

2022 年夏季历史极端高温下我国近地表臭氧污染及气象成因分析

杨镇江, 李柯, 廖宏, 陈磊

南京信息工程大学环境科学与工程学院/江苏省大气环境监测与污染控制高技术研究重点实验室/江苏省大气环境与装备技术协同创新中心, 南京 210044

摘要 基于国家空气质量监测网和 ERA5 (欧洲中期天气预报中心第五代大气再分析数据集) 气象数据, 本文分析了 2022 年夏季历史极端高温条件下我国臭氧 (O_3) 污染的变化及主要的气象驱动因素。从空间分布上, 2022 年夏季全国 O_3 浓度呈现明显的反弹, 6 月的华北地区、7~8 月的南方地区较为明显; 从长期趋势上, 华北 2022 年 6 月 O_3 浓度为 2015 年以来同期第二高, 导致区域内平均超标 21 天; 长三角和四川盆地 2022 年 7、8 月的 O_3 浓度均是 2015 年来同期最高。从前体物变化来看, 卫星数据显示 2022 年 NO_x 排放相对于 2019~2021 年无明显的变化, 同时南方地区 $HCHO$ 柱浓度的显著升高与温度变化十分一致, 表明 2022 年极端高温事件是导致 O_3 浓度异常偏高的主要驱动因素。具体来说, 2022 年 O_3 异常与温度异常的空间相关系数在 6~8 月份分别达 0.71、0.64 和 0.49, 且重点城市 O_3 的温度敏感性也比较高; 从环流系统来看, O_3 异常升高与副高控制下的高温、低湿的静稳天气有较强的时空一致性。特别地, 2022 年极端高温事件下 O_3 对温度响应与过去相比有所不同, 观测上逐日 O_3 与温度的高正相关关系在达到某个阈值后会消失, 但 2022 年华北和长三角在较高的温度下依然存在正相关关系。本研究强调了极端高温事件对 O_3 污染的影响的重要作用, 对我国复合污染协同治理提出了更严峻的挑战。

关键词 臭氧污染; 极端高温; 气象因素; 复合污染; 中国

文章编号

doi:10.3878/j.issn.1006-9895.2000.19000

Analysis of Surface Ozone Pollution in China Amid the Record Summertime Extreme Heat of 2022

YANG Zhenjiang, LI Ke, LIAO Hong, and CHEN Lei

收稿日期 2023-02-08; 网络预出版日期

作者简介 杨镇江, 男, 1999 年出生, 硕士研究生, 主要从事大气化学与气候变化领域的研究。E-mail: zhenjiang-yang@nuist.edu.cn

通讯作者 李柯, 教授 E-mail: keli@nuist.edu.cn

资助项目 国家自然科学基金项目 (42205114), 江苏省碳达峰碳中和科技创新专项资金 (BK20220031)

Funded by National Natural Science Foundation of China (Grant. 42205114) and Carbon peak and neutrality science and technology innovation special fund of Jiangsu province

Abstract In this study, we analyze surface ozone (O_3) pollution and its dominant meteorological drivers in China amid the record summertime extreme heat of 2022, using the Chinese national air quality network measurements and EAR5 reanalysis meteorological fields. Spatially, O_3 concentration in China holds a high level in summer of 2022, with strong positive anomalies over northern China in June and over southern China in July-August. For long-term trend, O_3 concentration in North China Plain (NCP) in June 2022 was the second highest among June months since 2015, resulting in the regionally-averaged ozone exceedance days of 21 days. In July-August 2022, O_3 concentration was the highest for the same months since 2015 both for the Yangtze River Delta (YRD) and the Sichuan Basin (SCB). In terms of ozone precursor changes, relative to 2019-2021, there was only slight change in satellite NO_2 columns in 2022 and the enhancement in satellite HCHO over southern China is consistent with temperature change, suggesting that the record summertime extreme heat of 2022 is the dominant driver of the O_3 enhancement. Specifically, the spatial correlation coefficients between O_3 and temperature anomalies in 2022 are 0.71, 0.64 and 0.49 for June, July, and August, respectively, and the O_3 sensitivity to temperature in major clusters is also relatively high. This enhancement of O_3 concentration also has a strong spatiotemporal consistency with the stagnant weather conditions featuring high temperature and low humidity under the control of the subtropical high. In particular, the O_3 -temperature relationship in 2022 is quite different from the previous years. As observed in 2019-2021, the strong positive correlation of O_3 -temperature is suppressed when reaching a high temperature threshold, but the positive correlation still persisted at extremely higher temperatures in 2022 in the NCP and YRD. This study highlights the importance role of extreme high temperature events on O_3 pollution, which poses a pressing challenge to the synergistic control of complex air pollution in China.

Key words Ozone pollution; Extreme heat; Meteorological influence; Complex air pollution; China

1 引言

近地表臭氧 (O_3) 污染不仅会增加人体呼吸系统疾病的发病率和死亡率 (Huang et al., 2018), 而且会对陆地生态系统及农作物产量造成损害 (Feng et al., 2020)。近十年, 我国近地面 O_3 污染问题日益凸显。《中国大气臭氧污染防治蓝皮书 2020》显示, 2019 年全国 337 个城

市以 O_3 为首要污染物的超标天数占总超标天数的 42%。据估算，目前 O_3 污染在我国每年可能造成约 154,000~316,000 人的过早死亡 (Malley et al., 2017)。而且 O_3 污染呈现典型的季节特征，我国东部地区 O_3 污染在夏季最为严重。夏季 O_3 污染控制也是当前我国大气污染防治的关键。

近地面 O_3 污染是由氮氧化物 ($NO_x = NO + NO_2$) 和挥发性有机物 (VOCs) 通过复杂的光化学反应形成 (Wang et al., 2017)，不利的气象条件 (比如高温、静稳天气等) 往往是 O_3 污染事件发生的重要因素。已有许多研究分析了 O_3 污染与气象条件的关系。从天气尺度上，不少研究在全国尺度上对 O_3 和局地气象变量的相关性进行了分析 (如 Chen et al., 2020; Han et al., 2020; Liu et al., 2020)。总体而言， O_3 浓度升高往往伴随着温度升高、湿度降低、云量减少、边界层升高等，但风向或者风速在不同地区对 O_3 的影响会有很大差异。尽管不同研究关注的气象要素有所侧重，但这些研究均强调了温度对 O_3 污染发生的重要影响。从 O_3 生成的化学反应机制角度来说，温度增加可以提高反应速率常数，进而促进 O_3 的生成。Li et al. (2020) 利用统计模型评估发现局地气象变量，特别是温度的上升，对 2013~2019 年我国夏季 O_3 增长的贡献可达 0.70 ppb/年。

从气候尺度上，最近研究发现华北地区的极端 O_3 污染与极端高温呈现复合出现的特征，会造成更加严重的健康风险 (Wang et al., 2021)。类似地，欧美地区发生的极端 O_3 污染主要还是由于高温热浪过程导致的。2003 年夏天欧洲出现了极端的 O_3 污染现象，Lin et al. (2020) 发现 2003 年极端干旱以及植被-大气化学相互作用过程是造成极端 O_3 污染过程的主要原因。2010 年秋天美国东南部出现了 O_3 浓度的极端高值，Zhang and Wang (2016) 发现极端高温和干燥天气条件下植被挥发性有机物排放增强可能是造成 O_3 急剧上升的原因。未来气候下的预估研究也显示出高温对 O_3 污染的重要作用，Shen et al. (2016) 根据 O_3 -温度的关系构建了统计模型，发现在 RCP4.5 情景下 2000~2050 年气候变化使得高 O_3 事件的发生频率会显著增加。因此，解析高温事件下 O_3 污染的变化特征对于厘清近地表 O_3 污染成因是非常关键的。

