

周晨虹, 包云轩, 黄建平, 等. 2013. 西太平洋地区大气边界层内臭氧的季节变化及其影响因子分析 [J]. 大气科学, 37 (6): 1348–1356, doi: 10.3878/j.issn.1006-9895.2012.12196. Zhou Chenhong, Bao Yunxuan, Huang Jianping, et al. 2013. Impact of meteorology and anthropogenic emissions on seasonal patterns and changes of ozone in the planetary boundary layer over the western Pacific [J]. Chinese Journal of Atmospheric Sciences (in Chinese), 37 (6): 1348–1356.

西太平洋地区大气边界层内臭氧的季节变化 及其影响因子分析

周晨虹^{1,2,3} 包云轩^{1,2,3} 黄建平^{1,2,3} 刘寿东^{1,2,3} 李建明⁴

1 南京信息工程大学教育部“陆地碳水循环与气候变化”创新团队, 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 南京信息工程大学江苏省农业气象重点实验室, 南京 210044

4 江西省南城气象局, 南城 344700

摘 要 利用臭氧探空资料, 分析了西太平洋地区香港 (Hong Kong)、那霸 (Naha) 和札幌 (Sapporo) 三个站点 2000~2010 年期间大气边界层内臭氧 (O_3) 的季节分布和年变化趋势。结果表明, 三个站点 O_3 的季节分布存在明显的差异。其中, 那霸和香港大气边界层内 O_3 季节平均呈双峰值分布, 其峰值分别出现在春季和秋季; 而札幌站为单峰分布, 峰值出现在春季。造成季节分布差异的主要原因包括人为污染源和自然因素如气象条件。另外, 三个站点大气边界层内 O_3 均呈上升趋势。其中札幌、那霸上升最快, 分别达 0.80 ppb a^{-1} 和 0.77 ppb a^{-1} 。(ppb 表示 10^{-9} , 下同) 香港的年际增长较不明显, 但秋季增长却非常明显, 高达 1.21 ppb a^{-1} 。结合 GOME (Global Ozone Monitoring Experiment) 和 SCIAMACHY (Scanning Imaging Absorption Spectro Meter for Atmospheric Chartography) 卫星反演的 NO_2 数据发现, 过去 10 年中国京津唐和东北地区的对流层内 NO_2 柱总量增加极为迅速。这些 O_3 前体物通过远距离输送是导致札幌、那霸 O_3 浓度增加的主要原因之一。珠江三角洲人为污染源的增加及偏北气流的影响, 是导致香港地区秋季 O_3 增加的主要原因。

关键词 O_3 季节分布 气象因子 NO_2 大气边界层

文章编号 1006-9895(2013)06-1348-09

中图分类号 P42

文献标识码 A

doi:10.3878/j.issn.1006-9895.2013.12196

Impact of Meteorology and Anthropogenic Emissions on Seasonal Patterns and Changes of Ozone in the Planetary Boundary Layer over the Western Pacific

ZHOU Chenhong^{1,2,3}, BAO Yunxuan^{1,2,3}, HUANG Jianping^{1,2,3},
LIU Shoudong^{1,2,3}, and LI Jianming⁴

1 Center for Terrestrial Carbon and Water Cycling and Climate Change, Ministry of Education, Nanjing University of Information Science & Technology, Nanjing 210044

2 Yale-NUIST Center on Atmospheric Environment, Nanjing 210044

3 Jiangsu Key Laboratory of Agricultural Meteorology, Nanjing University of Information Science & Technology, Nanjing 210044

4 Nanchang Meteorological Bureau of Jiangxi Province, Nanchang 344700

收稿日期 2012-11-09, 2013-03-07 收修定稿

基金资助 教育部长江学者和创新团队发展计划, 江苏省高校优势学科建设工程项目 IRT1147

作者简介 周晨虹, 女, 1988 年出生, 硕士, 主要研究方向: 大气环境与空气质量。E-mail: zhouchenhong074@126.com

通讯作者 包云轩, E-mail: baoyunxuan@163.com

Abstract Seasonal patterns and annual variations of ozone in the planetary boundary layer are analyzed using observational data recorded over the western Pacific during 2000–2010. The datasets include ozone sounding data at Hong Kong, Sapporo, and Naha; satellite retrieval tropospheric excess columns of NO_2 ; surface ozone; and meteorological variables. The results show patterns of ozone that differ significantly at the three sites. Both Hong Kong and Naha show bimodal patterns with peak values in spring and autumn and the lowest value in summer, whereas Sapporo shows one peak in spring. Meteorological conditions and human activities account for such differences in seasonal patterns. Similar increase rates of ozone (0.80 versus 0.77 ppb a^{-1}) (ppb represents 10^{-9}) are detected within the planetary boundary layer at both Naha and Sapporo sites. Hong Kong shows the smallest annual change but the largest increase rate (1.21 ppb a^{-1}) in autumn. The tropospheric columns of NO_2 retrieved from GOME (Global Ozone Monitoring Experiment) and SCIAMACHY (Scanning Imaging Absorption Spectro Meter for Atmospheric Chartography) measurements indicate that the increasing ozone within the planetary boundary layer at Sapporo, Naha (annual mean), and Hong Kong (seasonal mean in autumn) result from increasing anthropogenic emissions and regional transport. The cluster analyses of backward trajectories calculated with HYSPLIT (HYbrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory) model further confirm that the increases in ozone over Naha and Sapporo are attributed to the regional transport from northeastern China.

