

# 中国及邻近地区污染排放对对流层臭氧 变化与辐射影响的研究

王卫国<sup>1</sup> 吴 润<sup>1</sup> 刘红年<sup>2</sup> 郭世昌<sup>1</sup> 陈新梅<sup>1</sup> 罗 燕<sup>1</sup>

1 云南大学资源环境与地球科学学院大气科学系, 昆明 650091

2 南京大学大气科学系, 南京 210093

**摘 要** 利用双向耦合的区域气候模式和大气化学模式系统, 研究了中国与邻近地区人为污染排放引起对流层臭氧变化和产生的辐射强迫。结果表明, 污染排放对对流层臭氧含量的影响有明显的季节变化, 对北方的影响不如南方显著, 西部的季节变化稳定且小于东部, 内陆污染地区各季节臭氧柱含量的变化量均较高。对整个模拟区域而言, 臭氧变化量的年平均值为 30.928 DU, 春季最大为 32.168 DU, 而空间分布变化在 12~38 DU 之间。臭氧变化量对北方地区辐射的影响较小, 而对低纬和华东地区影响较大, 臭氧变化量引起的晴空地气系统短波辐射强迫、长波辐射强迫的平均值分别是  $0.185 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$  和  $0.464 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ , 标准化短波辐射强迫与净辐射强迫值为  $0.006 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{DU}^{-1}$  和  $0.021 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{DU}^{-1}$ 。气候反馈过程对对流层臭氧含量的影响范围在  $-0.470 \sim 0.752 \text{ DU}$  之间, 包含气候反馈过程的区域年平均臭氧变化量是 30.942 DU。在气候反馈条件下, 臭氧变化量的短波和长波辐射强迫分别是  $0.249 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$  及  $0.482 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ , 标准化的短波与净辐射强迫值为  $0.008 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{DU}^{-1}$  和  $0.024 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{DU}^{-1}$ 。臭氧变化量导致地表温度的变化范围在  $\pm 0.80 \text{ K}$  之间。

**关键词** 区域气候模式 大气化学模式 污染排放 对流层臭氧 辐射强迫 气候效应

文章编号 1006-9895(2005)05-0734-13

中图分类号 P421

文献标识码 A

## Researches on the Influence of Pollution Emission on Tropospheric Ozone Variation and Radiation over China and Its Adjacent Area

WANG Wei-Guo<sup>1</sup>, WU Jian<sup>1</sup>, LIU Hong-Nian<sup>2</sup>,  
GUO Shi-Chang<sup>1</sup>, CHEN Xin-Mei<sup>1</sup>, and LUO Yan<sup>1</sup>

1 Department of Atmospheric Sciences, Yunnan University, Kunming 650091

2 Department of Atmospheric Sciences, Nanjing University, Nanjing 210093

**Abstract** A coupling model of regional climate model and atmospheric chemistry model has been used to simulate increments of tropospheric ozone, radiation and climate effects of ozone which are caused by anthropogenic emission over China and the Indo-China Peninsula. The results have shown that the effects of pollution emission on tropospheric ozone have obvious seasonal variation. It is more notable in the south than the north. The seasonal variation is more stable in the west than the east. The increments of ozone content in every season are high in the polluted area. In the whole simulated area, the average increment of ozone is 30.928 DU and the maximum is 32.168 DU in spring. The increments of ozone vary spatially between 12 DU and 38 DU. The effect of ozone increments on radiation is little in the north and is large in the east and the low latitude area. The shortwave radiative forcing caused by ozone increments is  $0.185 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$  in clear sky and the value is  $0.464 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$  for longwave. The normalized shortwave radiative forcing

收稿日期 2003-12-19, 2004-02-23 收修定稿

基金项目 国家自然科学基金资助项目 40165001、40205016, 云南省自然科学基金资助项目 2003D0011M

作者简介 王卫国, 男, 1956 年出生, 教授, 主要从事大气环境变化及气候效应的研究。E-mail: wangwg@ynu.edu.cn

is  $0.006 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{DU}^{-1}$  and the net radiative forcing is  $0.021 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{DU}^{-1}$ . The ozone increments caused by climate response are between  $-0.470 \text{ DU}$  and  $0.725 \text{ DU}$ , and the average value is  $30.924 \text{ DU}$  in the area. The shortwave forcing of ozone due to climate response is  $0.249 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{DU}^{-1}$ , and the value is  $0.482 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{DU}^{-1}$  for longwave. The normalized shortwave radiative forcing is  $0.008 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{DU}^{-1}$  and the net radiative forcing is  $0.024 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{DU}^{-1}$ . The ground temperature caused by ozone increments ranges from  $-0.8 \text{ K}$  to  $0.8 \text{ K}$ .

**Key words** regional climate model, atmospheric chemistry model, pollutant drain, tropospheric ozone, radiation forcing, climate effects

## 1 引言

全球变暖的部分原因,可能归咎于人类活动增加了大气温室气体的含量<sup>[1, 2]</sup>。对流层臭氧具有很强的时空变性<sup>[3~6]</sup>,而且是一种重要的温室气体,同时又是重要的氧化剂,在大气光化学过程中起着重要作用,并能通过大气化学过程改变其他温室气体的含量和分布。为研究温室气体变化所引起的辐射强迫和相应的气候变化,已发展了各种不同的模式系统,用以研究已经发生的气候演变和在设定情景下预测气候变化<sup>[7]</sup>。目前,对对流层臭氧辐射效应开展的研究<sup>[8~11]</sup>,主要是利用数值模拟和观测资料分析方法研究工业时期(1860年)以来全球对流层臭氧变化量引起的辐射强迫。在全球范围尺度上模拟对流层臭氧变化量及其引起的辐射强迫,通常采用简化的或离线的大气化学传输模式的方式进行,并取得了有意义的结果。最近, Gauss 等<sup>[12]</sup>模拟估计的全球年平均对流层臭氧变化量为  $11.4 \sim 20.5 \text{ DU}$ ,并由辐射传输模式模拟得出全球的年平均辐射强迫变化在  $0.40 \sim 0.78 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$  之间。在 IPCC (Intergovernmental Panel on Climate Change) 第三次评估报告(IPCC-TAR)<sup>[13]</sup>中对全球对流层臭氧变化引起的平均辐射强迫估计为  $0.35 \pm 0.15 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ ,同时给出了自 1860 年至今全球平均的对流层臭氧变化量及其相应的辐射强迫共 11 个结果(其中 1 个是根据观测反演的,10 个为全球化学传输模式模拟的),模拟得到的不同臭氧变化量引起晴空短波辐射强迫的标准化值在  $0.006 \sim 0.008 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{DU}^{-1}$  之间。由此表明,对流层臭氧变化量引起的辐射强迫是导致全球变暖的重要因素之一。

对于对流层污染使臭氧含量的改变可能导致辐射场变化而产生对气候的影响,在区域尺度上模拟其辐射效应可以得到较为精细的结果<sup>[14]</sup>。目前,针对中国地区的这方面研究工作还做得很不够,随着

人类活动和工业化进程的不断发展,这一研究课题将逐渐受到重视。这需要开展大量的观测分析和数值模拟工作,为此,我们选取最新的东亚网格点源排放资料,用于区域气候模式与大气化学模式相连接的系统,同时考虑 11 种有机物和无机物的排放来考察人为排放对对流层臭氧柱含量的影响,并将化学模式计算的对流层臭氧变化量反馈到气候模式中,考虑了对流层臭氧分布对环流系统的影响作用,实现了区域气候模式和大气化学模式的双向反馈。利用模拟系统考察对流层臭氧含量变化时的辐射效应,为准确地估计气候系统对臭氧波动的响应程度以及对流层臭氧变化量的增温作用与区域气候对局地污染排放变化的响应过程等都具有重要意义。

## 2 模拟方案及资料

### 2.1 模式与计算条件

采用区域气候模式与大气化学模式在线双向反馈的模式系统,气候模式为 RegCM2 (Regional Climate Model 2),垂直分为 15 层  $\sigma$  层,模式大气顶位于  $100 \text{ hPa}$ ,初始及侧边界条件由 2001 年 1、4、7、10 月的 NCEP 资料提供。利用 CBM4 机制的化学输送模式,包括 33 种反应物种和 83 个化学反应,其中 11 个光解反应与 72 个热反应,大气化学物质浓度受输送、源排放、化学转化等过程控制。物种排放采用 2000 年人为排放量<sup>[15]</sup>,包含  $\text{SO}_2$ 、 $\text{NO}_x$ 、 $\text{CO}$ 、 $\text{BC}$  (Black Carbon) 等无机物,以及乙醛和高级醛(ALD),甲醛(HCHO),烷烃类(PAR),乙烷(ETH),烯烃类(OLE),甲苯(TOL)和二甲苯(XYL)等有机物种。模式中物种初始浓度的确定方法<sup>[16]</sup>:首先,假设地表物种浓度为水平均匀的背景浓度,在垂直方向上按指数率下降  $C = C_0 \cdot \exp(-z/H)$  (其中,  $C_0$  为初始地面浓度,取为背景浓度,  $z$  为高度,  $H$  是标高)。随后,利用初始气象资料积分化学模式一段时间(如 24 h),获得稳