不过以往研究很少关注我国极端高温事件下 O_3 污染的演变规律。2022 年夏季，我国出现了历史罕见的高温过程，多地最高气温突破历史极值。例如，我国中东部区域平均的极端高温频次为 22 次，是 1979 年以来的最高值，远远高于气候态的 4.3 次 (孙博等, 2022)。根据中国气象局的统计显示 (<http://www.scio.gov.cn/xwfbh/gbwxfbh/xwfbh/qxj/Document/1731311/1731311.htm> [2022-11-03])，今年夏季 (6 月 13 日到 8 月 30 日) 是我国中东部自 1961 年有完整气象观测记录以来最严重的高温过程。尽管极端高温过程对社会经济等造成了严重的影响，但这也为从观测上研究我国极端高温和 O_3 污染的关系提供了良好的契机。

本文利用国家生态环境部地面监测网和 ERA5 气象再分析数据，分析了 2022 年夏季我国极端高温下 O_3 污染的演变特征，并探讨了高温气象条件与高 O_3 污染的联系，强调了极端高温事件对 O_3 影响的独特性规律，最后简要分析了极端高温下 O_3 -PM_{2.5} 的相关性。本文为深入理解极端高温与 O_3 的过程机制以及大气复合污染成因提供了观测基础。

2 数据资料

2.1 地面观测数据

本文用到的空气质量地面数据来自生态环境部的地面监测网，包括 O_3 、 $\text{PM}_{2.5}$ 逐小时浓度。全国空气质量监测网于 2013 年启动，国控站点现已覆盖全国的 300 多个城市共计 1500 多个站点。在本文中，逐日臭氧浓度采用 O_3 的日最大八小时滑动平均值（MDA8 O_3 ），逐日 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度采用的是 $\text{PM}_{2.5}$ 的 24 小时均值。MDA8 O_3 计算方法参考了《环境空气质量标准》（GB3095-2012）， O_3 浓度的单位由 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 在同一标准下转化为 ppbv，此单位与压强气温（参比状态）无关。需要指出的是 2018 年 8 月 31 日之前参比状态为标准状况（273 K，1013 hPa），2018 年 9 月 1 日之后更改为 298 K 和 1013 hPa。 O_3 超标天的统计标准是标准状况下的 $160 \mu\text{g}/\text{m}^3$ （即 75 ppbv）。

2.2 ERA5 再分析气象场数据

本文中使用的气象场资料为 ERA5 同化数据，由欧洲中期天气预报中心（European Centre for Medium-range Weather Forecasts, ECMWF）提供。ERA5 官网提供了高分辨率（ $0.1^\circ \times 0.1^\circ$ ）时空连续的气象场数据，文中使用了包括 2 m 气温、地表湿度、总降雨量、500 hPa 和 850 hPa 风场等数据，其中 2 m 气温为小时值，其余数据均为月均值（Hersbach et al., 2018）。

2.3 TROPOMI 卫星观测数据

为反映近几年臭氧前体物 NO_x 和 VOCs 排放的变化，我们使用了最新的高分辨率 TROPOMI 卫星反演的对流层 NO_2 和 HCHO 柱浓度数据。已有研究指出，卫星 NO_2 和 HCHO 能够较好反映我国夏季人为排放的变化（Shah et al. 2020; Li et al., 2020）。TROPOMI 是 2018 年 2 月开始运行的 Sentinel-5P（哨兵 5P）极轨卫星携带的监测仪，是当前水平分辨率最高的全球大气污染物监测卫星之一。本文使用的是 2019~2022 年夏季的对流层 NO_2 和 HCHO 月均柱浓度数据， NO_2 和 HCHO 柱浓度分别选取质量级数大于 0.75 和 0.5 的数据，这样确保能够去除云量大于 0.5 和质量不高的观测记录。下载网址为 <https://s5phub.copernicus.eu/dhus/> [2023-01-06]。

3 结果与讨论

3.1 2022 年夏季我国近地表 O_3 污染特征

为了探究 2022 年夏季我国 O_3 污染的基本特征，图 1 展示了 2022 年夏季我国 325 个城市的逐月近地表 MDA8 O_3 浓度及超标天数的空间分布。总体而言，2022 年 6 月 O_3 污染最为严重，在我国华北及周边大范围区域内的城市月均 MDA8 O_3 超过了 80 ppbv，月均值最高超过 105 ppbv。在长江以南和东北地区月均 O_3 浓度不高。全国来说，6 月份有 219 个城市至少出现了 1 次 O_3 超标天，占城市总数量约 2/3，并在其中 48 个城市的 O_3 超标天数量大于 20 天。超

标天的高值区与浓度高值区一致，在华北平原及周边有超过 20 个城市的月超标天总数大于 25 天，并在其中两个城市高达 30 天（超标率 100%），显示出 6 月华北平原 O₃ 污染的严重性。

2022 年 7 月 O₃ 浓度在华北区域明显降低，但在四川盆地、珠三角地区显著增加。在华北、四川东部以及长三角地区的部分城市月均 MDA8 O₃ 超过 70 ppbv。全国范围内，7 月出现 O₃ 超标的城市进一步增加到 227 个，并在四川盆地和华北的 9 个城市 O₃ 超标天多于 20 天。南方地区尤其是珠三角地区也出现了 O₃ 超标天，最高达 13 天。2022 年 8 月 O₃ 污染形势和 7 月类似，华北地区大面积 O₃ 污染略有缓解，全国当月出现超标天的城市下降到 202 个。O₃ 浓度在长三角地区和四川盆地最高，最高值分别为 81 和 85 ppbv，相应的最大超标天数分别为 20 和 23 天。

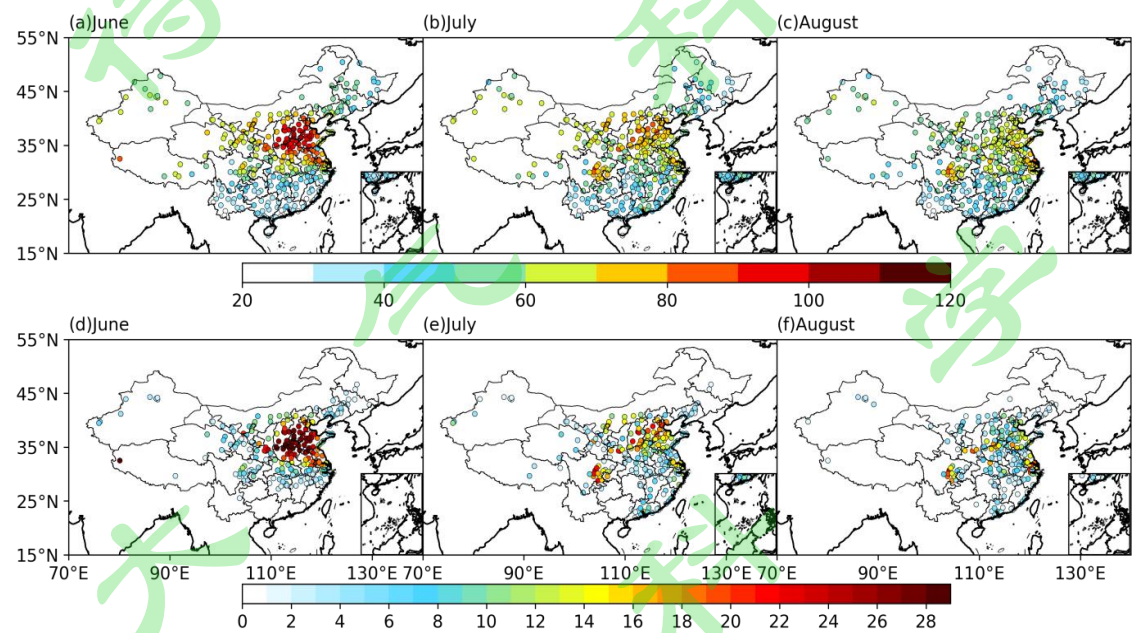


图 1：2022 年夏季我国月均 MDA8 O₃ 浓度（a-c，单位：ppbv）和总超标天数（d-f，单位：天）

Fig 1: Monthly mean concentrations of MDA8 O₃ (a-c, unit: ppbv) and the number of ozone exceedance days in each month (d-f, unit: days) in summer 2022 over China