Keywords Ozone, Seasonal pattern, Atmospheric boundary layer, NO_2

1 引言

臭氧 (O_3) 是一种重要的微量气体。大气中的 O_3 主要集中在平流层 (约占 90%), 平流层 O_3 是由氧分子吸收紫外辐射经光解反应生成, 它可以有效吸收太阳紫外辐射, 保护地球上的生命。与平流层 O_3 相比, 对流层 O_3 含量要低得多 (约占大气柱 O_3 总量的 10%), 但在大气化学、气候变化和空气质量等方面具有重要的意义 (Staehelin et al., 2001)。 O_3 是一种重要的氧化剂, 是氢氧 (OH) 自由基的前体物, 参与一系列大气化学反应 (IPCC, 2007); 近地层高浓度的 O_3 对人体健康、生态系统具有很大的危害作用, 是人们重点关注的大气污染物之一; 对流层 O_3 在红外波段 (约 $9.6 \mu\text{m}$) 有很强的吸收作用, 是一种重要的辐射气体, 其浓度变化可对地球—大气系统的辐射平衡造成一定的影响。此外, 对流层 O_3 影响大气的氧化性能, 影响其他温室气体的浓度, 从而具有一定的间接辐射强迫效应。自工业革命以来, 人类排放的各种大气化学物质如氟氯碳化合物 (CFC), 氮氧化物 (NO_x) 和可挥发性有机化合物 (VOCs) 不断增加。一方面, CFC 等物质的增加使平流层 O_3 不断损耗, 导致南极洞的出现; 另一方面, NO_x 和 VOCs 在适宜的气象条件下经过一系列光化学反应形成 O_3 , 使大气边界层内 O_3 浓度不断升高, 并可导致严重的大气光化学烟雾事件。欧洲和北美地区, 自 20 世纪 70 年代, 地面 O_3 浓度明显上升。但从 20 世纪 90 年代开始, 地面 O_3 上升速度有所减缓, 并呈缓慢下降

趋势 (Oltmans et al., 1998)。中国位于东亚地区, 面临西太平洋。过去几十年, 经济发展迅速, 工业化、城市化进程大大加快, 各种人为污染源迅速增加, 近地面 O_3 浓度不断升高。因此, 研究大气边界层内 O_3 浓度变化对于了解人类活动对气候变化的影响具有重要意义。

对流层 O_3 一直受到人们的广泛关注, 国内外科学家利用各种观测 (如 O_3 探空和卫星遥感) 和数值模拟的方法对大气对流层 O_3 的时空分布及其演变规律进行了研究。Jaffe et al. (2007) 分析了 1987~2004 年期间美国西部和北部 11 个偏远观测站的 O_3 观测资料, 发现其中 7 个站点的 O_3 浓度显著增加, 其年平均增长率为 0.29 ppbv (变化范围为 $0.19\sim 0.51 \text{ ppbv}$); 认为温度的变化只是地面 O_3 浓度增加的原因之一, 而导致地面 O_3 浓度增加的更重要原因是区域污染源的增加、生物体燃烧和全球 O_3 背景值的增加。Cooper et al. (2010) 发现 1995~2008 年期间美国西北部春季 O_3 明显增加, 并认为这种增加主要与亚洲污染物的远距离输送有关。Oltmans et al. (2004) 分析了 TRACE-P (Transport and Chemical Evolution over the Pacific) 试验期间 (即 2001 年 1~4 月) 北太平洋沿海地区 9 个站点的 O_3 垂直探测资料, 发现北太平洋地区整个对流层内的 O_3 在春季出现一个明显的峰值。Naja and Akimoto (2004) 分析了日本 4 个站点 (Sapporo、Tsukuba、Kagoshima 和 Naha) 1970~2002 年的 O_3 探空资料, 讨论了中国、欧亚、太平洋和日本本地四种不同气团对其 O_3 浓度变化的影响, 发现中国

区域污染气团的 O_3 浓度从 1970 至 1990 年增加了 20%，认为中国 NO_x 污染源的增加是其增长的主要原因。Pobera et al. (2009) 利用 GASP (the Global Atmospheric Sampling Program) 和 MOZAIC (Measurement of Ozone and water vapor by Airbus in-service aircraft) 计划的飞机探测和 O_3 探空数据，分析了对流层上层和平流层底层的 O_3 长时间变化趋势。结果表明亚洲东南部地区的春夏季，对流层上层的 O_3 上升 20%~40%。欧洲、美国东部等地也观测到类似的变化。最近，Parrish et al. (2012) 分析了欧洲 6 个站点，北美 3 个站点和日本 2 个站点各种观测资料，发现 1995~2000 年期间各个站点对流层低层的 O_3 浓度都呈上升趋势。其中欧洲和北美地区的年平均增长率约为 1%，但增长趋势在过去 10 年有所减慢。此外，卫星反演资料逐渐被应用于研究 O_3 的变化。Fishman and Watson (1990) 以及 Fishman and Balok (1999) 利用总 O_3 测绘光谱计 (Total Ozone Mapping Spectrometer, TOMS) 反演的大气柱 O_3 总量数据和 SUVB (Solar Backscatter Ultraviolet) 卫星反演的平流层 O_3 廓线数据获得了对流层 O_3 总量，利用这些数据研究了全球及区域对流层 O_3 的时空分布及变化规律。

与国外相比，国内在对流层 O_3 的长期变化趋势方面的研究还相对欠缺。由于国内 O_3 的连续观测开展得比较晚，长时间的观测资料比较匮乏， O_3 探空资料的匮乏更为突出。迄今为止，只有香港地区进行常年的连续观测，并与世界 O_3 和紫外辐射数据中心 (World Ozone and Ultraviolet Radiation Data Centre, WOUDC) 进行资料共享。通过对已