定的各物种浓度。此时的各物种浓度是与排放源相匹配的,可作为物种浓度的初始场。目前,模式采用的初始化方法没有考虑各物种的平流层注入效应,因为这一效应难以定量地反映在初始条件中。

由于没有相应的实测资料,侧边界条件的选取较为困难,但因为模拟域边界处于海洋或远离污染排放源的大陆地区,尤其上游方向是青藏高原和西部沙漠地区,没有较强的排放源,因此边界条件取为大气背景浓度。化学模式中对气相化学反应方程采用准稳态近似法,并采用算子分裂的数值方法优化不同时间尺度的化学反应方程式的计算过程,以确保计算精度。化学反应中包含了液相化学过程,液相模式包含 18 个反应方程,考虑了积云的动力夹卷效应引起的垂直物种浓度的再分布,液相化学模式的积分也采用准稳态近似法。积分中所用的云特征参数,如云顶和云底高度、云量、云内温度和液态水含量等由一个定常的一维云模式诊断得到。一旦云消散以后,云水完全蒸发,云内物质全部返回大气。同时,对化学模式中物质输送的平流运算采用的是正定质量守恒差分格式,对  $x$ 、 $y$  两个水平方向,由于格距均匀,采用 4 阶精度的格式,垂直方向用的是非均匀格点的 2 阶精度格式。水平方向物质输送过程的时间积分格式采用标准的 2 阶 Crank-Nicolson 隐式格式,垂直方向由于格点不均匀采用了通量守恒的形式。

模拟区域( $6^{\circ}\text{N} \sim 52^{\circ}\text{N}$ ,  $85^{\circ}\text{E} \sim 130^{\circ}\text{E}$ )的水平网格点数为  $65 \times 50$  个,包括中国、中南半岛、蒙古和朝鲜半岛等地区。积分时气候模式采用较大的固定时间步长,大气化学模式依据各物种的变率自选时间步长,每积分气候模式一步后的气象场用于化学模式计算输送、扩散、沉降等过程。将化学模式积分多步直至时间与气候模式相匹配,然后将得到的大气臭氧分布输入气候模式的辐射方案中,再开始新一步积分气候模式计算臭氧的辐射效应。这一过程包含了将计算出的化学物种浓度输入到 RegCM2 中,计算由这些物种产生的辐射影响,并将由此调整后的大气状态反馈到化学模式中,从而实现气候模式和化学模式的双向反馈耦合。

在大气化学模式中考虑的人为排放源,包括工业排放、家庭用火排放、船只运输排放、发电产生的排放等排放源。模拟范围内化学物种的时空排放分布特征可以参考文献[15],其中  $\text{NO}_x$  和烷烃人为

排放源的强度分布主要集中在工业地区, $\text{NO}_x$  排放量最大的集中在上海、河北、辽宁、湖北、广东、四川、台湾以及朝鲜半岛等地,而烷烃排放的最大区域与  $\text{NO}_x$  的排放区域基本一致,同时在泰国、柬埔寨和越南也有排放。

## 2.2 气象场模拟结果的检验

连接气候模式和化学模式模拟得到了 1、4、7、10 月的平均气象场。以 1 月模拟的平均流场为例,在  $12^{\circ}\text{N}$  以南为稳定的东风,西太平洋副热带高压出现在  $17^{\circ}\text{N}$  附近的南海上空, $20^{\circ}\text{N}$  以北为西风。中南半岛除南部为东风外,其他地区盛行东南风,西南部则为西南风。中国的东北、华北、华东和西北大部地区盛行西北风。与 NCEP 资料分析场对应比较,1 月,西太平洋副热带高压、低纬东风带和中高纬西风带位置同模拟场结果完全一致,仅中南半岛北部盛行的西南风与模拟结果有差别。RegCM2 区域气候模式系统在选取的区域内对环流场的模拟结果是正确的。

## 3 对流层臭氧变化量及辐射效应的模拟

大气化学过程与气候变化联系密切,它能够通过改变痕量气体浓度而影响气候,气候状态改变对化学过程又能产生影响。在模拟工作中将模拟系统中化学模式计算出的臭氧含量与气候模式中给出的本底臭氧含量相加(就是气候模式中原来使用的臭氧垂直廓线,假定在全模拟区域各处都采用同样的臭氧垂直廓线,约为  $45^{\circ}\text{N}$  的平均垂直分布),并反馈到 RegCM2 中可以模拟计算得到大气污染所造成的臭氧变化量,以及引起的辐射强迫。对辐射强迫的计算设计了两套过程,首先在不考虑臭氧增加的情况下调用辐射过程,计算大气各层的辐射通量,紧接着加上臭氧增量再次调用辐射过程,计算出辐射通量,这两个辐射通量之差为没有气候反馈条件下对流层臭氧增加引起的辐射强迫。并且第二次计算的辐射通量供模式后续部分使用。此外,连接上化学模式计算的结果与单独运行气候模式结果之差表示有气候反馈时臭氧增量引起的辐射变化。

在模式研究区域内由于缺乏对流层本底臭氧分布的可靠资料,因此模拟中采用了上述的分布作为本底臭氧含量,因为主要的研究对象为污染排放导致的对流层臭氧变化量引起的辐射强迫,在辐射计算过程中这是一个差值结果,可以扣除本底的影

响。尽管采用的本底臭氧可能与模拟区域实际本底状况存在差异, 由此可能会对得到的臭氧变化量及辐射强迫的精确性产生影响, 但是根据 IPCC-TAR<sup>[13]</sup> 给出的 11 个模拟结果表明了这种由不同对流层本底臭氧浓度计算出的对于污染排放引起的对流层臭氧变化量和辐射强迫的差异还是较小的, 它们得到的臭氧变化量的平均最大差值仅为 2.4 DU, 其对应的标准化短波辐射强迫值均较为一致  $0.007 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{DU}^{-1}$ 。

### 3.1 对流层臭氧柱含量变化量的分布

图 1 给出了对流层臭氧柱含量变化量的分布。1 月, 臭氧变化量最大值为 36 DU, 位于安达曼海、中南半岛及南海, 并与副热带高压的位置相一致, 在重庆有超过 30 DU 的中心。4 月, 在南海有最大值 37 DU, 从中南半岛延至渤海为 36 DU, 重庆为 34 DU。7 月, 达 35 DU 的范围在上海、黄海和朝鲜半岛。臭氧变化量超过 32 DU 的区域在中南半岛上空断裂, 这与副热带高压北抬有关。10 月, 臭氧变化量达 32 DU 的区域连成片, 且 35 DU 的范围增大并从海南延至朝鲜半岛, 重庆仍维持有高值中心。

从图 1 中还可以看到, 青藏高原上臭氧变化量稳定且随季节变化最小, 因积分的气柱较短一般为 16 DU。值得注意的是在内陆重庆, 由于局地源排放较强, 不同季节均出现稳定的高值中心。在西北各季节也都低于 22 DU, 这与对该地区风速的模拟偏小有关。华南沿海、中南半岛各季节都维持有高值, 这些区域地处低纬, 光化学过程有利于产生臭氧, 也是对流层臭氧的主要形成区。由此可见, 臭氧变化量随季节在  $105^{\circ}\text{E}$  以东地区, 即华东、华南、华北、华中和海洋面上的变化剧烈, 季节变率最大的超过 9 DU, 而在西北和西南则较稳定。同时, 在  $30^{\circ}\text{N}$  以南季节变化显著, 其中南海及中南半岛的最大变率也超过了 9 DU, 这些区域地处低纬不仅太阳辐射较强, 且受东亚季风控制, 因而动力输送作用对臭氧含量再分布有控制作用。内陆地区由于受地形和污染排放的影响, 对流层臭氧变化量具有较强的地域性。将图 1 与 1000 hPa 温度场(图略)对比发现, 臭氧柱含量变化量的分布还同温度场有关。臭氧变化量为 28 DU(4 月为 30 DU)的等浓度线与温度槽线的走向基本一致, 在温度槽前是臭氧变化量较大的主要分布区, 槽后的臭氧变化量