图 2（a-c）给出了 2022 年夏季 MDA8 O₃ 相对于 2015~2021 均值的异常值。自 2013 年起我国开始逐步建设地面空气质量监测网，直到 2015 年国控观测站点数量趋于稳定，为了保证 O₃ 数据的连续性，本文没有使用 2013~2014 年的观测数据。2022 年 6 月在华北平原、西北地区等（图 2a），MDA8 O₃ 月均浓度相对 2015~2021 年偏高，异常升高在河南、河北、山西交界处附近达到最大，最大月均异常值超过了 20 ppbv，而南方和东北地区的 O₃ 浓度较多年均值略微偏低。在 2022 年 7 月，月均 MDA8 O₃ 的异常高值区由华北南移至四川盆地、长三角一带，最高月均异常值可达 23 ppbv。O₃ 异常的高值区集中在四川地区附近，区域内多数城市站点的正异常超过 20 ppbv。8 月份与 7 月份的空间分布类似，只是 8 月长三角地区的最高正异常达到了 24 ppbv，而四川盆地地区的 O₃ 正异常相对于 7 月则有所减弱。

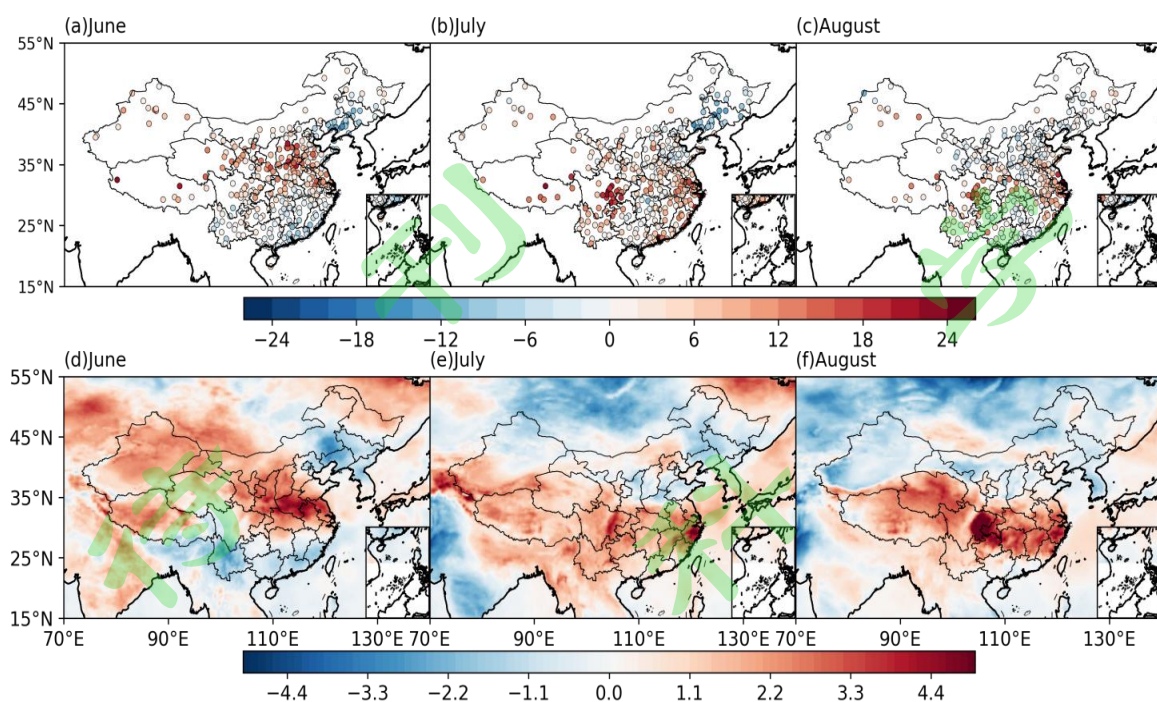


图 2: 2022 年夏季我国月均 MDA8 O_3 浓度相对于 2015~2021 平均的异常值 (a-c, 单位: ppbv) 和月均日最高气温相对于 2015~2021 平均的异常值 (d-f, 单位: $^{\circ}C$)

Fig 2: Anomalies in monthly mean values of MDA8 O_3 (a-c, unit: ppbv) and daily maximum temperature (d-f, unit: $^{\circ}C$) in summer 2022 relative to 2015-2021 averages

我们重点关注了人口最为聚集、 O_3 污染相对严重的四大城市群地区：华北平原（NCP）、长三角（YRD）、珠三角（PRD）和四川盆地（SCB）。为了厘清近年来各大城市群的夏季 O_3 变化特征及 2022 年 O_3 的异常情况，进一步定量统计了 2015 年以来夏季 MDA8 O_3 的变化情况（图 3）。需要指出的是，由于 YRD 地区 2022 年有部分城市缺测，为了确保数据的一致性，本文对该地区所有年份的统计值均只包含 2022 年有数据的城市。

总体而言，我国夏季 O_3 浓度在 NCP 地区最高，其次是 YRD 和 SCB 地区，浓度最低的是 PRD 地区。一方面这是由于 NCP 地区人为排放相对较高，另一方面是由于南方城市群（YRD、SCB、PRD）地区夏季通风条件相对较好、更长的夏季风雨季不利于 O_3 生成。从年际变化来看，2015~2019 年我国夏季 O_3 污染逐步上升，在 2019 年 6 月的 NCP 地区高达 97 ppbv。随着我国不断加强对夏季 O_3 污染的控制，整体上 2020~2021 年 O_3 浓度有所下降（Yin et al., 2021; Wang et al., 2022）。但是如图 3 所示，四大城市群在 2022 年夏季不少月份的 MDA8 O_3 相比 2020 和 2021 年显著上升。

具体来说，在 2022 年 6 月，NCP 地区的平均 O_3 浓度回升到了 2018 年的水平（区域内的月均值达 94 ppbv），为 2015 年以来同期第二高年份。不过其他几个城市群的 MDA8 O_3 与前两年无明显差别。2022 年 7 月，在 YRD 和 SCB 地区 O_3 浓度大幅度上升。在 YRD 地区，7 月 MDA8 O_3 浓度达 70 ppbv，为 2015 年来同期最高值。在 SCB 地区月均 MDA8 O_3 的上升更

为显著，由 2020 年的 52 ppbv 和 2021 年的 61 ppbv 上升到了 76 ppbv，为 2015 年来同期最高值。在 PRD 地区，O₃ 浓度相比往年只是略微上升，MDA8 O₃ 月均值为 51 ppbv。与 7 月份类似，8 月份 YRD 和 SCB 地区的 O₃ 浓度也是 2015 年来同期的最高值，分别达到 74 和 71 ppbv。

表 1 给出了 2015 年以来四大城市群夏季各月的超标天情况，O₃ 超标天和 MDA8 O₃ 浓度的趋势一致，均反映了 2022 年夏季我国 O₃ 污染的严重性。具体而言，在 2020~2021 年 O₃ 超标情况有所缓解的背景下，2022 年 6 月 NCP 地区的平均超标天回升到了 21.2 天，仅次于 2018 年的 22.9 天和 2019 年的 24.4 天。在 YRD 地区，7、8 月份的 O₃ 超标天数平均达到了 8.8 和 10.8 天，均处于同期最高水平。SCB 地区 7 月份的平均 O₃ 超标天数达到了前所未有的 10.9 天，比历史最高的 2017 年高出近 80%，均值为四大城市群里最高；8 月份的平均 O₃ 超标天有所回落，但仍达到了 6.7 天。