有的香港 O_3 探空资料进行详尽分析，可以弥补这方面的不足，并可有效评估中国经济的快速发展对东南亚对流层 O_3 浓度变化的影响。

O_3 浓度除与光化学反应有关，还受平流层 O_3 的向下传输、远距离输送、干湿沉降等过程影响，而这些过程都与气象条件紧密相关。He et al. (2008) 利用区域空气质量模式 CMAQ (Community Multiscale Air Quality)，结合 3 个高山站和 3 个地面站的观测资料，研究了东亚季风对中国东部和西太平洋地区边界层内 O_3 的影响，指出东亚季风是造成 O_3 双峰型的主要原因。Wang et al. (2009) 讨论了中国南部单个地面背景站 (Hok Tsui; 22.2°N, 114.5°E) 的 O_3 浓度在 1994~2007 年期间的变化，发现地面 O_3 浓度呈上升趋势，并认为这种上升趋势与中国沿海地区 O_3 前体物的增加有关。郑永光等 (2008) 利用 NCEP 再分析资料、日本 GMS-5 (Geostationary Meteorological Satellite-5) 地球静止卫星水汽云图和中国临安、昆明、香港的 O_3 探测资料，分析中国南部春季对流层中上层 O_3 浓度升高的原因，发现卫星水汽图像上的暗区、高空急流入口区的左侧辐合区、高空锋区、对流层中上层向下伸展的舌状高位涡 (≥ 1 PVU, $1 \text{ PVU} = 10^{-6} \text{ K kg}^{-1} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$) 区等，都是有效的判据。但总体而言，气象条件对对流层 O_3 季节分布影响的定量评估还明显不足。

本研究利用 2000~2010 年期间香港站 (Hong Kong; 22.3°N, 114.3°E)，日本的那霸 (Naha; 26.2°N, 127.7°E) 和札幌 (Sapporo; 43.1°N, 141.3°E) 的 O_3 探空资料 (站点位置如图 1 所示)，探讨不同纬

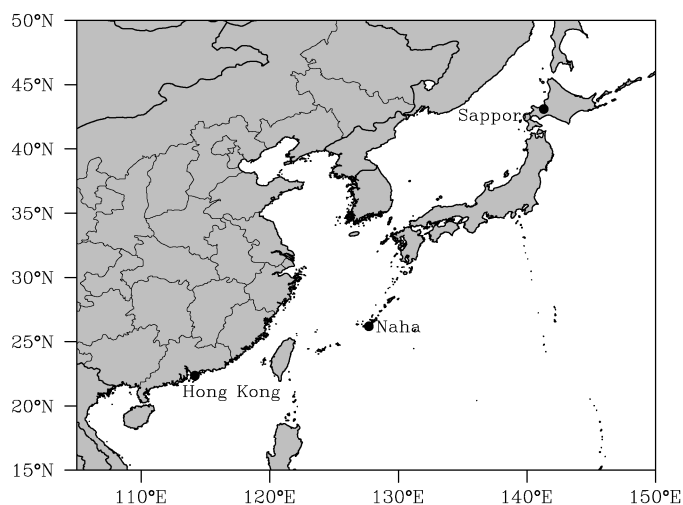


图 1 O_3 探空站点的地理位置

Fig. 1 Locations of ozone sounding sites

度对流层低层大气 O₃ 的季节分布特征及气象条件（如温度，盛行风向及台风活动等）对它们的影响。本研究重点评估香港地区过去 10 年大气边界层内 O₃ 浓度的变化趋势，并与札幌和那霸大气边界层内 O₃ 浓度的变化进行比较。利用欧洲航天局（ESA）的全球 O₃ 监测仪卫星 GOME (Global Ozone Monitoring Experiment) (Burrows et al., 1999; Kusmierczyk-Michulec and De Leeuw, 2005) 和大气制图扫描成像吸收光谱仪（SCIAMACHY）(Bovensmann et al., 1999) 反演得到的对流层柱 NO₂ 含量评估人为污染源的变化及其对大气边界层内 O₃ 浓度变化的影响。

2 资料与方法

表 1 概括了本文所用资料的来源、年代、分辨率等。O₃ 的探空数据是由 WOUDC 提供，其数据经过严格的质量控制。O₃ 的垂直分布是由 6A 型电化学 O₃ 探空仪（Electronic Chemistry Cell, ECC）或 Brewer 型电化学探空仪搭载探空气球进行探测。ECC 的精度在对流层可达到 10% (Barnes et al., 1985; Komhyr et al., 1995)，数据采集为不等间距，约 50~60 m。O₃ 通常每周观测一次，特殊时期会加密观测 (Harris et al., 1998)。ECC 可同时探测温度、位势高度、风向和风速以及 O₃ 分压强。资料处理时，O₃ 分压转换成 O₃ 浓度或体积混合比（单位为 ppb），原始数据经线性内插转换成等间距，即 10 m。讨论边界层 O₃ 浓度变化时，假定各个站点不同季节边界层顶平均高度为 1500 m。本文讨论的三个站点，对于研究西太平洋沿海地区边界层 O₃ 的变化具有较好的代表性，其中香港站位

于经济快速发展的珠江三角洲下游，札幌、那霸位于经济发达的日本，但可能受到中国北方污染物远距离输送的影响。通过比较该三个站点 O₃ 的变化趋势，可以了解不同纬度和与不同经济发展阶段相对应的人类活动对大气边界层内 O₃ 浓度的影响。

为研究人为排放污染源对大气边界层内 O₃ 浓度变化的影响，采用卫星反演的对流层 NO₂ 的剩余总量作为 O₃ 前体物氮氧化物（NO_x）的替代物。对流层 NO₂ 的剩余总量是利用 GOME 和 SCIAMACHY 的观测资料反演得到。GOME 卫星的分辨率是 320 km×40 km，约 3 天可覆盖全球。SCIAMACHY 卫星的分辨率是 60 km×30 km，约 6 天可覆盖全球，精度优于 10 % (Heue et al. 2005; Martin et al., 2002)。

为讨论气象因子对 O₃ 变化的影响，本文进一步分析了 NCEP/NCAR 全球再分析资料。其中包括 10 m 风场、2 m 最高气温、边界层高度和晴空辐射等。资料的水平网格距为 1°×1°，时间间隔为 6 小时。

3 大气边界层 O₃ 的季节分布及气象条件的影响

3.1 边界层 O₃ 的季节分布特征

图 2 给出了香港、札幌和那霸三个地区 2000~2010 年期间大气边界层内 O₃ 浓度月平均值。从图可以看出，不同纬度不同站点边界层内 O₃ 的季节分布存在较大差异。春季，三个地区均出现 O₃ 浓度的极大值。造成该地区春季 O₃ 偏高的原因可能包括：对流层和平流层的交换，将高浓度的 O₃ 从平流层输送到对流层（杨建和吕达仁，2004）；西