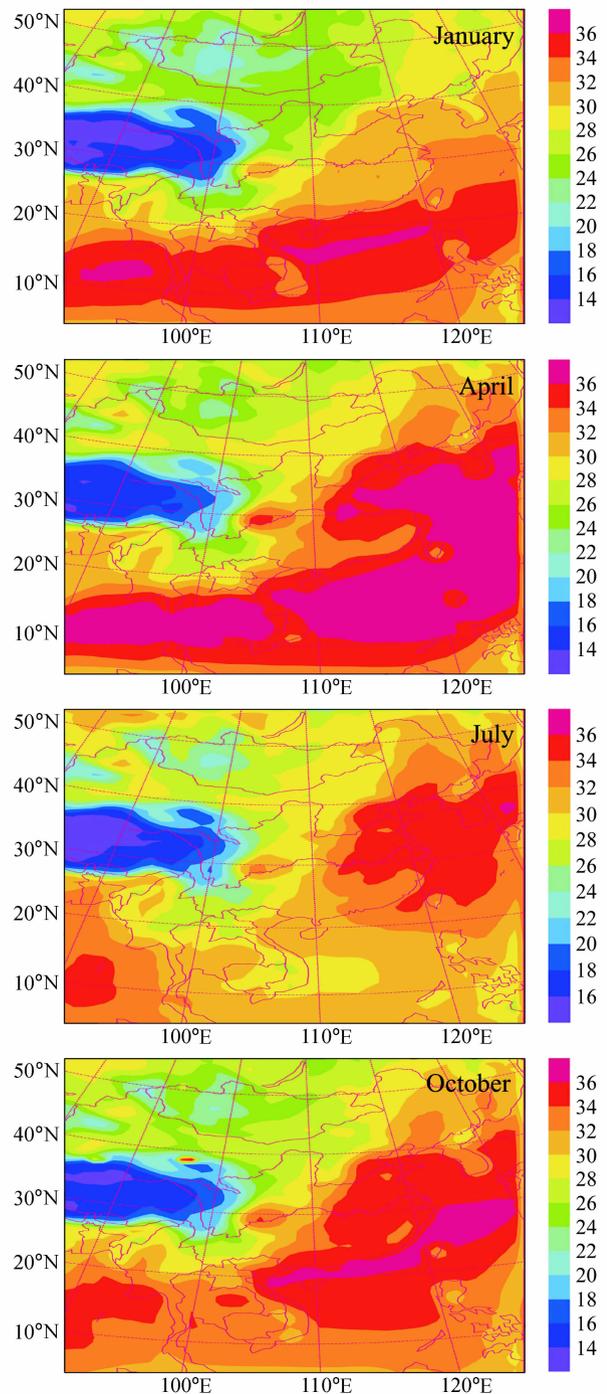


图 1 对流层大气臭氧柱含量变化量(单位: DU)的季节分布

Fig. 1 The seasonal distribution of tropospheric ozone column change (units: DU)

则较小。可以认为, 温度变化影响着对流层臭氧的化学过程, 臭氧变化量又可使近地面的温度改变。

图 2(见文后彩图)是采用 ULAQ(University of L'Aquila Chemical Transport Models)和 UIO1

(University of Oslo Chemical Transport Models) 化学传输模式对全球模拟估计的对流层臭氧变化量的年平均(2000~2100年)分布<sup>[12]</sup>, 这两个模式模拟计算的全球年平均臭氧变化量分别为 16.0 DU 和 19.8 DU, 这已包括了污染地区和非污染地区, 但从图中可以看到不同的地理分布之间存在着很大的差异。将图 1 与图 2 中对应区域的臭氧变化量进行对比, 它们之间不仅具有很好的定量吻合, 而且区域分布的空间结构形态也相一致, 这也表征了在区域尺度上采用双向在线耦合的区域气候和大气化学模式系统, 可以模拟估计得到较为精细的区域分布结果。

### 3.2 对流层臭氧变化量的辐射影响

将化学模式模拟得出的对流层臭氧变化量反馈到气候模式中可引起辐射响应, 图 3 是臭氧变化量产生的大气顶晴空短波辐射强迫分布。从图 3 可以看出, 1 月的辐射强迫分布由东南向西北递减, 南海为  $0.70 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ , 蒙古则小于  $0.15 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ ; 4 月, 最大值出现在华北  $0.95 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ , 最小值分别位于南沙群岛和西藏为  $0.45 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ ; 7 月, 青藏高原维持低值, 安达曼海为  $0.30 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ , 华中和华东达  $0.80 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ ; 10 月, 辐射强迫由西向东递增明显, 在东海达最大值  $0.80 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ 。

图 4 为臭氧变化量引起的地表短波辐射强迫分布。1 月, 中南半岛和华南沿海的辐射强迫在  $-0.35 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$  以上, 南海比周边的负强迫小, 长江以北最小; 4 月, 中国东部有  $-0.55 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ , 蒙古  $-0.30 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ , 最小值位于青藏高原、西南和南海  $-0.25 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ ; 7 月, 在青藏高原及  $45^\circ\text{N}$  以北最小, 在中国东部沿海达  $-0.55 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$  以上; 10 月, 华南为  $-0.50 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ , 华东  $-0.45 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ , 最小值在青藏高原、西北和蒙古  $-0.15 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ 。

比较图 3 和图 4 可知, 臭氧变化量在对流层有正的短波辐射强迫, 而对地表则产生负的辐射强迫效应, 且地气之间辐射强迫的增减有一定的对应关系, 并存在着明显的季节变化, 短波辐射强迫与臭氧变化量两者季节变化显著的地区基本一致。

图 5 给出的是臭氧变化量引起的地气系统晴空长波辐射强迫分布。1 月, 最大值出现在安达曼海  $0.90 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ , 蒙古最小  $0.10 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ ; 4 月, 最大位于恒河口, 中南半岛和南海  $0.70 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ , 华东为  $0.50 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ , 黄河以北为  $0.20 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ ; 7 月, 河北达到  $0.90 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ , 在西北、青藏高原和

西南最小仅为  $0.20 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ ; 10 月, 最大位于塔里木盆地, 这是因为该地计算出现局部不稳定导致的。在华南和泰国为  $0.70 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ , 华东和南海为  $0.50 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ 。最小值为  $0.2 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$  仍为青藏高原和蒙古。地气系统长波辐射强迫的季节性变化在中南半岛西南和华东最显著, 并且与臭氧变化量的季节变化一致。长波辐射量的增加与臭氧变化量相联系, 使得臭氧吸收  $9.6 \mu\text{m}$  的辐射增加, 加热大气和强迫地表吸收量增加, 从而呈现出温室气体的辐射特性。

### 3.3 反馈过程对臭氧的影响

臭氧增加将对辐射场产生影响, 这种影响又将反作用于臭氧的消长过程, 从而使臭氧含量发生改变。经对比模拟发现, 臭氧与辐射场之间 7 月和 10 月反馈过程引起的对流层臭氧柱含量变化比 1 月和 4 月的大(图略)。1 月, 四川及长江流域消耗的臭氧达  $-0.071 \text{ DU}$ , 臭氧生成的范围较小仅位于青藏高原和菲律宾。4 月, 长江以南大部有臭氧生成, 南海最大  $0.094 \text{ DU}$ , 同时泰国部分地区也有生成。臭氧消耗的范围减小, 位于四川、华南沿海和中南半岛西南沿海最大为  $-0.141 \text{ DU}$ 。7 月, 华中、华东和华南为生成区, 其中山东、江苏最大  $0.564 \text{ DU}$ 。而消耗区在中南半岛和云南  $-0.470 \text{ DU}$ 。10 月, 中国大部有臭氧生成, 最大位于西北  $0.752 \text{ DU}$ , 在长江、黄河流域为  $0.376 \text{ DU}$ 。臭氧亏损区在中南半岛、华南和华东沿海  $-0.188 \text{ DU}$ 。

反馈过程生成和消耗臭氧的区域具有很强的季节性, 黄海的变率最大为  $0.846 \text{ DU}$ , 华南、华东沿海和长江黄河流域已超过  $0.470 \text{ DU}$ 。在人为排放较强的内陆重庆季节变化达  $0.564 \text{ DU}$ , 其他区域的变率则相对较小。因此, 将由化学模式模拟计算得出的对流层臭氧变化量反馈到气候模式中是十分必要的, 既可考察光化学过程生成和消耗对臭氧含量的影响, 又可正确估计臭氧含量变化产生的辐射气候效应。