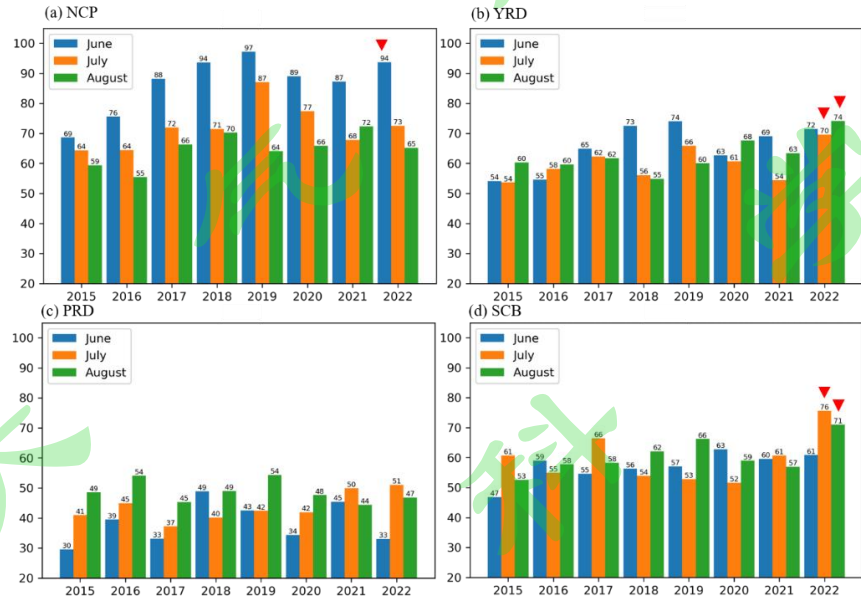


图 3：2015~2022 年夏季各月我国四大城市群区域平均的 MDA8 O₃ 时间序列（单位：ppbv）：（a）华北平原（34~41°N，113~119°E）；（b）长三角（30~33°N，119~122°E）；（c）珠三角（21.5~24°N，112~115.5°E）；（d）四川盆地（28.5~31.5°N，103.5~107°E）

Fig 3: Time series of monthly mean MDA8 O₃ in the four megacities during summers of 2015-2022 (unit: ppbv): (a) North China Plain (NCP; 34-41°N, 113-119°E), (b) Yangtze River Delta (YRD; 30-33°N, 119-122°E), (c) Pearl River Delta (PRD; 21.5-24°N, 112-115.5°E), (d) and the Sichuan Basin (SCB; 28.5-31.5°N, 103.5-107°E).

表 1 2015~2022 年夏季各月我国四大城市群区域平均的 O₃ 超标天 (>75 ppbv, 单位:天)

Table 1: Averaged ozone exceedance days in four megacities during summers of 2015-2022 in China (unit: days)

地区	月份	2015	2016	2017	2018	2019	2020	2021	2022
NCP	6 月	8.4	10.8	19.2	22.9	24.4	18.9	17.8	21.2
	7 月	6.2	5.3	9.5	9.2	18.4	11.9	7.8	9.1
	8 月	3.5	2.2	7.0	9.2	5.3	6.6	9.2	4.6
YRD	6 月	4.0	4.1	7.2	10.2	11.7	4.7	9.8	9.9
	7 月	4.5	6.7	8.6	4.0	8.1	3.6	3.5	8.8
	8 月	7.1	6.2	4.4	4.0	5.2	4.8	6.2	10.8
RPD	6 月	0.0	0.7	0.3	3.1	1.3	0.0	2.2	0.0
	7 月	1.2	2.7	2.0	1.2	1.3	1.3	3.1	4.4
	8 月	2.9	5.0	2.1	2.8	3.6	3.8	0.9	2.1
SCB	6 月	0.9	2.6	1.1	2.9	4.3	4.4	3.6	3.2
	7 月	5.0	1.6	6.1	1.6	1.4	1.6	3.4	10.9
	8 月	1.3	2.9	2.1	3.9	6.8	3.1	4.4	6.7

3.2 2022 年夏季卫星观测 O₃ 前体物的变化特征

基于对全国 O₃ 异常分布和四大城市群地区 O₃ 污染长期趋势的统计结果,我们发现在 2022 年 6 月的 NCP 地区、7~8 月的 YRD 和 SCB 地区 O₃ 浓度和超标天增加最为显著。排放和气象是 O₃ 浓度变化的两大驱动因素。近期研究指出,我国城市群地区夏季 O₃ 生成主要处于 VOC 控制区或过渡区 (Lu et al., 2019; Kang et al., 2021; Wang et al., 2021)。在 VOC 控制区,当 NO_x 排放降低或者 VOC 排放上升时都会导致 O₃ 上升;而在过渡区,无论是 NO_x 排放降低还是 VOC 排放降低,臭氧都会下降。首先,为反映近几年 O₃ 前体物 NO_x 排放的变化,我们使用了最新的高分辨率 TROPOMI 卫星反演的对流层 NO₂ 柱浓度数据。表 2 列出了 2019~2022 年 O₃ 异常升高的三大城市群夏季平均 NO₂ 柱浓度的数据,去探究是否 NO_x 排放变化对 2022 年 O₃ 有较大影响。

表 2 TROPOMI 卫星观测的华北平原 (NCP)、长三角 (YRD)、四川盆地 (SCB) 2019~2022 年夏季平均的对流层 NO₂ 柱浓度 (单位: 1×10^{15} molec/cm²)

Table 2: Summertime mean tropospheric NO₂ columns averaged over the NCP, YRD, and SCB regions over 2019-2022 from the TROPOMI satellite (unit: 1×10^{15} molec/cm²)

年份	NCP	YRD	SCB
2019	3.75	3.88	2.50
2020	3.33	3.62	2.39
2021	3.61	4.16	2.87
2022	3.59	3.92	3.08

从整体来看，除了 2020 年因为新冠疫情（Li et al., 2021）影响导致 NO_2 柱浓度有明显降低外，2019~2022 年期间 NO_2 柱浓度没有明显变化（表 2）。具体来说，在 NCP 地区，2022 年夏季平均 NO_2 柱浓度相比 2021 和 2019 年分别下降了 $0.02 \times 10^{15} \text{ molec/cm}^2$ 和 $0.16 \times 10^{15} \text{ molec/cm}^2$ ，占比不超过 2019 年夏季均值的 5%。在 YRD 地区，2022 年相对 2019 年上升了 $0.04 \times 10^{15} \text{ molec/cm}^2$ （1%），相对 2021 年小幅下降了 $0.24 \times 10^{15} \text{ molec/cm}^2$ （6%）。在 SCB 地区， NO_2 柱浓度呈现逐年上升的趋势。因此，无论是 NCP、YRD 地区 NO_2 柱浓度的略微下降还是 SCB 地区 NO_2 柱浓度的上升，即使城市群 O_3 生成处于 VOC 控制区或过渡区，相对小的 NO_x 排放变化无法解释 2022 年 O_3 浓度的大幅异常升高。