表 1 数据来源、观测范围、时间等本文所涉及资料信息

Table 1 Summary of observational sites, instruments, and data

数据来源	站点名称/数据范围	地理位置/分辨率	观测时间	样本	观测变量
O ₃ 探空仪	日本札幌 (Sapporo, Japan)	43.1°N, 141.3°E	2000~2010 年	498	O ₃ 混合比
O ₃ 探空仪	日本那霸 (Naha, Japan)	26.2°N, 127.7°E	2000~2010 年	435	O ₃ 混合比
O ₃ 探空仪	中国香港 (Hong Kong, China)	22.3°N, 114.3°E	2000~2010 年	458	O ₃ 混合比
地面自动站观测	香港塔门 (Hong Kong, China)	22.4°N, 114.3°E	2000~2010 年	日平均	O ₃ 混合比
地面自动站观测	香港大帽山 (Hong Kong, China)	22.4°E, 114.1°E	2010 年	每小时平均	风向, 风速
地面自动站观测	中国香港 (Hong Kong, China)	22.3°N, 114.3°E	2010 年	年平均	台风个数
全球 O ₃ 监测仪 GOME 卫星	全球	分辨率	1996~2002 年	月平均	NO ₂ 混合比
		320 km×40 km	2007~2011 年		
大气制图扫描成像吸收光谱仪	全球	分辨率	2003~2006 年	月平均	NO ₂ 混合比
SCIAMACHY 卫星		60 km×30 km			
NCEP/NCAR 再分析数据	全球	空间分辨率 1°×1°	1948 年至今	月平均	2 m 最高地温、降水量

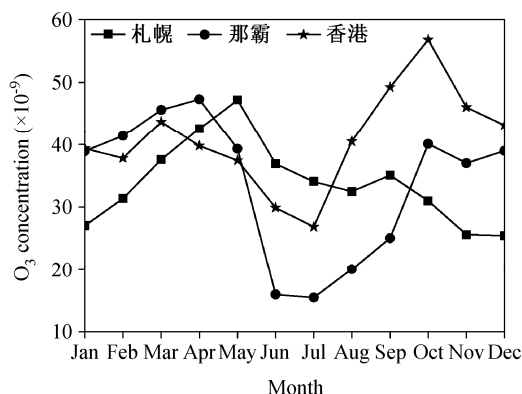


图2 2000~2010年期间香港、札幌和那霸大气边界层内O₃浓度的月变化

Fig. 2 Variations in monthly mean ozone concentrations within the planetary boundary layer observed at Hong Kong, Sapporo, and Naha during 2000–2010

南亚地区生物体的燃烧,其释放的O₃前体物,可随西南风输送到华南沿海地区(McKeen et al., 1991; Chan et al., 2000; Liu et al., 2002)。夏季,受东亚季风环流的影响,香港和那霸均O₃浓度观测到一年中的最低值。这与其他大陆型观测站不同,比如欧洲通常在夏季观测到O₃的极大值。

值得注意的是,秋季香港和那霸均观测到一年中的第二个峰值。特别是香港站,其峰值要比春季高出近15 ppb。导致秋季峰值出现的主要原因是盛行的偏北气流将中国大陆人为排放的O₃前体物源源不断地输送到香港上空。秋季晴空少云,太阳辐射强,大气层结稳定,利于O₃形成和积累。冬季,由于其地处温带季风气候区,受西伯利亚(蒙古)冷高压的影响,盛行偏北或西北风,加之气温低,长时间积雪,太阳辐射弱,光化学反应速率慢,导致札幌冬季O₃浓度最低随着纬度的增加,春季O₃极大值出现的月份会逐渐向后推迟。比如,香港地区春季O₃极大值出现在3~4月份,那霸在4月,札幌在5月份。这主要是受东亚季风环流的影响,春季冬季环流形势开始减弱,副热带高压系统随后逐渐增强并由南向北移动。

三个地区边界层内O₃浓度的年平均和年较差都不相同。那霸站的年均极大值为47 ppb,香港站的年均极大值为56 ppb。此外,大气边界层内O₃浓度的年较差也不相同。那霸站的年较差最大,约为34 ppb;香港最小,仅为18 ppb;札幌居中,为20 ppb。造成各地年较差不同的原因包括人为污染源和气象条件,其中以东亚季风和大气环流的影响

为主要。

3.2 气象条件对大气边界层内O₃浓度季节分布的影响

气象条件对大气边界层内O₃浓度有着重要的影响。为讨论季节分布,本文以当年的3、4、5月的平均代表春季,6、7、8月代表夏季,9、10、11月代表秋季,当年的12月及下一年的1、2月代表冬季。图3给出了香港2000~2010年期间,四个季节的平均风向频率分布。夏季多为偏西南风和偏东风,海洋性气团将低浓度O₃带到我国东南沿海一带,导致O₃浓度偏低。秋季盛行北到东北风,我国内陆的污染物被输送到香港上空。冬季盛行风向与秋季大致相同,由于光照弱和温度低,O₃浓度偏低。

图4给出了三个地区2000~2010年期间不同月份的降水、2 m最高气温和O₃浓度。受东亚季风影响,香港地区降水量多,雨季较长,从5月开始,持续到9月。那霸站的雨季与香港接近,但降水量较小。札幌的雨季相对较晚,为每年的8~9月份,而且降水量比其它两个站点要小得多。边界层内的O₃浓度与降水量呈一定的反相关。雨季期间,太阳辐射弱,光化学反应不强,加上降水的冲刷作用,导致O₃浓度偏低。此外,空气的湿度对O₃的浓度也有一定的影响。空气中的水汽通过光解产生较多的活性基(如H、OH等),OH自由基与O₃分子直接反应,从而降低大气中的O₃浓度(徐晓斌等, 1998)。高浓度O₃事件通常与高温相联系,但O₃的季节变化与温度之间的关系并不明显。季风、降水和盛行风向等气象条件以及污染物的远距离输送对于O₃的季节变化起着更重要的作用。这也解释了为什么香港和那霸等地区夏季温度高,但O₃浓度却最低。