### 3.4 对流层臭氧变化量的气候效应

用化学模式计算得出的臭氧含量反馈到模式系统中, 模拟得到的晴空辐射减去单独运行气候模式得出的晴空辐射作为有气候反馈时臭氧含量改变引起的晴空辐射强迫。图 6 是有气候反馈的短波辐射强迫, 1 月, 地气系统吸收短波辐射最大的位于南海在  $0.60 \sim 1.20 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$  之间, 在青藏

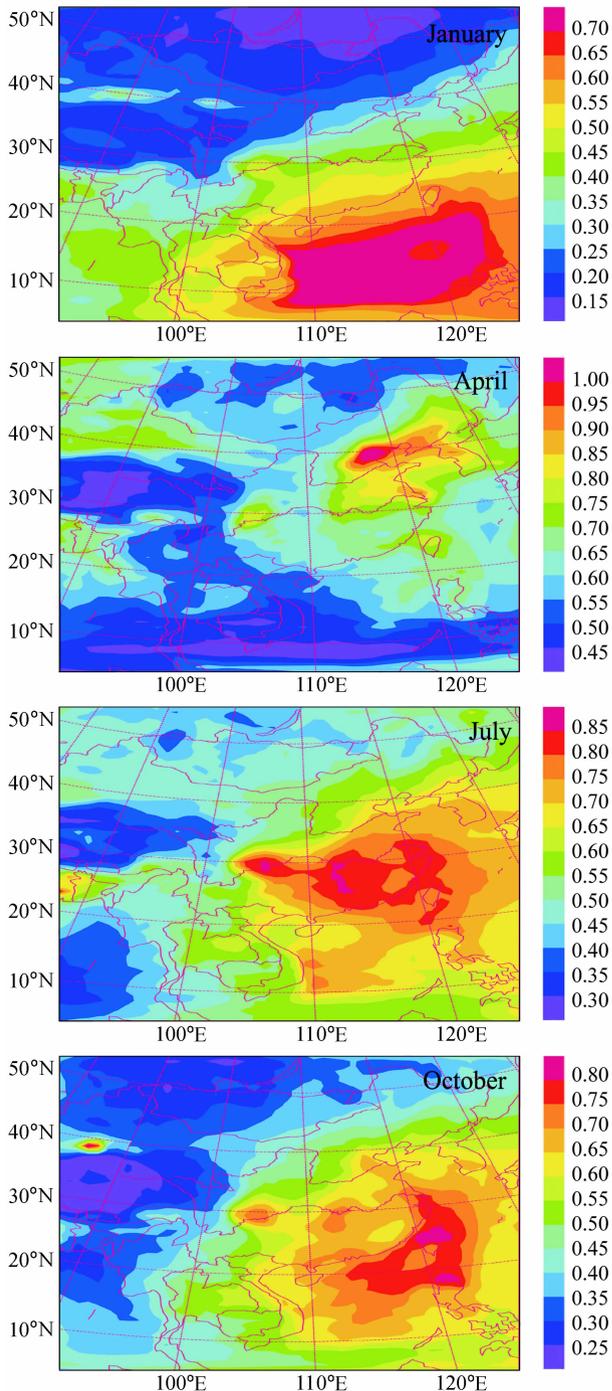


图3 对流层无气候反馈时臭氧变化量引起的大气晴空短波辐射强迫(单位:  $W \cdot m^{-2}$ )

Fig. 3 Shortwave radiative forcing (units:  $W \cdot m^{-2}$ ) of clear-sky atmosphere taking into account tropospheric ozone variation without climatic feedback

高原出现负值, 而蒙古及周边未出现辐射强迫变化; 4月, 渤海有负值 $-3.00 W \cdot m^{-2}$ , 南海和黄海为正值 $4.00 W \cdot m^{-2}$ ; 7月, 四川和越南北部为

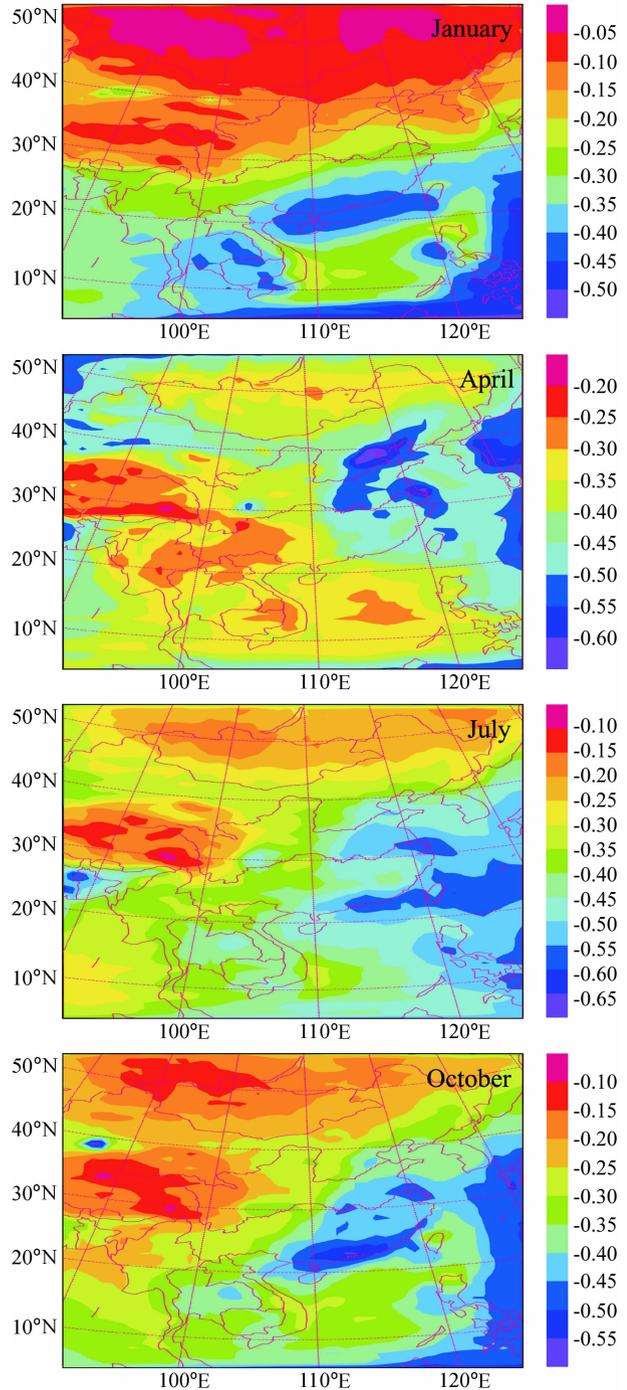


图4 对流层无气候反馈时臭氧变化量引起的地表晴空短波辐射强迫(单位:  $W \cdot m^{-2}$ )

Fig. 4 Shortwave radiative forcing (units:  $W \cdot m^{-2}$ ) of ground for clear sky taking into account tropospheric ozone variation without climatic feedback

$2.50 W \cdot m^{-2}$ , 西藏的负值为 $-2.50 W \cdot m^{-2}$ ; 10月, 南海和越南南部为 $2.50 W \cdot m^{-2}$ , 中国内陆地区均大于零, 而西北地区未出现辐射变化。

