}\text{ s}^{-1}$ ，与前人研究结果相一致。采用热力学对流层顶高度时对 Wei 公式计算结果的影响大于箱式模型计算结果，但与采用动力学对流层顶高度所对应的计算结果具有一定的可比性。

本研究表明，为有效控制地面臭氧浓度，除了

开展区域合作,减少臭氧前体物人为源排放,平流层入侵的影响也不能忽略。

参考文献 (References)

- Barth M C, Lee J, Hodzic A, et al. 2012. Thunderstorms and upper troposphere chemistry during the early stages of the 2006 North American monsoon [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12: 11003–11026, doi:10.5194/acp-12-11003-2012.
- Bey I, Jacob D J, Logan J A, et al. 2001. Asian chemical outflow to the Pacific in spring: Origins, pathways, and budgets [J]. *J. Geophys. Res.*, 106: 23097–23113, doi:10.1029/2001JD000806.
- Chameides W L, Li X S, Tang X Y, et al. 1999. Is ozone pollution affecting crop yields in China? [J]. *Geophys. Res. Lett.*, 26: 867–870, doi:10.1029/1999GL900068.
- Chan L Y, Chan C Y, Liu H Y, et al. 2000. A case study on the biomass burning in Southeast Asia and enhancement of tropospheric ozone over Hong Kong [J]. *Geophys. Res. Lett.*, 27: 1479–1482, doi:10.1029/1999GL010855.
- 崔宏, 赵春生, 秦瑜, 等. 2004. 一次平流层—对流层交换过程中臭氧通量的估算 [J]. *科学通报*, 49: 506–513. Cui Hong, Zhao Chunsheng, Qin Yu, et al. 2004. An estimation of ozone flux in a stratosphere–troposphere exchange event [J]. *Chinese Science Bulletin*, 49: 167–174, doi:10.3321/j.issn:0023-074X.2004.05.018.
- 崔宏, 赵春生, 郑向东, 等. 2005. 2001 年春季临安地区对流层臭氧异常增加的一次过程分析 [J]. *大气科学*, 29: 259–266. Cui Hong, Zhao Chunsheng, Zheng Xiangdong, et al. 2005. Analysis of an extraordinary tropospheric ozone enhancement event at Lin-An in the spring of 2001 [J]. *Chinese Journal of Atmospheric Sciences (in Chinese)*, 29: 259–266, doi:10.3878/j.issn.1006-9895.2005.02.10.
- Danielsen E F. 1968. Stratospheric–tropospheric exchange based on radioactivity, ozone and potential vorticity [J]. *J. Atmos. Sci.*, 25: 502–518, doi:10.1175/1520-0469(1968)025<0502:STEBOR>2.0.CO;2.
- Dickerson R R, Doddridge B G, Kelley P, et al. 1995. Large-scale pollution of the atmosphere over the remote Atlantic Ocean: Evidence from Bermuda [J]. *J. Geophys. Res.*, 100: 8945–8952, doi:10.1029/95JD00073.
- Ding A J, Wang T, Fu C B. 2013. Transport characteristics and origins of carbon monoxide and ozone in Hong Kong, South China [J]. *J. Geophys. Res.*, 118: 9475–9488, doi:10.1002/jgrd.50714.
- Emmons L K, Apel E C, Lamarque J F, et al. 2010. Impact of Mexico City emissions on regional air quality from MOZART-4 simulations [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10: 6195–6212, doi:10.5194/acp-10-6195-2010.
- Ebel A, Elbern H, Hendricks J, et al. 1996. Stratosphere–troposphere exchange and its impact on the structure of the lower stratosphere [J]. *Journal of geomagnetism and geoelectricity*, 48 (1): 135–144.
- Fishman J, Crutzen P J. 1978. The origin of ozone in the troposphere [J]. *Nature*, 274: 855–858, doi:10.1038/274855a0.
- Grell G A, Peckham S E, Schmitz R, et al. 2005. Fully coupled “online” chemistry within the WRF model [J]. *Atmos. Environ.*, 39: 6957–6975, doi:10.1016/j.atmosenv.2005.04.027.
- Hegglin M I, Shepherd T G. 2009. Large climate-induced changes in ultraviolet index and stratosphere-to-troposphere ozone flux [J]. *Nature Geoscience*, 2: 687–691, doi:10.1038/ngeo604.