西太平洋地区台风的活动对香港地区边界层O₃浓度有重要的影响。每年的7至10月,香港易受台风影响。当台风出现在中国南海或西北太平洋上并距离香港一定距离时(通常是700~1000 km),受其外围下沉气流的影响,香港地区晴空少云,太阳辐射强,风向为偏北或偏西北,常常导致香港地区高浓度O₃事件频繁发生(Huang et al., 2005)。需说明的是,高浓度O₃事件通常发生在台风来临之前,一旦台风靠近,高浓度O₃事件立刻消失。因此,受台风外围影响而导致高浓度O₃事件的频繁发生也是香港秋季O₃浓度偏高的原因之一。

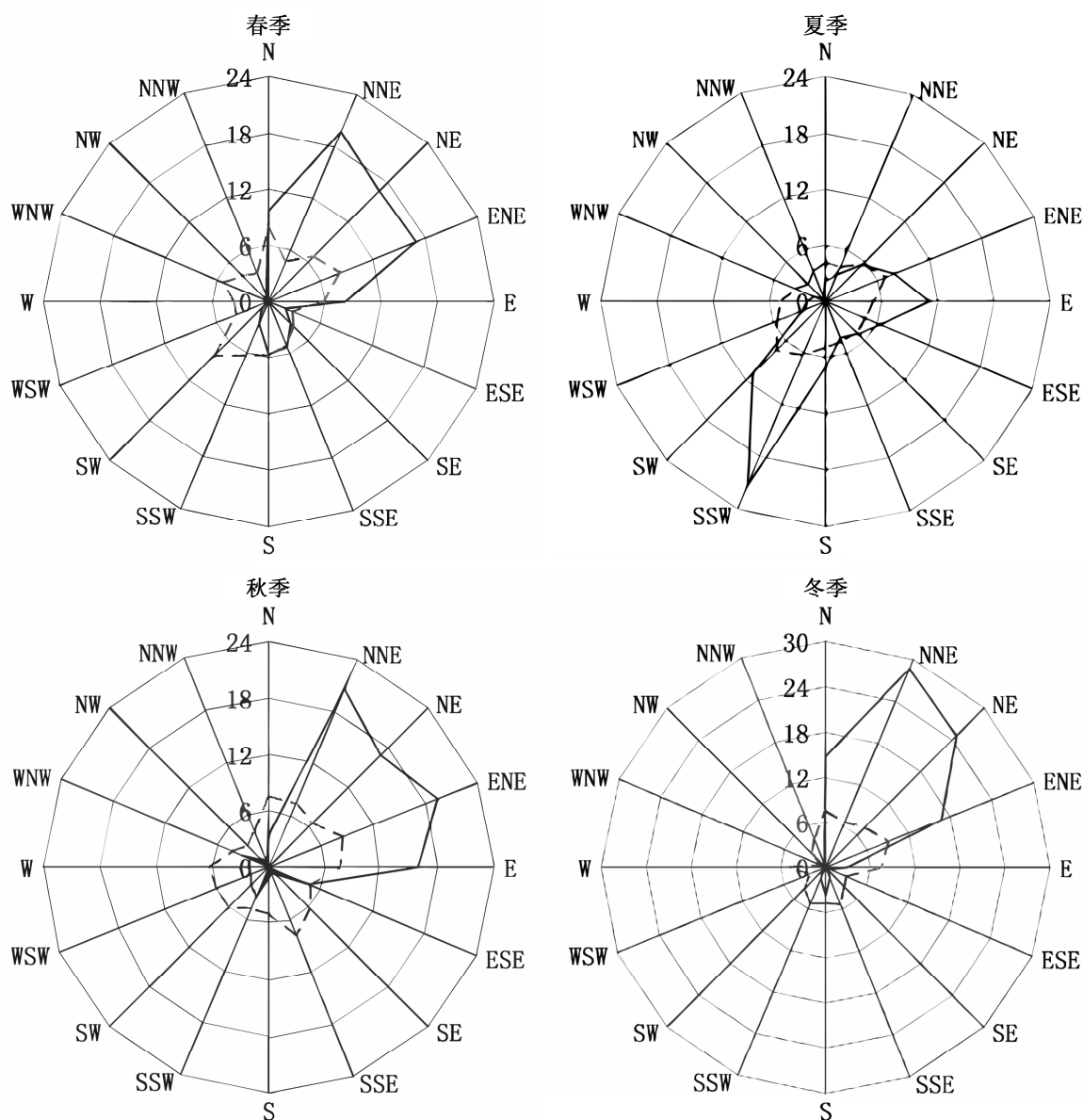


图3 香港地区不同季节风向出现频率和平均风速分布图(实线为风频,虚线为风速)。风速单位: m s^{-1}

Fig. 3 The frequency of wind directions (solid line) and the wind speed (dashed line, unit: m s^{-1}) at Hong Kong during four seasons

4 边界层内 O_3 的变化趋势及影响因子

4.1 边界层内 O_3 的长时间变化趋势

图5给出了2000~2010年三个地区边界层 O_3 年平均值的时间变化趋势。图中 O_3 浓度代表边界层内各个高度上 O_3 浓度的平均值。过去10年各个站点的 O_3 浓度的变化趋势不尽相同,其中日本两个站点的增长趋势非常明显。线性拟合表明,札幌的增长率达到 0.77 ppb a^{-1} ,那霸 0.72 ppb a^{-1} 。香港的年增长幅度是最小的,只有 0.4 ppb a^{-1} 。年、季变化通常不能反映季节上的差异,甚至可能掩盖某些重要信息。为此,我们计算了三个站点不同季节