图 4 给出了 2019~2022 年夏季 HCHO 柱浓度的变化，因为 HCHO 是重要的 VOC 氧化产物，能够间接反映 VOC 排放的变化。在 6 月份，华北地区 HCHO 柱浓度呈现下降的态势，2022 年 HCHO 柱浓度值均小于前三年，因此 VOC 排放变化无法解释华北 6 月份臭氧的异常升高。在 7-8 月份，2022 年的 HCHO 柱浓度在四川盆地和长三角地区均是近几年的最高值，达 $20 \times 10^{15} \text{ molec/cm}^2$ ，这于该地区观测到的臭氧异常升高是一致的。人为源和自然源 VOC 排放都会对 HCHO 柱浓度有重要贡献，而且自然源 VOC 排放受温度等环境因素影响明显。我国自然源 VOC 排放主要集中在南方地区，排放强度显著高于北方地区（Ma et al., 2021）。根据后文中 2022 年 7-8 月温度异常的空间分布来看，2022 年四川盆地和长三角地区 HCHO 柱浓度的异常升高是与温度升高密切相关的，即温度异常也在四川盆地和长三角地区最为显著。因此，四川盆地和长三角地区自然源 VOC 排放升高可能对 O_3 浓度异常上升有重要贡献。

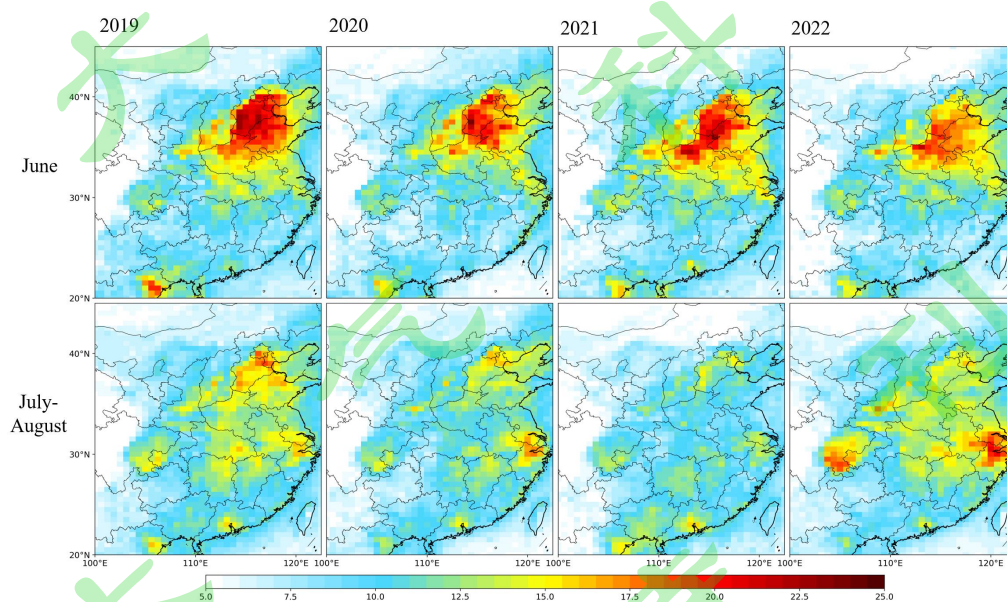


图 4: TROPOMI 卫星观测的 2019~2022 年我国东部夏季对流层 HCHO 柱浓度（单位： $1 \times 10^{15} \text{ molec/cm}^2$ ），上图和下图分别为 6 月和 7~8 月平均值

Fig 4: Summertime tropospheric HCHO columns from the TROPOMI instrument over eastern China during the period of 2019~2022 (unit: $1 \times 10^{15} \text{ molec/cm}^2$). The top panels and bottom panels are the values averaged over June

and July-August months, respectively.

3.3 2022 年夏季极端高温对 O₃ 污染的影响

除了人为排放的影响外，O₃ 污染的年际变化可能很大程度上受气象因素的影响 (Li et al., 2020)。特定的气候系统会导致我国夏季 O₃ 污染的加重，如大陆上空的反气旋带来晴朗高温、低湿度、低降雨量、低风速等气象条件 (Fu et al., 2019)。从全国尺度来看，在 2022 年夏季出现极端高温的背景下，O₃ 污染无论从分布广度和持续时间、强度上都明显增加。如图 2 (d-f) 所示，华北平原、四川盆地和长三角各月温度正异常和 O₃ 异常分布一致，全国 6、7、8 月 MDA8 O₃ 异常值与日最高气温异常值的空间相关系数 (r) 分别高达 0.71、0.64、0.49 (置信度水平大于 95%)。此外，八月份的湖南、江西等气温明显偏高的区域对应的 MDA8 O₃ 并不偏高，这可能与这些区域的人为排放相对城市群地区较低，O₃ 对温度敏感性相对较小有关 (Steiner et al., 2006; Bloomer et al., 2009)。上述分析表明 2022 年夏季各月的极端高温和 O₃ 异常在空间上存在很强的一致性，尤其是重点城市群地区。因此，为进一步探究 2022 年 O₃ 污染严重的城市群地区的气象条件，我们针对 6 月的华北地区、7~8 月的长三角和四川盆地进行了重点分析。

最新研究指出，2022 年 6 月我国华北极端高温事件频次、日最高温度平均值、高温日数相比平均气候态明显偏多或偏强大 (孙博等, 2022)。如图 5 (a) 所示，NCP 地区 MDA8 O₃ 和日最高气温异常 (相对于 2015~2021 同期平均) 的空间分布存在高度一致性，在观测站点日最高气温的月均异常值最高达 4.4 °C，MDA8 O₃ 最大异常值达 20.4 ppbv。就 NCP 整体而言，城市站点的月均 MDA8 O₃ 较过去 7 年均值高出了 8.1 ppbv，而相应站点的日最高气温平均上升了 1.7 °C，区域内 $\Delta \text{MDA8 O}_3 / \Delta T$ 为 4.7 ppbv/°C，显示出 O₃ 具有较高的温度敏感性。如图 5 (b) 所示，在 MDA8 O₃ 升高的区域，850 hPa 对应出现了明显的偏南风异常，不利于污染物扩散的同时还造成来自华东地区污染物的长距离输送，进一步加剧华北的 O₃ 污染，这一机制与之前的研究是一致的 (Gong et al., 2020)。值得注意的是，2022 年 6 月华北的东北部出现了 O₃ 的异常偏低，这与冷涡控制下的降水偏多有关 (图 5c)。

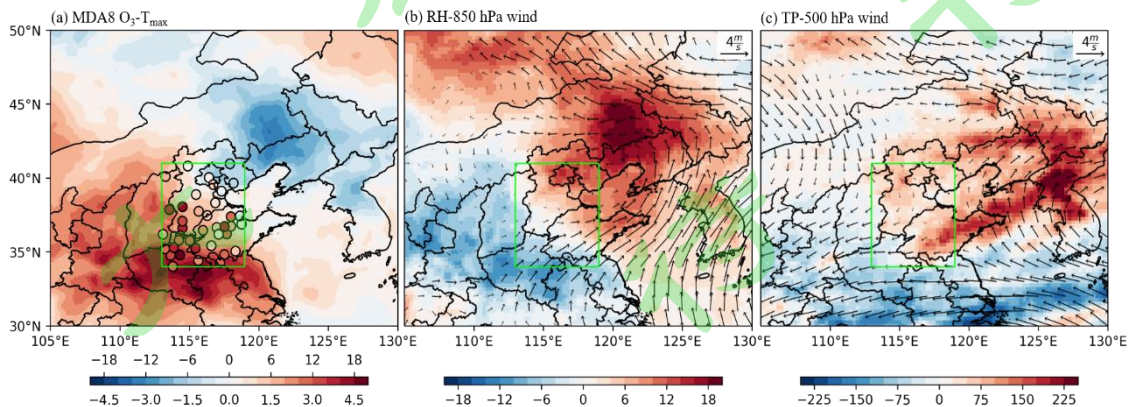


图 5: 2022 年 6 月我国北方的 O₃ 和气象场的异常值 (a) 观测的 MDA8 O₃ (打点，色标上方单位: ppbv) 与

日最高气温（填色，色标下方单位：℃）；（b）湿度（填色，单位：%）和 850 hPa 风场（c）月总降雨量（填色，单位：mm）和 500 hPa 风场。异常值是 2022 年 6 月相当于 2015~2021 年 6 月平均值，华北平原如绿色方框所示。

Fig 5: Anomalous values over North China in June 2022 for (a) MDA8 O₃ (unit: ppbv) and surface daily maximum air temperature (unit: °C), (b) wind field at 500 hPa and surface relative humidity (unit: %), (c) wind field at 850 hPa and total precipitation (mm). Anomalies are relative to 2015-2021 averages, and NCP is highlighted in green rectangle.