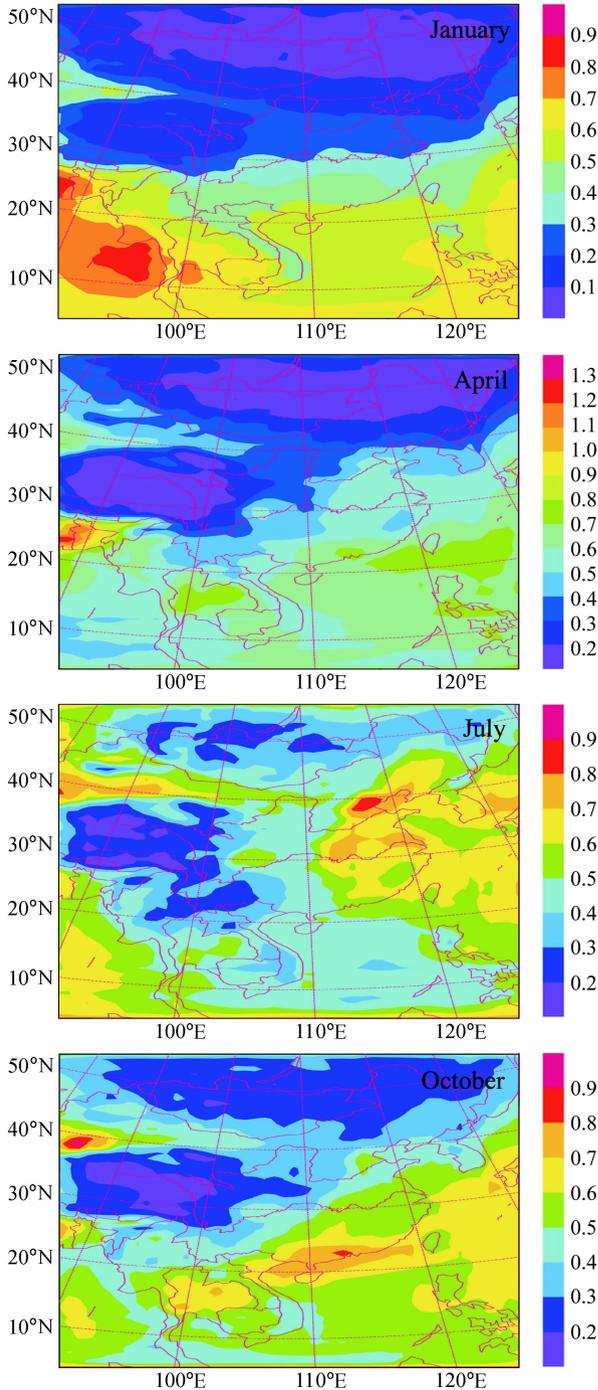


图 5 对流层无气候反馈时臭氧变化量引起的地气系统晴空长波辐射强迫(单位:  $W \cdot m^{-2}$ )

Fig. 5 Longwave radiative forcing (units:  $W \cdot m^{-2}$ ) of earth-atmosphere system for clear sky taking into account tropospheric ozone variation without climatic feedback

图 7(见文后彩图)为有气候反馈的长波辐射强迫, 1 月, 地气系统的长波辐射强迫具有明显的纬向分布特征, 40°N 以北均未引起辐射变化, 30°N 附近为

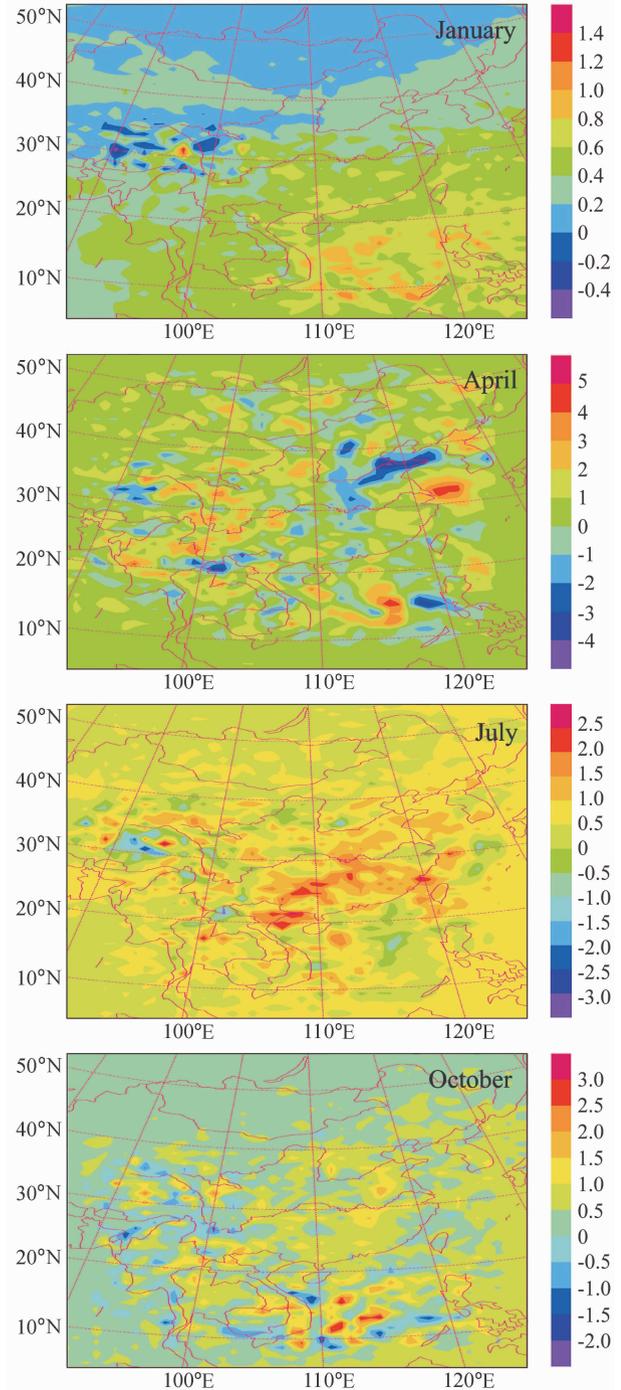


图 6 对流层有气候反馈时臭氧变化量产生的地气系统短波辐射强迫(单位:  $W \cdot m^{-2}$ )

Fig. 6 Shortwave radiative forcing (units:  $W \cdot m^{-2}$ ) of earth-atmosphere system for clear sky taking into account tropospheric ozone variation with climatic feedback

0.50~1.50  $W \cdot m^{-2}$ , 20°N 以南为 0.50  $W \cdot m^{-2}$ ; 4 月, 纬向分布也同样明显, 20°N 以南和 40°N 以北的辐射强迫分布均匀, 25°N 出现最大值 4.00  $W \cdot m^{-2}$ ,

35°N附近出现最小值 $-3.00 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ ; 7月, 中南半岛、东北和蒙古有 $6.00 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ , 河南和山东则为 $-8.00 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ ; 10月, 长江中下游、东北、朝鲜半岛和孟加拉国达 $3.00 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ ; 西南、渤海以及泰国减少最大 $-3.00 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ , 其他区域在 $\pm 1.00 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ 的范围内变化。

通过对比发现, 7月吸收的辐射量变化最大, 在长江流域和中南半岛季节变化较为显著。比较有气候反馈的辐射强迫可以发现: 反馈后的辐射量增加, 尤其是地气系统吸收的太阳辐射量。这说明气候系统放大了对流层臭氧变化量直接引起的辐射强迫。

应当指出的是, 作为一种温室气体, 臭氧不是直接的排放物种, 而是在大气环境中由自然过程或人类活动排放物产生的前体物通过大气化学反应过程形成的。臭氧变化量可以相对快速地响应污染排放物的变化, 且逗留在大气中的时间相对较短, 导致了对臭氧变化量所产生的辐射效应的估计更加复杂, 这与大气中其他相对比较均匀分布的温室气体, 如 $\text{CO}_2$ 、 $\text{CH}_4$ 等有很大的不同。尽管如此, 现在越来越多的对对流层臭氧变化量辐射强迫估计的模拟研究, 其结果也越来越可信。由于对污染排放引起对流层臭氧变化量及其辐射强迫效应的研究, 主要是采用全球化学输送模式模拟计算的。为了进行对比检验, 在表1中给出了由本文模式系统模拟的不含气候反馈条件和含气候反馈条件的区域月平均对流层臭氧变化量、短波辐射强迫、长波辐射强迫、净辐射强迫以及标准化的短波辐射强迫和标准

化的净辐射强迫。

同时, 由表2给出的是不同的全球模式系统模拟的平均对流层臭氧变化量( $\Delta\text{O}_3$ )引起的晴空短波辐射强迫、净辐射强迫、标准化的短波辐射强迫值和标准化的净辐射强迫值<sup>[12, 13]</sup>。而图8(见文后彩图)是利用ULAQ和UIO1化学传输模式系统模拟的全球对流层臭氧变化量的年平均(2000~2100年)标准化净辐射强迫分布<sup>[12]</sup>, 将区域模式系统的模拟结果与全球模式系统模拟(特别是在全球模拟中对应区域)的结果进行对比, 可以比较其结果的一致性, 从而检验区域模式系统模拟的准确性, 并且还间接检验和估计在区域尺度上模拟的臭氧变化量以及辐射强迫较为精细的时空结构。

通过比较表1和表2中对应的标准化辐射强迫, 可以看到表1给出的标准化短波辐射强迫与表2中IPCC-TAR的全球年平均标准化短波辐射强迫值相一致, 而标准化净辐射强迫则同CTMs(Chemical Transport Models)模拟的全球平均结果较为接近, 但存在一定差别, 这与局部同整体、区域与全球之间不同空间尺度有关。进一步分析图8和表1可知, 本文模拟的标准化净辐射强迫值为 $0.021$ (有气候反馈为 $0.024$ )  $\text{W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{DU}^{-1}$ , 在对应的同一区域中由全球化学传输模式ULAQ和UIO1模拟的结果在 $0.02 \sim 0.03 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{DU}^{-1}$ 之间, 且两者模拟得到的结果在同一区域内是吻合的。结合图1和图2以及文献<sup>[15]</sup>的分析结果表明: 本文所模拟的中国和邻近区域是全球排放量最