的大气边界层 O_3 浓度趋势变化。过去10年,香港地区边界层 O_3 浓度的年际变化很小,但秋季增长趋势明显。其线性拟合增长幅度达 1.2 ppb a^{-1} (见图6)。这是因为秋季盛行偏北到东北风,珠江三角洲等地不断增加的 O_3 前体物被输送到香港上空,导致这一季节 O_3 浓度上升。

4.2 人为污染源对 O_3 变化的影响

这一节着重讨论气候变化和人为污染源的增加对边界层内 O_3 浓度的影响。图7代表1996~2011年期间GOME和SCIAMACHY卫星反演得到的对流层 NO_2 柱浓度变化。

可以看出:(1)香港地区对流层 NO_2 柱含量明

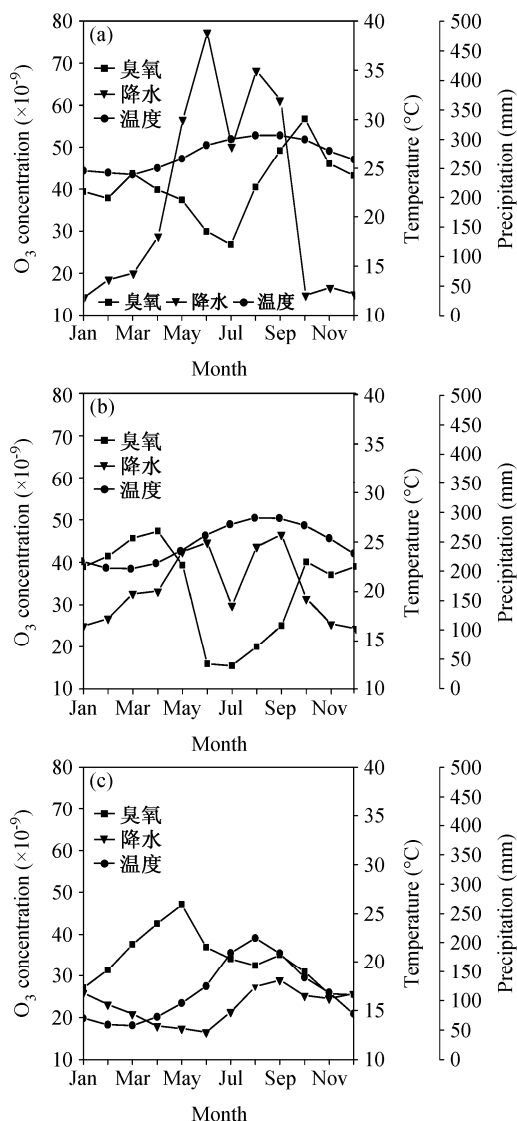


图4 (a) 香港, (b) 那霸和 (c) 札幌降水量, 2 m 最高气温和 O_3 的月平均值

Fig. 4 Comparison of monthly mean precipitation, 2-m maximum temperature with O_3 concentration in the atmospheric boundary layer at (a) Hong Kong, (b) Naha, (c) Sapporo

显高于其他 2 个站点。香港地处珠江三角洲地区的下游, 珠江三角洲不断增加的污染物被输送到香港, 导致其对流层 NO_2 含量显著增加; (2) 2004 年之后, 香港地区对流层 NO_2 柱含量的上升趋势得到明显抑制。这得益于广东省与香港之间采取的措施有效地控制了大气污染源的排放, 比如, 专利巴士采用超低污染排放的燃油, 柴油车被低污染的汽油车所替代等 (俞晓岚, 2001); (3) 札幌和那霸对流层 NO_2 柱含量近 10 年变化很小, 但两地边界层内的 O_3 却呈上升趋势 (图 7), 其变化率分别为 0.49 ppb a^{-1} 和 0.64 ppb a^{-1} 。

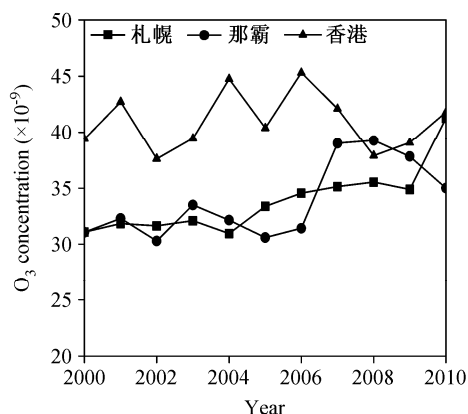


图5 2000~2010 年香港、那霸和札幌大气边界层内 O_3 浓度变化趋势
Fig. 5 Variations in yearly averaged ozone concentration in atmospheric boundary layer observed at Hong Kong, Naha, and Sapporo during 2000-2010

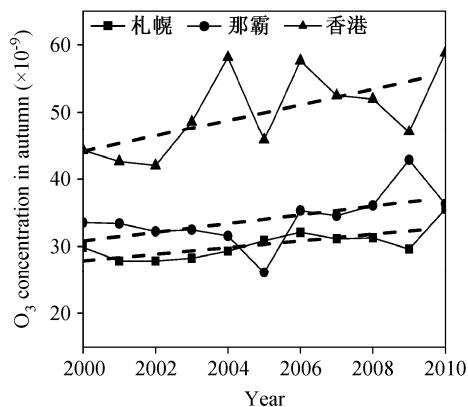


图6 同图 5, 但为 O_3 浓度秋季变化趋势
Fig. 6 Same as Fig. 5, but for changes in autumn-mean ozone concentration in the atmospheric boundary layer

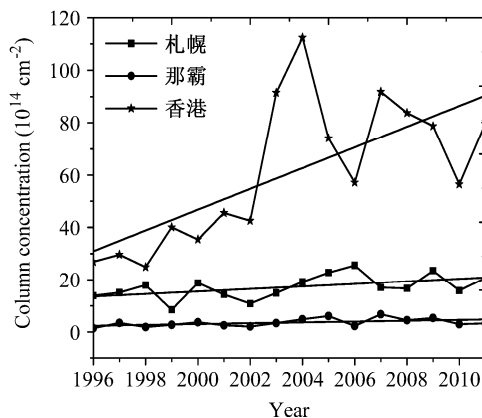


图7 1996~2010 年香港、那霸和札幌卫星反演的对流层 NO_2 柱浓度的年变化
Fig. 7 Annual variations in tropospheric NO_2 column densities deduced from satellite measurements at Hong Kong, Naha, and Sapporo during 1996-2010