2022 年 7~8 月从西南地区到整个长江流域在异常偏强的副高控制下，出现了历史罕见的极端高温事件。如图 6 所示，SCB 地区出现了比 NCP 更为剧烈的高温异常，区域内温度和 O₃ 异常均呈现出西高东低的空间分布。在 SCB 地区，7、8 月的月均温度比 2015~2021 年高出 4.2 °C，相应的 MDA8 O₃ 上升了 15.2 ppbv，区域内 $\Delta \text{MDA8 O}_3 / \Delta T$ 为 3.6 ppbv/°C，说明 SCB 地区 MDA8 O₃ 对于温度的敏感性也较高，但略微小于 NCP 地区。在 YRD 地区，也出现了显著的高温异常，区域内 7、8 月的平均日最高气温较过去高出 2.8 °C，区域内城市站点 MDA8 O₃ 上升了 12.1 ppbv， $\Delta \text{MDA8 O}_3 / \Delta T$ 为 4.26 ppbv/°C。从高空来看，图 6c 中在 500 hPa 出现横跨中国南方的反气旋异常，SCB 和 YRD 地区处于副高控制的范围内，造成长期处于干燥（图 6b）、少雨（图 6c）的条件下，极有利于 O₃ 的生成；再加上副高控制区盛行下沉气流，也有利于 O₃ 的进一步累积。值得注意的是，相较于南方大部分地区，四川盆地出现局地的极端高温、低湿的现象。我国南方在大范围的副高控制下，盛行下沉气流，特别在 SCB 地区 500 hPa 垂直速度呈现显著的异常（+0.05 Pa/s，图未显示），同时降雨异常为 -137 mm（图 6c），上述气象要素异常值均为我国南方地区最大，同时在地形作用下叠加了中低层偏南风的暖干下山气流，这也可能是造成 SCB 地区 O₃ 升高相比 YRD 地区更为明显的原因。

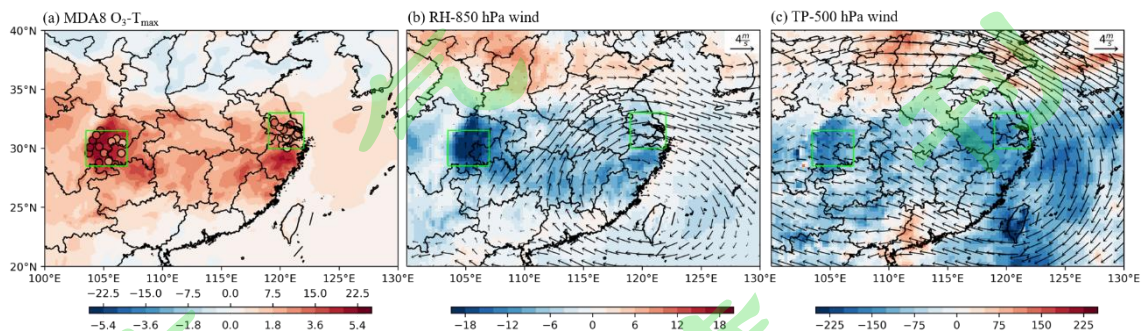


图 6: 2022 年 7~8 月我国南方的 O₃ 和气象场的异常值 (a) 观测的 MDA8 O₃ (打点，色标上方单位：ppbv) 与日最高气温（填色，色标下方单位：℃）；（b）湿度（填色，单位：%）和 850 hPa 风场（c）月总降雨量（填色，单位：mm）和 500 hPa 风场。异常值是 2022 年 7~8 月相当于 2015~2021 年 7~8 月平均值，长三角地区和四川盆地如绿色方框所示。

Fig 6: Anomalous values over South China in July-August 2022 for (a) MDA8 O₃ (unit: ppbv) and surface daily

maximum air temperature (unit: $^{\circ}\text{C}$), (b) wind field at 500 hPa and surface relative humidity (unit: %), (c) wind field at 850 hPa and total precipitation (mm). Anomalies are relative to 2015-2021 averages, and YRD and SCB are highlighted in green rectangle.

由此可见，2022 年我国 MDA8 O_3 出现明显升高的现象与 2022 年副高异常主导的极端高温、低湿等特征的静稳天气有较强的时空一致性。特别是，随着气候变暖和极端气温频次增加的背景下（Wang et al., 2019），对于未来 O_3 污染控制将提出更大的挑战。因此，下一节更进一步分析了 2022 年极端高温年份与正常年份（2019~2021）下 O_3 -温度之间的统计关系，为深入理解极端高温下 O_3 污染成因提供观测基础。

3.4 极端高温时 O_3 -温度的统计关系

过去的研究已经证实， O_3 的浓度和温度具有很好的正相关关系（Vukovich and Sherwell, 2003），这主要是由于温度增加可以提高 O_3 生成的化学反应速率、增加 O_3 前体物的自然源排放强度等；但是在极端高温的情况下， O_3 与温度的相关性可能会发生转变，即 O_3 生成受到抑制（Steiner et al., 2010）。Ning et al. (2022) 的统计分析表明，2015-2019 年，我国约 19% 的城市出现了这种相关性的转变，其中 80% 的城市的转变温度 $>34^{\circ}\text{C}$ 。在 2022 年极端高温的情况下，这种 O_3 与温度的相关性有何变化，对于预估未来全球气候变暖、极端气温频发的情景下 O_3 的变化趋势提供了一个很好的契机。

图 7 给出了 2022 年极端气温下（红色点）和最近三年（2019~2021，蓝色点） O_3 浓度与气温的散点图。在统计 MDA8 O_3 与日最高气温的关系时，将城市群内所有站点观测的气温每隔 0.5°C 为一组进行平均。依据 2019~2021 的观测数据，在 NCP 地区 6 月份 O_3 与日最高气温关系表现为明显的正相关关系，即 O_3 浓度随温度升高而单调上升；然而，日最高气温达 35.5°C 阈值之后这种正相关关系消失，随着日最高温度的上升 O_3 浓度不再有明显的上升趋势。不过，在 2022 年极端高温的背景下，这种 O_3 受抑制的现象并没有出现；如图 7a 红色打点所示，在日最高气温超过 35.5°C 这个阈值之后， O_3 浓度继续随温度上升。值得注意的是，对 NCP 地区而言，2019 年 6 月的月均日最高气温与 2022 年情况类似，即使在统计时不包括 2019 高温年的数据，对总体结论也基本没有影响。在 SCB 地区，无论是过去三年还是 2022 极端高温背景下，区域内 MDA8 O_3 和日最高气温在 39°C 阈值之前呈正相关，而在之后呈负相关。在 YRD 地区， 35.5°C 阈值之前 O_3 和日最高气温的同样表现为正相关性，在日最高气温达到 35.5°C 左右之后 O_3 同样会出现随着温度升高而浓度下降的现象。但是，在 2022 年极端高温的 7~8 月，这种 O_3 抑制的温度阈值呈现出一定的升高（ 37°C 左右）（图 7c）。

关于我国 MDA8 O_3 和日最高气温的正相关关系在达到一定温度阈值后转折的研究相对较少（Ning et al., 2022），这一现象的出现可能与 O_3 在大气中复杂的光化学过程或者气象过程相关。首先，尽管随着气温升高 BVOC 的排放速率会增强，但是在极端高温下植被气孔关闭，