- Jacob D J, Logan J A, Murti P P. 1999. Effect of rising Asian emissions on surface ozone in the United States [J]. *Geophys. Res. Lett.*, 26: 2175–2178, doi:10.1029/1999GL900450.
- Kim J H, Lee H. 2010. What causes the springtime tropospheric ozone maximum over Northeast Asia? [J]. *Advances in Atmospheric Sciences*, 27: 543–551, doi:10.1007/s00376-009-9098-z.
- Lamarque J F, Hess P G. 1994. Cross-tropopause mass exchange and potential vorticity budget in a simulated tropopause folding [J]. *J. Atmos. Sci.*, 51: 2246–2269, doi:10.1175/1520-0469(1994)051<2246:CTMEAP>2.0.CO;2.
- Langford A O, Brioude J, Cooper O R, et al. 2012. Stratospheric influence on surface ozone in the Los Angeles area during late spring and early summer of 2010 [J]. *J. Geophys. Res.*, 117: D00V06, doi:10.1029/2011JD016766.
- Lei Y, Zhang Q, Nielson C, et al. 2011. An inventory of primary air pollutants and CO₂ emissions from cement production in China, 1990–2020 [J]. *Atmos. Environ.*, 55: 147–154, doi:10.1016/j.atmosenv.2010.09.034.
- 李丹, 卞建春, 范秋君. 2014. 东亚一次典型切断低压引起的平流层空气深入入侵过程的分析 [J]. *中国科学: 地球科学*, 44: 2315–2327. Li Dan, Bian Jianchun, Fan Qiujun. 2014. A deep stratospheric intrusion associated with an intense cut-off low event over East Asia [J]. *Science China Earth Sciences*, 58: 116–128, doi:10.1007/s11430-014-4977-2.
- Li J F, Lu K D, Li J, et al. 2014. Fast increasing of surface ozone concentrations in Pearl River Delta characterized by a regional air quality monitoring network during 2006–2011 [J]. *Journal of Environmental Sciences*, 26: 23–36, doi:10.1016/S1001-0742(13)60377-0.
- Li M, Zhang Q, Kurokawa J, et al. 2015. MIX: A mosaic Asian anthropogenic emission inventory for the MICS-Asia and the HTAP projects [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15: 34813–34869, doi:10.5194/acpd-15-34813-2015.
- Li Q B, Jacob D J, Fairlie T D, et al. 2002. Stratospheric versus pollution influences on ozone at Bermuda: Reconciling past analyses [J]. *J. Geophys. Res.*, 107: ACH 1–1–ACH 1–16, doi:10.1029/2002JD002138.
- Lin M Y, Fiore A M, Cooper O R, et al. 2012. Springtime high surface ozone events over the western United States: Quantifying the role of stratospheric intrusions [J]. *J. Geophys. Res.*, 117: D00V22, doi:10.1029/2012JD018151.
- Lin M Y, Fiore A M, Horowitz L W, et al. 2015. Climate variability modulates western US ozone air quality in spring via deep stratospheric intrusions [J]. *Nature Communications*, 6: 7105.
- Lin Y L, Farley R D, Orville H D. 1983. Bulk parameterization of the snow field in a cloud model [J]. *J. Climate Appl. Meteor.*, 22: 1065–1092, doi:10.1175/1520-0450(1983)022<1065:BPOTSF>2.0.CO;2.
- Liu H Y, Jacob D J, Chan L Y, et al. 2002. Sources of tropospheric ozone along the Asian Pacific Rim: An analysis of ozonesonde observations [J]. *J. Geophys. Res.*, 107: ACH 3–1–ACH 3–19, doi:10.1029/2001JD002005.
- Mlawer E J, Taubman S J, Brown P D, et al. 1997. Radiative transfer for inhomogeneous atmospheres: RRTM, a validated correlated-k model for the longwave [J]. *J. Geophys. Res.*, 102: 16663–16682, doi:10.1029/