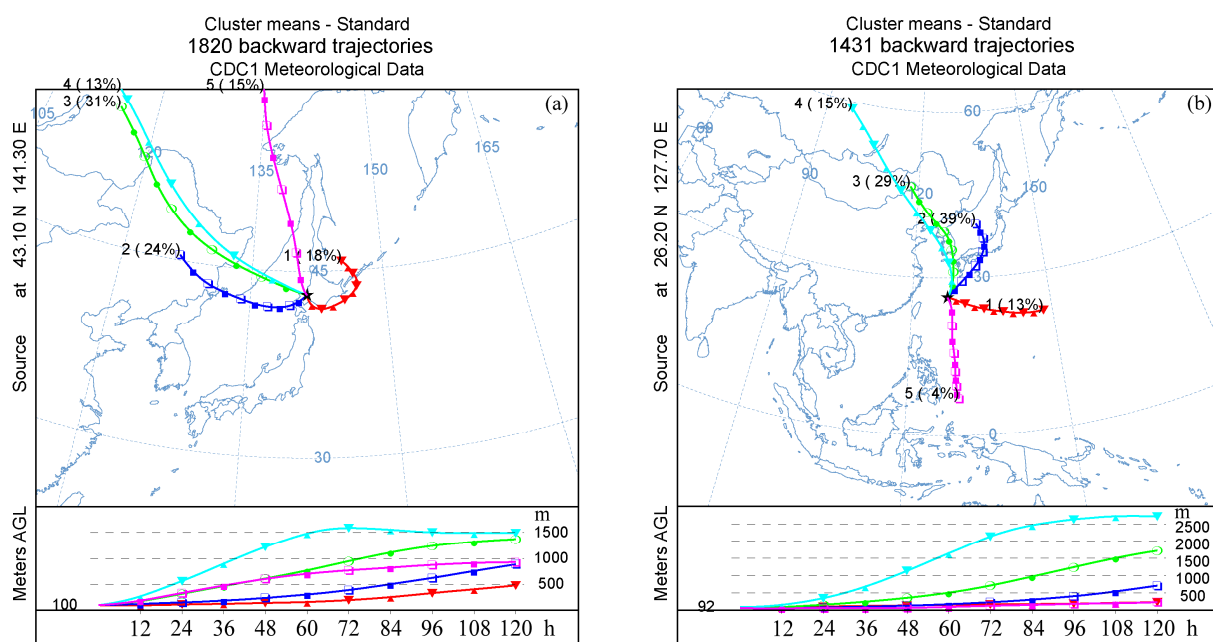


图 8 HYSPLIT 模式和 NCEP 再分析资料计算的 2006~2010 年秋季后向聚类轨迹分析：(a) 札幌、(b) 那霸

Fig. 8 Cluster analysis of back trajectories calculated with HYSPLIT model at (a) Sapporo and (b) Naha in autumn during 2006–2010

利用 HYSPLIT (Hybrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory Model) 模式计算的后向轨迹分析了影响那霸和札幌地区的各种气团。图 8 代表札幌和那霸 2006~2010 年期间秋季 5 d 的后向轨迹聚类分析。札幌秋季主要受到来自我国东北 (55%) 和俄罗斯远东地区 (20%) 的气团的影响 (Ostrovsky et al., 2012)。那霸站则主要受日本本土 (39%)、我国京津唐和东北地区 (44%) 气团的影响。卫星反演的结果表明, 中国东北部和京津唐地区 NO_2 的增长速率已超过珠三角地区 (Huang et al., 2012)。这些 O_3 前体物通过远距离输送, 是导致札幌和那霸 O_3 增加的主要原因之一。

5 结论

利用札幌、那霸、香港三个站点最近 10 年的探空资料, 结合卫星和相关的气象观测资料, 讨论 2000~2010 年期间不同纬度边界层内 O_3 浓度的季节分布和变化趋势, 系统地讨论了相关气象因子和人为排放源对它们的影响, 得到以下几点结论:

(1) 边界层内 O_3 浓度的季节分布: 三个地区春季均观测到季节平均的极大值。受东亚季风的影响, 香港和那霸站夏季 O_3 浓度最低。香港地区秋季 O_3 出现第二个极大值, 反映了人为排放污染源的影响。边界层内 O_3 浓度的季节变化是各种因素综合作用的结果, 其中平流层高浓度 O_3 向对流层

的输送, 东亚季风环流, 台风活动以及人为排放污染源的影响最为明显。

(2) 2000~2010 年期间边界层内 O_3 浓度的变化趋势: 过去 10 年日本的札幌和那霸 O_3 浓度呈上升趋势, 其年变化为 0.74 ppb a^{-1} 。卫星反演的对流层 NO_2 柱含量和 HYSPLIT 轨迹分析表明远距离输送是其增加的原因。香港地区 O_3 浓度的年际变化小, 但其秋季明显上升。珠江三角洲经济的快速发展导致 O_3 前体物 (如 NO_x 和 VOCs) 的增加, 偏北气流的影响及秋季易受西北太平洋或中国南海台风外围气流的影响等都是香港地区秋季 O_3 增加的可能原因。

致谢 本研究过程中的卫星数据由德国不莱梅大学 Andreas Richter 教授提供, 在此表示感谢。

参考文献 (References)