生物挥发性有机化合物 (BVOC) 排放降低也很有可能影响地表 O_3 浓度 (Steiner et al., 2010); 或者南方地区高温往往伴随湿度增加反而会影响 O_3 光化学。太阳辐射作为影响臭氧生成的核心因素, 本文统计了地表净太阳辐射与温度的关系。发现在日最高气温到达一定阈值后地表净太阳辐射增加明显变缓, 这有可能是导致较高温下臭氧浓度增加被抑制的原因之一, 不过 2022 年极端高温条件下太阳辐射与温度的关系相比 2019~2021 变化较小 (图未显示)。

除了对 BVOC 有重要影响, 极端高温对土壤 NO_x 排放影响也很明显, 随着温度升高土壤 NO_x 排放迅速增加 (Lu et al., 2021)。在 2022 年极端高温下, 华北地区 O_3 与温度在较高的温度下依然保持正相关关系。在华北地区, 自然源 BVOC 排放相对较低而土壤 NO_x 排放较高, 因而在极端高温下 BVOC 抑制作用对 O_3 影响有限。而 2022 年长三角地区的正相关性发生转变的温度阈值升高, 在长三角较高的 BVOC 排放和土壤 NO_x 排放下, 极端高温可能通过增加土壤 NO_x 排放增强的 O_3 区域生成。

上述现象充分说明了在极端温度影响下, O_3 的生成可能会发生显著的变化, 且呈现有明显的区域特征, 这可能与所在地区臭氧前体物排放对温度的响应有关。不过上述推测需要在后续的研究中通过大气化学传输模式和更加全面的外场观测试验进一步阐明。由于在气候变暖的背景下, 极端气温的出现将会更加频繁, MDA8 O_3 和温度相关性转变的阈值随着极端高温的持续出现而升高现象可能对 O_3 污染治理带来更多的困难。

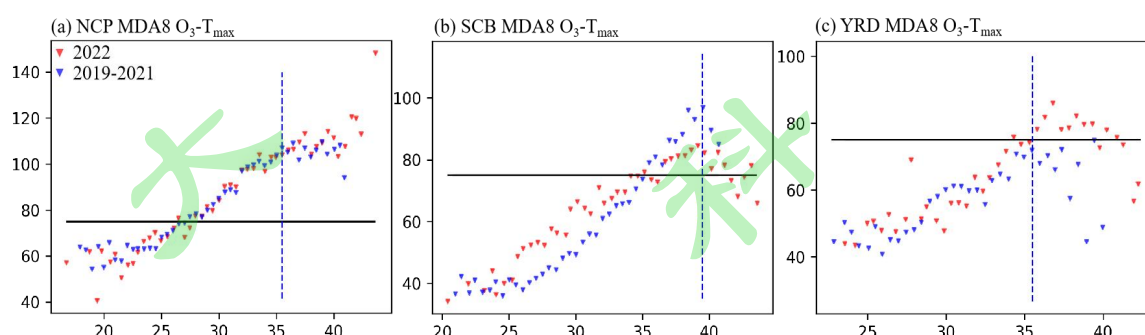


图 7: 逐日 MDA8 O_3 与日最高气温的散点图, 蓝色为 2019~2021 年的观测, 红色为 2022 年的观测: (a) 华北平原 (NCP) 六月日最高气温 (x 轴, 单位: $^{\circ}C$) 与 MDA8 O_3 (y 轴, 单位: ppbv); (b) 四川盆地 (SCB) 7~8 月日最高气温与 MDA8 O_3 ; (c) 长三角 (YRD) 7~8 月日最高气温与 MDA8 O_3 。黑色横线表示 75 ppbv 的臭氧空气质量标准值, 蓝色竖线表示 2019~2021 年相关性发生转变的日最高气温阈值。

Fig 7: Scatterplot of daily MDA8 O_3 and daily maximum temperature (2019-2021 values in blue and 2022 values in red): (a) June daily maximum temperature (x-axis in $^{\circ}C$) and MDA8 O_3 (y-axis in ppbv) in NCP; (b) July-August daily maximum temperature and MDA8 O_3 in SCB; (c) July-August daily maximum temperature and MDA8 O_3 in YRD. National ozone air quality standard of 75 ppbv in China is shown in black lines, and the shift of ozone-T correlation is highlighted in blue lines as determined by 2019-2021 observations.

此外, Schnell et al (2017) 在美国东部的研究表明, 伴随极端高温过程的 O_3 污染和 $PM_{2.5}$

污染有较高的共现概率，与单一极端事件单独作用相比，极端事件的组合会产生更大的影响或风险。同时，我国 $\text{PM}_{2.5}$ 和 O_3 的复合污染成因及协同控制也是当前研究关注的重点 (Dai et al., 2023)。因此，我们统计了我国 2022 年夏季出现极端高温的重点城市群地区的日均 $\text{PM}_{2.5}$ 与 MDA8 O_3 的相关性，其 R 值在 0.53-0.69 之间，说明在极端高温下两者的关系十分密切。在未来极端高温增加的情形下，我国大气复合污染需要进一步的关注与研究。

4 结论

本文的主要结论总结如下：

(1) 2022 年夏季全国 O_3 浓度呈现明显的反弹，在四大城市群中，华北地区 6 月的平均 O_3 浓度为 2015 年以来第二高（仅次于 2019 年）；长三角和四川盆地 2022 年 7 和 8 月的 O_3 浓度均是 2015 年来同期最高值。

(2) 臭氧前体物的卫星观测显示人为排放变化很难解释 2022 年臭氧浓度异常升高；从环流系统来看，重点地区 O_3 异常升高与副高控制下的高温、低湿的静稳天气有较强的时空一致性，因此 2022 年极端高温事件是导致 O_3 上升的主要驱动因素。

(3) 2022 年的极端高温事件下 O_3 与温度的关系也具有较为明显的不同。通常逐日 O_3 与温度的高正相关关系在达到某个阈值后会消失。然而 2022 年 6 月，在华北气温达到阈值 35.5°C 之后 O_3 仍随温度升高而上升。长三角地区 2022 年 7~8 月的 O_3 与温度的关系也呈现出类似的特征。

本研究从观测揭示了极端高温事件对 O_3 污染的重要作用，特别是强调了 2022 年历史极端高温事件下 O_3 污染随温度变化的独特性规律，为进一步深入理解我国大气 O_3 - $\text{PM}_{2.5}$ 复合污染提供了观测基础。后续研究亟需结合外场观测和大气化学传输模式去识别决定 O_3 -温度关系变化的主导因素，特别是人为源和自然源相互作用的可能机制。

参考文献 (Reference)

- Bloomer B J, Stehr J W, Piety C A, et al. 2009. Observed relationships of ozone air pollution with temperature and emissions[J]. *Geophysical research letters*, 36(9). doi:10.1029/2009GL037308
- Chen Z, Li R, Chen D, et al. 2020. Understanding the causal influence of major meteorological factors on ground ozone concentrations across China[J]. *Journal of Cleaner Production*, 242: 118498. doi:10.1016/j.jclepro.2019.118498
- Dai, H., Liao, H., Li, K, et al. 2023. Composited analyses of the chemical and physical characteristics of co-polluted days by ozone and $\text{PM}_{2.5}$ over 2013–2020 in the Beijing–Tianjin–Hebei region[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 23, 23–39, doi:10.5194/acp-23-23-2023