表1 区域月平均的对流层臭氧变化量( $\Delta\text{O}_3$ )、短波辐射强迫(SWRF)、长波辐射强迫(LWRF)、净辐射强迫(RF)、标准化的短波辐射强迫(NSWRF)和标准化的净辐射强迫(NRF)

Table 1 Regional monthly mean of tropospheric ozone change ( $\Delta\text{O}_3$ ), shortwave radiative forcing (SWRF), longwave radiative forcing (LWRF), net radiative forcing (RF), normalized shortwave radiative forcing (NSWRF) and normalized net radiative forcing (NRF)

月份 Month	无气候反馈 Without climatic feedback						有气候反馈 With climatic feedback		
	$\Delta\text{O}_3$ /DU	SWRF / $\text{W} \cdot \text{m}^{-2}$	NSWRF / $\text{W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{DU}^{-1}$	LWRF / $\text{W} \cdot \text{m}^{-2}$	RF / $\text{W} \cdot \text{m}^{-2}$	NRF / $\text{W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{DU}^{-1}$	$\Delta\text{O}_3$ /DU	RF / $\text{W} \cdot \text{m}^{-2}$	NRF / $\text{W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{DU}^{-1}$
1	30.480	0.165	0.005	0.420	0.583	0.019	30.460	0.650	0.021
4	32.168	0.200	0.006	0.494	0.685	0.021	32.166	0.583	0.018
7	30.014	0.194	0.007	0.488	0.682	0.023	30.024	0.944	0.031
10	31.050	0.182	0.006	0.473	0.653	0.021	31.117	0.749	0.024
平均 Mean	30.928	0.185	0.006	0.469	0.651	0.021	30.942	0.732	0.024

表 2 不同模式模拟计算的全球平均对流层臭氧变化量 ( $\Delta O_3$ ) 及对应的晴空短波辐射强迫 (SWRF)、净辐射强迫 (RF)、标准化的短波辐射强迫 (NSWRF) 和标准化的辐射强迫 (NRF)

Table 2 Global mean tropospheric ozone change ( $\Delta O_3$ ), and the corresponding clear-sky shortwave radiative forcing (SWRF), net radiative forcing (RF), normalized shortwave radiative forcing (NSWRF) and normalized net radiative forcing (NRF) simulated by different models

化学传输模式 (CTMs) 模拟结果 <sup>[12]</sup>					政府间气候变化专门委员会第三次报告评估值 <sup>[13]</sup>		
Results simulated by chemical transport models <sup>[12]</sup>					IPCC-TAR <sup>[13]</sup>		
模式	$\Delta O_3$	SWRF	RF	NRF	研究者	NSWRF	NRF
Model	/DU	/W · m <sup>-2</sup>	/W · m <sup>-2</sup>	/W · m <sup>-2</sup> · DU <sup>-1</sup>	Researcher	/W · m <sup>-2</sup> · DU <sup>-1</sup>	/W · m <sup>-2</sup> · DU <sup>-1</sup>
ULAQ	16.0	0.15	0.51	0.032	Berntsen, et al. <sup>[3]</sup>	0.007	0.041
UIO1	19.8	0.20	0.70	0.035	Stevenson, et al. <sup>[17]</sup>	0.007	0.045
UCI	16.5	0.18	0.66	0.040	Berntsen, et al. <sup>[2]</sup>	0.008	0.051
IASB	13.7	0.13	0.44	0.032	Haywood, et al. <sup>[18]</sup>	0.006	0.048
KNMI	13.4	0.14	0.47	0.035	Kiehl, et al. <sup>[19]</sup>	0.008	0.045
UCAM	15.3	0.16	0.53	0.035	Berntsen, et al. <sup>[20]</sup>	0.007	0.045
MOZ1	11.4	0.11	0.40	0.035	Brasseur, et al. <sup>[21]*</sup>	—	—
MOZ2	16.7	0.17	0.62	0.037	Van Dorland, et al. <sup>[22]</sup>	0.007	0.055
HGIS	20.5	0.22	0.78	0.038	Roelofs, et al. <sup>[1]</sup>	0.007	0.055
UKMO	13.6	0.14	0.53	0.039	Lelieveld, et al. <sup>[23]</sup>	—	—
UIO2	16.2	0.16	0.56	0.034	Hauglustaine, et al. <sup>[6]</sup>	0.007	0.057
平均	15.7	0.16	0.56	0.036	平均	0.007	0.049
Mean					Mean		

\* 是根据观测反演的 Retrieved based on observations

大的地区之一, 由于人为排放污染物产生的对流层臭氧柱含量变化量大于全球平均值是合理的。但辐射强迫的大小不仅依赖于对流层臭氧的变化量, 还随大气环流背景、地理类型的不同而发生变化, 并具有季节变化的特性。由此可见, 这些因素都将影响辐射强迫及其气候效应。

图 9(见文后彩图)给出了对流层臭氧变化量引起的地表温度变化。1月, 中南半岛和华南增温最大达 0.10 K, 其他地区为 0.05 K, 但在青藏高原和四川西南部降温超过 -0.10 K。4月, 青藏高原上有 -0.40~0.40 K 的增温, 而广西为 -0.40 K, 其他大部地区则在 ±0.20 K 的范围内。7月, 吉林、江浙和重庆增温达 0.60 K, 山东、广西和泰国为 0.40 K, 其余区域在 ±0.20 K 的范围内, 最大降温为 -0.60 K 位于内蒙古。10月, 青藏高原上有局部的最大增温, 其次为中南半岛 0.30 K, 降温分别位于华东、中南半岛北部与南部, 以及西南地区均超过 -0.20 K。

对流层臭氧变化引起的地表温度变化范围在 7月最大, 10月次之, 1月最小。在地域上中南半岛、华东、华北和东北部分地区的季节变化最大, 而西北和海洋面上的变化较小且分布比较均匀, 季节性变化显著的区域与臭氧变化量大的区域大体一

致。

## 4 结论

(1) 污染排放导致的对流层臭氧增量, 在华南沿海、中南半岛一带各季节都维持有高值。对于内陆地区则具有较强的地域性, 青藏高原随季节的变化均出现最小值, 四川、重庆局地源排放较强, 不同季节都存在高值中心, 而西北、西南较为稳定。在华东、华北、华中季节变化剧烈, 这些地区既有较强的污染排放, 同时又受东亚季风控制, 因而动力输送作用对臭氧含量再分布有显著作用。臭氧柱含量变化量分布还同温度场有关, 高含量分布于近地面温度槽前, 槽后的含量则较低。全模拟区域内污染排放导致的对流层臭氧增加量平均为 30.928 DU, 并且最大值出现在 4 月份, 为 32.168 DU。

(2) 气候模式与大气化学模式之间双向反馈过程引起的对流层臭氧变化量具有较强的时空变化。反馈过程对臭氧含量的影响存在显著的季节变化, 春季影响最大, 季节变率最强的则出现在低纬热带以及受季风控制和有污染排放的地区, 且对南方的影响比北方显著。

(3) 臭氧增加产生的无反馈短波辐射强迫平均为 0.185 W · m<sup>-2</sup>, 最大出现在 4 月份达到 0.2 W · m<sup>-2</sup>。

标准化短波与长波辐射强迫均在夏季出现极大值, 且辐射强迫在热带低纬和沿海地区季节变化最显著。表明了污染生成的对流层臭氧变化量引起地气系统吸收的辐射量随地区和季节有一定变化, 但地气系统的辐射强迫数值为正, 具有温室效应。全区域平均的无气候反馈标准化短波辐射强迫为  $0.006 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{DU}^{-1}$ , 与全球模式结果很接近, 标准化净辐射强迫为  $0.021 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{DU}^{-1}$ 。

(4) 有气候反馈的辐射强迫全区域平均为  $0.732 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ , 大于无气候反馈时的  $0.651 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$ , 说明臭氧增加直接引起的辐射扰动在气候系统的动力和热力过程中得到放大。辐射强迫增减最显著的区域具有较强的季节性, 总体对北方地区的影响较小, 对南方和华东地区影响较大。

(5) 对流层臭氧增加引起的地表温度变化在  $-0.80 \sim 0.80 \text{ K}$  之间, 并且多数地区地表升温, 在中南半岛和华南大部分地区的升温较大。