- 97JD00237.
- Moeng C H, Sullivan P P, Stevens B. 1999. Including radiative effects in an entrainment rate formula for buoyancy-driven PBLs [J]. *J. Atmos. Sci.*, 56: 1031–1049, doi:10.1175/1520-0469(1999)056<1031:IREIAE>2.0.CO;2.
- NRC. 1991. Rethinking the Ozone Problem in Urban and Regional Air Pollution [M]. New York: National Academies Press.
- Oltmans S J, Johnson B J, Harris J M, et al. 2004. Tropospheric ozone over the North Pacific from ozonesonde observations [J]. *J. Geophys. Res.*, 109: D15S01, doi:10.1029/2003JD003466.
- Penkett S A, Evans M J, Reeves C E, et al. 2004. Long-range transport of ozone and related pollutants over the North Atlantic in spring and summer [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 4: 4407–4454, doi:10.5194/acpd-4-4407-2004.
- 戚慧文, 包云轩, 黄建平, 等. 2018. 夹卷对郊外大气边界层内臭氧影响的数值模拟研究 [J]. *热带气象学报*, 34 (5): 713–720. Qi Huiwen, Bao Yunxuan, Huang Jianping, et al. 2018. Numerical simulation for impact of entrainment on ozone concentration in the rural atmospheric boundary layer [J]. *Journal of Tropical Meteorology*, 34 (5): 713–720, doi:10.10632/j.issn.1004-4965.2018.05.013.
- Reiter E R. 1975. Stratospheric–tropospheric exchange processes [J]. *Rev. Geophys.*, 13: 459–474, doi:10.1029/RG013i004p00459.
- Reiter R, Kanter H J, Sladkovic R. 1975. Measurement of airborne radioactivity and its meteorological application. [Air mass exchange between stratosphere and troposphere measured using cosmic-produced radionuclides as tracers] [R]. Technical Report.
- Safieddine S, Boynard A, Coheur P F, et al. 2014. Summertime tropospheric ozone assessment over the Mediterranean region using the thermal infrared IASI/MetOp sounder and the WRF-Chem model [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14: 10119–10131, doi:10.5194/acp-14-10119-2014.
- Shapiro M A. 1976. The role of turbulent heat flux in the generation of potential vorticity in the vicinity of upper-level jet stream systems [J]. *Mon. Wea. Rev.*, 104: 892–906, doi:10.1175/1520-0493(1976)104<0892:TROTHF>2.0.CO;2.
- Shapiro M A. 1980. Turbulent mixing within tropopause folds as a mechanism for the exchange of chemical constituents between the stratosphere and troposphere [J]. *J. Atmos. Sci.*, 37: 994–1004, doi:10.1175/1520-0469(1980)037<0994:TMWTFA>2.0.CO;2.
- Skamarock W C, Klemp J B, Dudhia J, et al. 2005. A description of the advanced research WRF version 2 [R]. NCAR Technical Note, NCAR/TN-468+STR.
- Spaete P, Johnson D R, Schaack T K. 1994. Stratospheric-tropospheric mass exchange during the President's Day storm [J]. *Mon. Wea. Rev.*, 121: 127–147.
- Stockwell W R, Middleton P, Chang J S, et al. 1990. The second generation regional acid deposition model chemical mechanism for regional air quality modeling [J]. *J. Geophys. Res.*, 95: 16343–16367, doi:10.1029/JD095iD10p16343.
- Suarez M J, Chou M D. 1994. An efficient thermal infrared radiation parameterization for use in general circulation models [C]/Technical Report Series on Global Modeling and Data Assimilation. Greenbelt: National Aeronautics and Space Administration, 3: 1603–1609.
- Sudo K, Takahashi M, Akimoto H. 2003. Future changes in stratosphere–troposphere exchange and their impacts on future tropospheric ozone simulations [J]. *Geophys. Res. Lett.*, 30: 2256, doi:10.1029/2003GL018526.
- Wang T, Wei X L, Ding A J, et al. 2009. Increasing surface ozone concentrations in the background atmosphere of Southern China, 1994–2007 [J]. *Atmos. Chem. Phys.*, 9: 6217–6227, doi:10.5194/acp-9-6217-2009.
- Wei M Y. 1987. A new formulation of the exchange of mass and trace constituents between the stratosphere and troposphere [J]. *J. Atmos. Sci.*, 44: 3079–3086, doi:10.1175/1520-0469(1987)044<3079:ANFOTE>2.0.CO;2.
- Wild O, Zhu X, Prather M J. 2000. Fast-J: Accurate simulation of in- and below-cloud photolysis in tropospheric chemical models [J]. *J. Atmos. Chem.*, 37: 245–282, doi:10.1023/A:1006415919030.
- Wirth V. 1995. Comments on “a new formulation of the exchange of mass and trace constituents between the stratosphere and troposphere” [J]. *J. Atmos. Sci.*, 52: 2491–2493, doi:10.1175/1520-0469(1995)052<2491:CONFOT>2.0.CO;2.
- 熊秋菊, 唐孝炎, 毕木天. 1984. 大气污染物对平流层臭氧的影响 [J]. *环境化学*, (5): 19–31. Xiong Qiuju, Tang Xiaoyan, Bi Mutian, et al. 1984. Effects of air pollutants on stratospheric ozone (in Chinese) [J]. *Environmental Chemistry (in Chinese)*, (5): 19–31.
- 许平平, 田文寿, 张健恺, 等. 2015. 春季青藏高原西北侧一次平流层臭氧向对流层传输的模拟研究 [J]. *气象学报*, 73: 529–545. Xu Pingping, Tian Wenshou, Zhang Jiankai, et al. 2015. A simulation study of the transport of the stratospheric ozone to the troposphere over the northwest side of the Tibetan Plateau in spring [J]. *Acta Meteorologica Sinica (in Chinese)*, 73: 529–545, doi:10.11676/qxxb2015.037.
- 杨健, 吕达仁. 2003. 东亚地区一次切断低压引起的平流层、对流层交换数值模拟研究 [J]. *大气科学*, 27: 1031–1044. Yang Jian, Lü Daren. 2003. A simulation study of stratosphere–troposphere exchange due to cut-off-low over eastern Asia [J]. *Chinese Journal of Atmospheric Sciences (in Chinese)*, 27: 1031–1044, doi:10.3878/j.issn.1006-9895.2003.06.07.
- 郑永光, 陈炯, 陈尊裕, 等. 2008. 中国南部对流层中上层臭氧增加的气象场判识及臭氧变化的多尺度特征 [J]. *地球物理学报*, 51: 668–681. Zheng Yongguang, Chen Jiong, Chen Zunyu, et al. 2008. Identifying method of ozone enhancement and multi-scale characteristics of ozone change in the mid-upper troposphere over South China [J]. *Chinese Journal of Geophysics (in Chinese)*, 51: 668–681, doi:10.3321/j.issn:0001-5733.2008.03.008.