- Barnes R A, Bandy A R, Torres A L. 1985. Electrochemical concentration cell ozonesonde accuracy and precision [J]. J. Geophys. Res., 90 (5): 7881–7887.
- Bovensmann H, Burrows J P, Buchwitz M, et al. 1999. SCIAMACHY-Mission objectives and measurement modes [J]. J. Atmos. Sci., 56: 127–150.
- Burrows J P, Weber M, Buchwitz M, et al. 1999. The Global Ozone Monitoring Experiment (GOME): Mission concept and first scientific results [J]. J. Atmos. Sci., 56: 151–175.
- 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.
- Cooper O R, Parrish D D, Stohl A, et al. 2010. Increasing springtime ozone mixing ratios in the free troposphere over western North America [J]. *Nature*, 426: 334–348.
- Fishman J, Watson C E, Larsen J C, et al. 1990. Distribution of tropospheric ozone determined from satellite data [J]. *J. Geophys. Res.*, 95D4: 3599–3617.
- Fishman J, Balok A E. 1999. Calculation of daily tropospheric ozone residuals using TOMS and empirically improved SBUV measurements: Application to an ozone pollution episode over the eastern United States [J]. *J. Geophys. Res.*, 104 (30): 319–340.
- Harris N, Hudson R, Phillips C. 1998. SPARC/IOC/GAW assessment of trends in the vertical distribution of ozone. SPARC Report No. 1 [R]. WMO global Ozone Research and Monitoring Report, No.43.289.
- He Y J, Uno I, Wang Z F, et al. 2008. Significant impact of the East Asia monsoon on ozone seasonal behavior in the boundary layer of eastern China and the est Pacific region [J]. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 8: 14927–14955.
- Heue K P, Richter A, Bruns M, et al. 2005. Validation of SCIAMACHY tropospheric NO₂ columns with AMAXDOAS measurements [J]. *Atmos. Chem. Phys.*, 54: 1039–1051.
- Huang J P, Fung J C H, Lau K, et al. 2005. Numerical simulation and process analysis of typhoon-related ozone episodes in Hong Kong [J]. *J. Geophys. Res.*, 110 (D5), D05301, doi:10.1029/2004JD004914.
- Huang J P, Zhou C H, Lee X H, et al. 2013. Impact of rapid urbanization on seasonal changes in tropospheric nitrogen dioxide and ozone over East China [J]. *Atmospheric Environment*, 77: 558–567.
- IPCC. 2007. Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change [M]. UK: Cambridge University Press.
- Jaffe D, Ray J. 2007. Increase in surface ozone at rural sites in the western US [J]. *Atmos. Environ.*, 41: 5452–5463.
- Komhyr W D, Barmes R A, Brothers G B, et al. 1995. Electrochemical concentration cell ozonesonde performance evaluation during STOIC 1989 [J]. *J. Geophys. Res.*, 100 (7): 231–9244.
- Kusmierczyk-Michulec J, De Leeuw G. 2005. Aerosol optical thickness retrieval over land and water using Global Ozone Monitoring Experiment (GOME) data [J]. *J. Geophys. Res.*, 110 (D10), doi:10.1029/2004JD004780.
- Liu H D, 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 (D21), 4573.
- Martin R V, Chance K, Jacob D J, et al. 2002. An improved retrieval of tropospheric nitrogen dioxide from GOME [J]. *J. Geophys. Res.*, 107 (D20): 4437.
- McKeen S A, Hsie E Y, Liu S C. 1991. A study of the dependence of rural ozone on ozone precursors in the Eastern United States [J]. *J. Geophys. Res.*, 96 (6): 15377–15394.
- Naja M, Akimoto H. 2004. Contribution of regional pollution and long-range transport to the Asia-Pacific region: Analysis of long-term ozonesonde data over Japan [J]. *J. Geophys. Res.*, 109, D21306, doi:10.1029/2004JD004687.
- Oltmans S J, Lefohn A S, Scheel H E, et al. 1998. Trends of ozone in the troposphere [J]. *Geophys. Res. Lett.*, 25: 139–142.
- 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 (D15), doi:10.1029/2003JD003466.
- Ostrovsky A V. 2012. Common development programs of the Russian Far East and Northeast China: Problems and prospects [J]. *Academic Journal of Russian Studies*, (2): 13–23.
- Parrish D D, Law K S, Staehelin J, et al. 2012. Long-term changes in lower tropospheric baseline ozone concentrations at northern mid-latitudes [J]. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 12: 13881–13931.
- Poberaj C S, Staehelin J, Brunner D, et al. 2009. Long-term changes in UT/LS ozone between the late 1970s and the 1990s deduced from the GASP and MOZAIC aircraft programs and from ozonesondes [J]. *Atmos. Chem. Phys.*, 9: 5343–5369.
- Staehelin J, Harris N R P, Appenzeller C, et al. 2001. Ozone trends: A review [J]. *Rev. Geophys.*, 39 (2): 231–290.
- 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.
- 徐晓斌, 丁国安, 李兴生, 等. 1998. 龙凤山大气近地层 O₃ 浓度变化及与其它因素的关系 [J]. *气象学报*, 56 (5): 560–572. Xu Xiaobin, Ding Guoan, Li Xingsheng, et al. 1998. Variability and related factors of the surface O₃ at Longfengshan in Northeast China [J]. *Acta Meteorologica Sinica (in Chinese)*, 56 (5): 560–572.
- 杨建, 吕达仁. 2004. 东亚地区平流层、对流层交换对 O₃ 分布影响的模拟研究 [J]. *大气科学*, 28 (4): 579–588. Yang Jian, Lü Daren. 2004. Simulation of stratosphere–troposphere exchange effecting on the distribution of ozone over eastern Asia [J]. *Chinese Journal of Atmospheric Sciences (in Chinese)*, 28 (4): 579–588.
- 俞晓岚. 2001. 香港实施改善空气质量新措施 [J]. *福建环境*, (2): 41. Yu Xiaolan. 2001. The implementation of new measures to improve air quality in Hong Kong [J]. *Fujian Environment (in Chinese)*, (2): 41.
- 郑永光, 陈炯, 陈尊裕, 等. 2008. 中国南部对流层中上层 O₃ 增加的气象场判识及 O₃ 变化的多尺度特征 [J]. *地球物理学报*, 51 (3): 668–681. Zheng Yongguang, Chen Jiong, Chan Chuenyu, 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 (3): 668–681.