本文利用对流层大气化学与区域气候耦合模式系统模拟了中国和邻近地区污染排放导致的对流层臭氧变化量及其辐射效应, 模拟工作中所取的是固定侧边界, 未包含上边界平流层向对流层化学物种的注入过程, 同时对化学物种初始条件和对流层臭氧本底值的处理还有待于完善。这些都需要在今后的工作中进行深入讨论。此外, 由对流层大气化学与区域气候在线耦合模式系统模拟计算的结果还有待观测检验。

### 参考文献 (References)

- [1] Roelofs G J, Lelieveld J, Van Dorland R. A three-dimensional chemistry/general circulation model simulation of anthropogenically derived ozone in the tropospheric and its radiative climate forcing. *J. Geophys. Res.*, 1997, **102** (D19): 23389~23401
- [2] Bernsten T K, Isaksen I S A, Myhre G, et al. Effects of anthropogenic emissions on tropospheric ozone and its radiative forcing. *J. Geophys. Res.*, 1997, **102**(D23): 28101~28126
- [3] Fishman J, Watson C E, Larsen J C, et al. Distribution of tropospheric ozone determined from satellite data. *J. Geophys. Res.*, 1990, **95**: 3599~3617
- [4] Jack Fishman, Brackett V G. The climatological distribution of tropospheric ozone derived from satellite measurements using version 7 Total Ozone Mapping Spectrometer and Stratospheric Aerosol and Gas Experiment data sets. *J. Geophys. Res.*, 1997, **102**(D15): 19275~19278
- [5] Brasseur G P, Hauglustaine D A, Walters S, et al. MOZART, a global chemical transport model for ozone and related chemical tracers 1. Model description. *J. Geophys. Res.*, 1998, **103**(D21): 28265~28289
- [6] Hauglustaine D A, Brasseur G P, Walter S, et al. MOZART, a global chemical transport model of ozone and related chemical tracers 2. Model results and evaluation. *J. Geophys. Res.*, 1998, **103**(D21): 28291~28335
- [7] 秦瑜, 赵春生. 大气化学基础. 北京: 气象出版社, 2003, 193~199  
Qin Yu, Zhao Chunsheng. *Basis of Atmospheric Chemistry* (in Chinese). Beijing: China Meteorological Press, 2003, 193~199
- [8] Portmann R W, Solomon S, Fishman J, et al. Radiative forcing of the Earth's climate system due to tropical tropospheric ozone production. *J. Geophys. Res.*, 1997, **102** (D8): 9409~9417
- [9] Haywood J M, Schwarzkopf M D, Ramaswamy V. Estimates of radiative forcing due to model increases in tropospheric ozone. *J. Geophys. Res.*, 1998, **103** (D14): 16999~17777
- [10] Mickley L J, Murti P P, Jacob D J, et al. Radiative forcing from tropospheric ozone calculated with a unified chemistry-climate model. *J. Geophys. Res.*, 1999, **104**(D23): 30153~30172
- [11] Emmons L K, Hess P, Klonecki A, et al. Budget of tropospheric ozone during TOPSE from two chemical transport models. *J. Geophys. Res.*, 2003, **108**(D8): 8372, doi: 10.1029/2002JD002665
- [12] Gauss M, Myhre G, Pitari G, et al. Radiative forcing in the 21st century due to ozone changes in the troposphere and the lower stratosphere. *J. Geophys. Res.*, 2003, **108** (D9): 4292, doi: 10.1029/2002JD002624
- [13] Intergovernmental Panel on Climate Change(IPCC). *Third Assessment Report: Climate Change*. Cambridge University Press, 2001
- [14] 吴润, 蒋维楣, 刘红年, 等. 我国对流层臭氧增加对气温的影响. 高原气象, 2003, **22**(2):132~142  
Wu Jian, Jiang Weimei, Liu Hongnian, et al. The influence of increasing ozone in troposphere on air temperature in China. *Plateau Meteorology* (in Chinese), 2003, **22** (2): 132~142
- [15] Streets D G, Bond T C, Carmichael G R, et al. An inventory of gaseous and primary aerosol emissions in Asia in the year 2000. *J. Geophys. Res.*, 2003, **108**(D21): 8809, doi: 10.1029/2002JD003093
- [16] 刘红年. 气溶胶大气化学过程及其气候效应若干问题的研究. 南京大学大气科学系博士学位论文, 2002  
Liu Hongnian. A study of the chemical processes of aerosol and its climate effect. Ph. D. dissertation (in Chinese), De-

- partment of Atmospheric Sciences, Nanjing University. 2002
- [17] Stevenson D S, Johnson C E, Collins W J, et al. Evolution of tropospheric ozone radiative forcing. *Geophys. Res. Lett.*, 1998, **25**: 3819~3822
- [18] Haywood J M, Ramaswamy V. Global sensitivity studies of the direct radiative forcing due to anthropogenic sulfate and black carbon aerosols. *J. Geophys. Res.*, 1998, **103**: 6043~6058
- [19] Kiehl J T, Schneider T L, Portmann R W, et al. Climate forcing due to tropospheric and stratospheric ozone. *J. Geophys. Res.*, 1999, **104**: 31239~31254
- [20] Berntsen T K, Myhre G, Isaksen I S A, et al. Time evolution of tropospheric ozone and its radiative forcing. *J. Geophys. Res.*, 2000, **105**: 8915~8930
- [21] Brasseur G P, Kiehl J T, Muller J F, et al. Past and future changes in global tropospheric ozone: impact on radiative forcing. *Geophys. Res. Lett.*, 1998, **25**: 3807~3810
- [22] Van Dorland R, Dentener F J, Lelieveld J. Radiative forcing due to tropospheric ozone and sulfate aerosols. *J. Geophys. Res.*, 1997, **102**: 28079~28100
- [23] Lelieveld J, Dentener F J. What controls tropospheric ozone? *J. Geophys. Res.*, 2000, **105**: 3531~3551

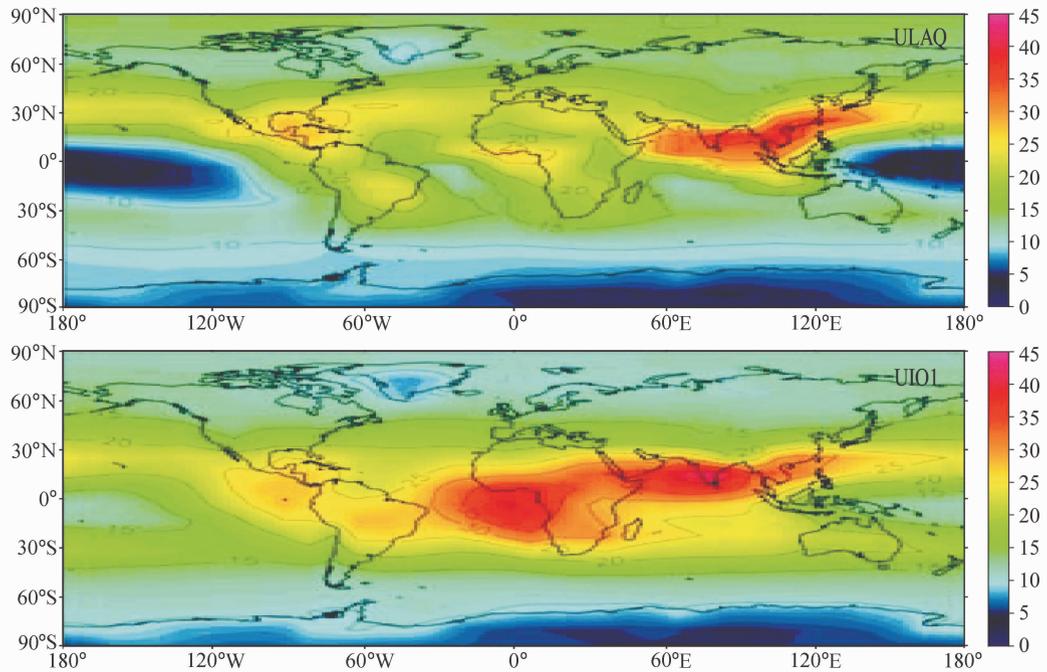


图 2 全球模式模拟估计的对流层大气臭氧柱含量变化量(单位: DU)的年平均分布

Fig. 2 The distribution of annual mean of tropospheric ozone column change (units; DU) simulated by the global model