- Feng Z, Hu T, Tai A P K, et al. 2020. Yield and economic losses in maize caused by ambient ozone in the North China Plain (2014–2017)[J]. *Science of the Total Environment*, 722: 137958. doi:10.1016/j.scitotenv.2020.137958
- Fu Y, Liao H, Yang Y. 2019. Interannual and decadal changes in tropospheric ozone in China and the associated chemistry-climate interactions: A review[J]. *Advances in Atmospheric Sciences*, 36(9): 975-993. doi:10.1007/s00376-019-8216-9
- Gong C, Liao H, Zhang L, et al. 2020. Persistent ozone pollution episodes in North China exacerbated by regional transport[J]. *Environmental Pollution*, 265: 115056. doi:10.1016/j.envpol.2020.115056
- Han H, Liu J, Shu L, et al. 2020. Local and synoptic meteorological influences on daily variability in summertime surface ozone in eastern China[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 20(1): 203-222. doi:10.1016/j.envpol.2020.115056
- Hersbach H, Bell B, Berrisford P, et al. 2018. ERA5 hourly data on single levels from 1979 to present[J]. Copernicus Climate Change Service (C3S) Climate Data Store (CDS), 10.
- Huang J, Pan X, Guo X, et al. 2018. Health impact of China's Air Pollution Prevention and Control Action Plan: an analysis of national air quality monitoring and mortality data[J]. *The Lancet Planetary Health*, 2(7): e313-e323. doi:10.1016/S2542-5196(18)30141-4
- Kang M, Zhang J, Zhang H, et al. 2021. On the relevancy of observed ozone increase during COVID-19 lockdown to summertime ozone and PM_{2.5} control policies in China[J]. *Environmental Science & Technology Letters*, 8(4): 289-294. doi:10.1021/acs.estlett.1c00036
- Li G, Jiang L, Zhang Y, et al. 2014. The impact of ambient particle pollution during extreme-temperature days in Guangzhou City, China[J]. *Asia Pacific Journal of Public Health*, 26(6): 614-621. doi:10.1177/1010539514529811
- Li K, Jacob D J, Shen L, et al. 2020. Increases in surface ozone pollution in China from 2013 to 2019: anthropogenic and meteorological influences[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 20(19): 11423-11433. doi:10.5194/acp-20-11423-2020
- Li K, Jacob D J, Liao H, et al. 2021. Ozone pollution in the North China Plain spreading into the late-winter haze season[J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 118(10): e2015797118. doi:10.1073/pnas.2015797118
- Lin M, Horowitz L W, Xie Y, et al. 2020. Vegetation feedbacks during drought exacerbate ozone air pollution extremes in Europe[J]. *Nature Climate Change*, 10(5): 444-451. doi:10.1038/s41558-020-0743-y
- Liu P, Song H, Wang T, et al. 2020. Effects of meteorological conditions and anthropogenic precursors on ground-level ozone concentrations in Chinese cities[J]. *Environmental Pollution*, 262: 114366. doi:10.1016/j.envpol.2020.114366
- Lu H, Lyu X, Cheng H, et al. 2019. Overview on the spatial-temporal characteristics of the ozone formation regime in China[J]. *Environmental Science: Processes & Impacts*, 21(6): 916-929. doi:10.1039/C9EM00098D
- Lu X, Ye X, Zhou M, et al. 2021. The underappreciated role of agricultural soil nitrogen oxide emissions in ozone pollution regulation in North China[J]. *Nature communications*, 12(1): 5021. doi:10.1038/s41467-021-25147-9

- Ma M, Gao Y, Ding A, et al. 2021. Development and assessment of a high-resolution biogenic emission inventory from urban green spaces in China[J]. *Environmental science & technology*, 56(1): 175-184. doi:10.1021/acs.est.1c06170
- Malley C S, Henze D K, Kuylensstierna J C I, et al. 2017. Updated global estimates of respiratory mortality in adults ≥ 30 years of age attributable to long-term ozone exposure[J]. *Environmental health perspectives*, 125(8): 087021. doi:10.1289/EHP1390
- Miller N L, Hayhoe K, Jin J, et al. 2008. Climate, extreme heat, and electricity demand in California[J]. *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, 47(6): 1834-1844. doi:10.1175/2007JAMC1480.1
- Ning G, Wardle D A, Yim S H L. 2022. Suppression of Ozone Formation at High Temperature in China: From Historical Observations to Future Projections[J]. *Geophysical Research Letters*, 49(4): e2021GL097090. doi:10.1029/2009GL037308
- Schnell J L, Prather M J. 2017. Co-occurrence of extremes in surface ozone, particulate matter, and temperature over eastern North America[J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 114(11): 2854-2859. doi:10.1073/pnas.1614453114
- Shah V, Jacob D J, Li K, et al. 2020. Effect of changing NO_x lifetime on the seasonality and long-term trends of satellite-observed tropospheric NO₂ columns over China[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 20(3): 1483-1495. doi:10.5194/acp-20-1483-2020
- Shen L, Mickley L J, Gilleland E. 2016. Impact of increasing heat waves on US ozone episodes in the 2050s: Results from a multimodel analysis using extreme value theory[J]. *Geophysical research letters*, 43(8): 4017-4025. doi:10.1002/2016GL068432
- Steiner A L, Tonse S, Cohen R C, et al. 2006. Influence of future climate and emissions on regional air quality in California[J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 111(D18). doi:10.1029/2005JD006935
- Steiner A L, Davis A J, Sillman S, et al. 2010. Observed suppression of ozone formation at extremely high temperatures due to chemical and biophysical feedbacks[J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 107(46): 19685-19690. doi:10.1073/pnas.1008336107
- 孙博, 王会军, 黄艳艳, 等. 2022. 2022 年夏季中国高温干旱气候特征及成因探讨[J/OL]. *大气科学学报*: 1-9[2022-10-28]. doi:10.13878/j.cnki.dqkxxb.20220916003. Sun Bo, Wang Huijun, Huang Yanyan, et al., 2022, Characteristics and Causes of the Hot-Dry Climate Anomalies in China during Summer of 2022[J/OL]. *Transactions of Atmospheric Sciences*, 1-9[2022-10-28]. doi:10.13878/j.cnki.dqkxxb.20220916003.
- Vukovich F M, Sherwell J. 2003. An examination of the relationship between certain meteorological parameters and surface ozone variations in the Baltimore–Washington corridor[J]. *Atmospheric*

Environment, 37(7): 971-981. doi:10.1016/S1352-2310(02)00994-9

Wang P, Hui P, Xue D, et al. 2019. Future projection of heat waves over China under global warming within the CORDEX-EA-II project[J]. Climate dynamics, 53(1): 957-973.

doi:10.1007/s00382-019-04621-7

Wang P, Yang Y, Li H, et al. 2022. North China Plain as a hot spot of ozone pollution exacerbated by extreme high temperatures[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 22(7): 4705-4719.

doi:10.5194/acp-22-4705-2022

Wang T, Xue L, Brimblecombe P, et al. 2017. Ozone pollution in China: A review of concentrations, meteorological influences, chemical precursors, and effects[J]. Science of the Total Environment, 575: 1582-1596. doi:10.1016/j.scitotenv.2016.10.081

Wang T, Xue L, Feng Z, et al. 2022. Ground-level ozone pollution in China: a synthesis of recent findings on influencing factors and impacts[J]. Environmental Research Letters, 17(6): 063003.

doi:10.1088/1748-9326/ac69fe

Wang W, van der A R, Ding J, et al. 2021. Spatial and temporal changes of the ozone sensitivity in China based on satellite and ground-based observations[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 21, 7253–7269. doi:10.5194/acp-21-7253-2021

Yin H, Lu X, Sun Y, et al. 2021. Unprecedented decline in summertime surface ozone over eastern China in 2020 comparably attributable to anthropogenic emission reductions and meteorology[J]. Environmental Research Letters, 16(12): 124069.

doi:10.1088/1748-9326/ac3e22

Zhang Y, Wang Y. 2016. Climate-driven ground-level ozone extreme in the fall over the Southeast United States[J]. Proceedings of the National Academy of Sciences, 113(36): 10025-10030.

doi:10.1073/pnas.1602563113

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

doi:10.5194/acp-18-14095-2018