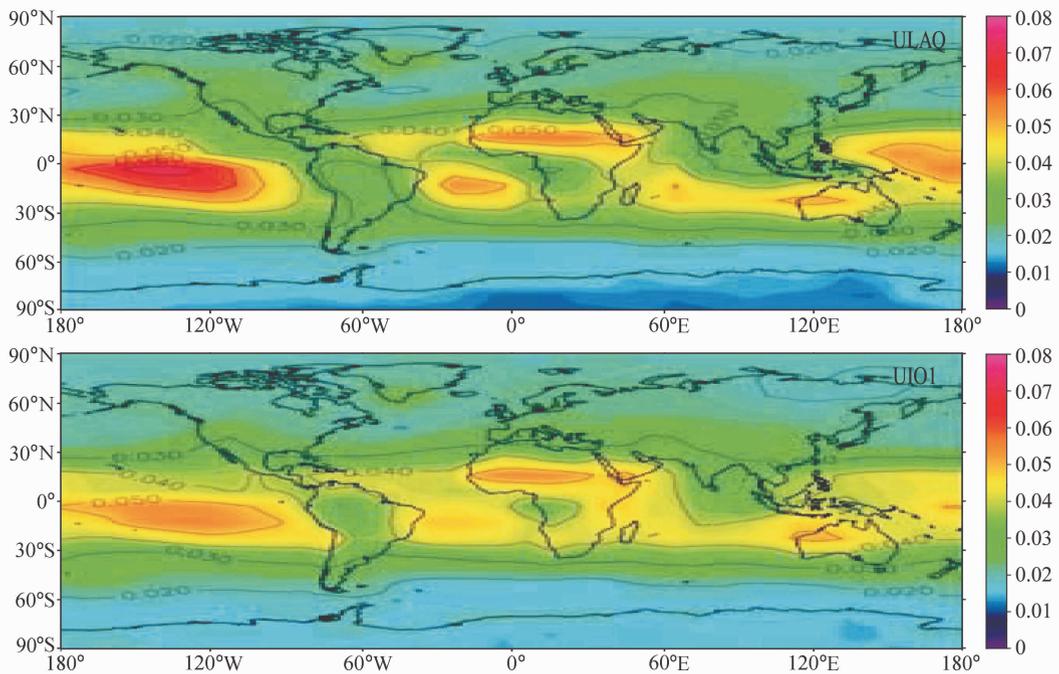


图 8 对流层臭氧变化量引起的年平均净辐射强迫标准化值(单位:  $W \cdot m^{-2} \cdot DU^{-1}$ )的分布

Fig. 8 Distribution of normalized annual mean net radiative forcing (units:  $W \cdot m^{-2} \cdot DU^{-1}$ ) taking into account ozone changes in the troposphere

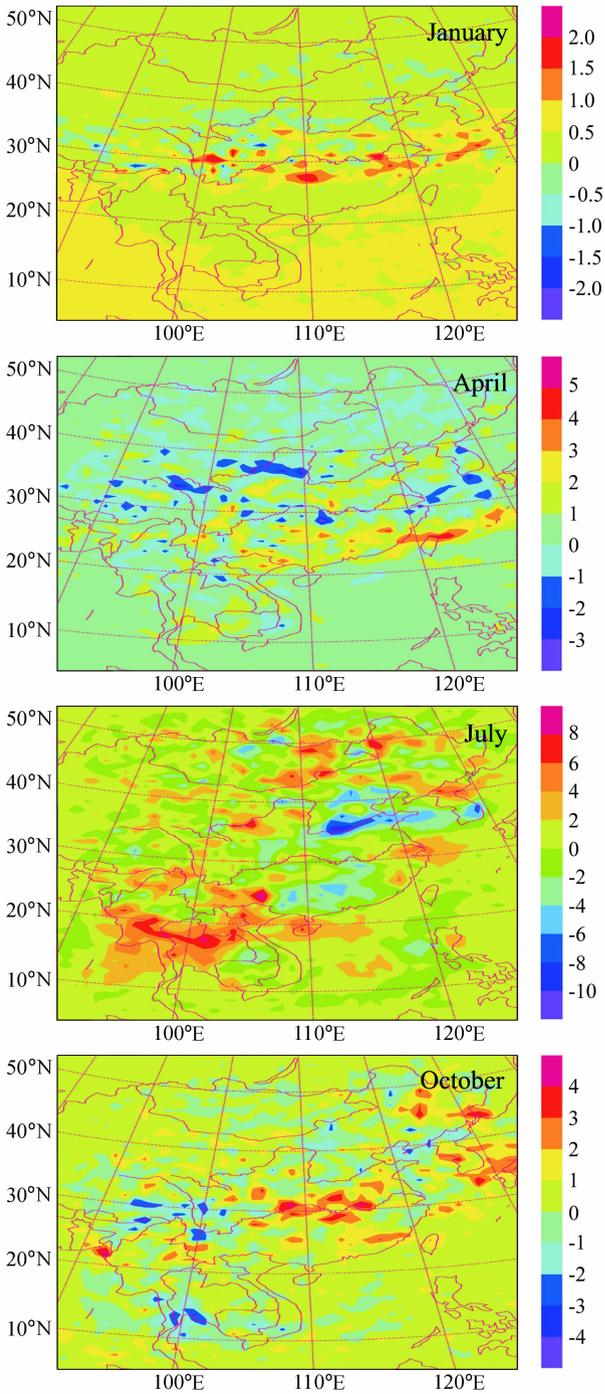


图 7 对流层有气候反馈时臭氧变化量产生的地气系统长波辐射强迫(单位:  $W \cdot m^{-2}$ )

Fig. 7 Longwave radiative forcing (units:  $W \cdot m^{-2}$ ) of earth-atmosphere system for clear sky taking into account tropospheric ozone variation with climatic feedback

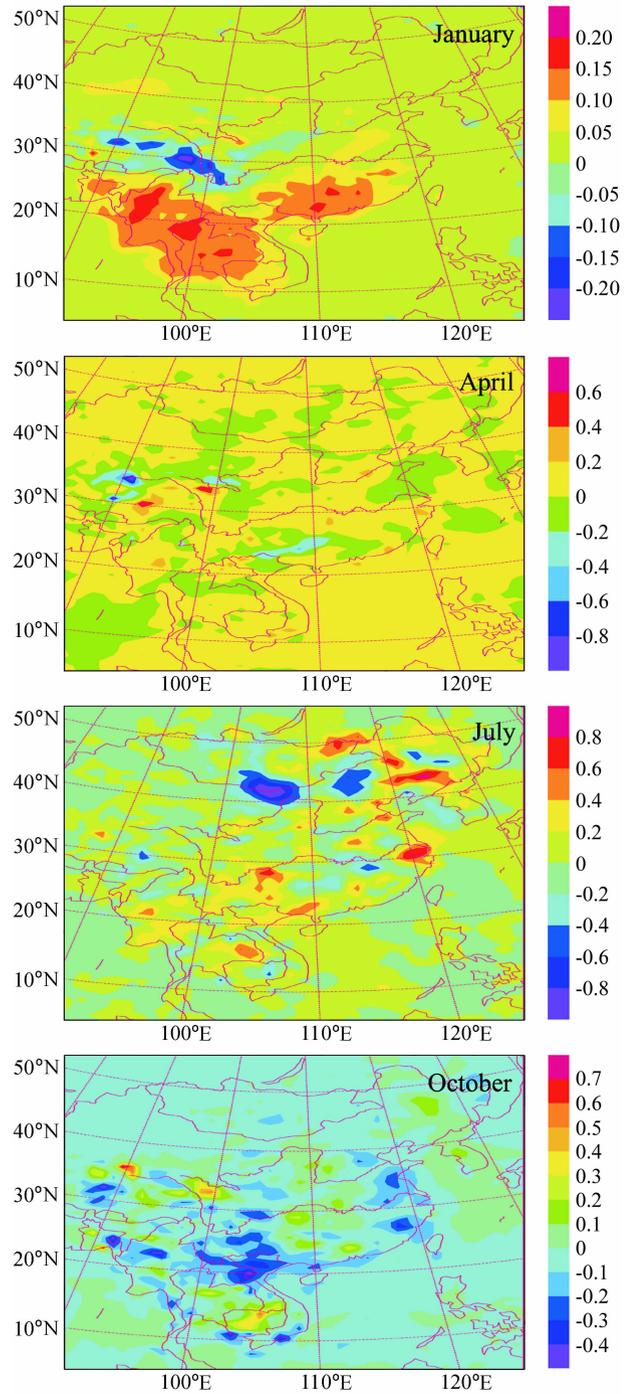


图 9 对流层臭氧变化量导致的辐射强迫引起地表温度变化(单位: K)分布

Fig. 9 Ground surface temperature (units: K) variation caused by radiative forcing of tropospheric ozone change