

鞠晓雨, 郭凤霞, 鲍敏, 等. 2015. 青藏高原闪电与NO<sub>2</sub>的分析及中国内陆地区LNO<sub>x</sub>产量的估算 [J]. 气候与环境研究, 20 (5): 523–532. Ju Xiaoyu, Guo Fengxia, Bao Min, et al. 2015. Estimation of lightning-generated NO<sub>x</sub> in inland China by comparison of the lightning activity and NO<sub>2</sub> distribution over the Tibetan Plateau [J]. Climatic and Environmental Research (in Chinese), 20 (5): 523–532, doi:10.3878/j.issn.1006-9585.2015.14252.

# 青藏高原闪电与NO<sub>2</sub>的分析及中国内陆地区 LNO<sub>x</sub>产量的估算

鞠晓雨<sup>1</sup> 郭凤霞<sup>2,3</sup> 鲍敏<sup>2,3</sup> 穆奕君<sup>2,3</sup> 郑天雪<sup>2,3</sup>

<sup>1</sup> 安徽省防雷中心, 合肥 230061

<sup>2</sup> 南京信息工程大学气象灾害预报预警与评估协同创新中心, 南京 210044

<sup>3</sup> 南京信息工程大学中国气象局气溶胶与云降水重点开放实验室, 南京 210044

**摘要** 为了进一步认识闪电活动与对流层氮氧化物的关系及更准确地估算中国地区闪电产生的氮氧化物(LNO<sub>x</sub>)总量, 选取人口稀疏, 工业生产水平较低的青藏高原地区作为研究区域, 基于 LIS (Lightning Imaging Sensor) 和 GOME-2 (The Global Ozone Monitoring Experiment-2) 卫星探测仪资料, 分析了青藏高原中部区域 2009 年 1 月至 2012 年 2 月闪电与对流层 NO<sub>2</sub> 垂直浓度 (VCD) 月均值资料的时空分布特性和相关性。在此基础上, 结合 Beirle et al. (2004) 的 LNO<sub>x</sub> 估算方法, 估算了中国内陆地区的 LNO<sub>x</sub> 产量。结果表明: 青藏高原地区对流层 NO<sub>2</sub> 与闪电在年际趋势、空间分布及季节变化上保持很好的一致性, 闪电密度与 NO<sub>2</sub>VCD 的线性拟合相关系数为 0.84, 这表明青藏高原地区 NO<sub>x</sub> 受人源影响小, 是研究 LNO<sub>x</sub> 的理想区域。基于拟合结果, 估算得到中国内陆地区 LNO<sub>x</sub> 的年均产量为 0.15 (0.03~0.38) Tg(N) a<sup>-1</sup>。这一结论进一步缩小了以往研究中中国地区 LNO<sub>x</sub> 产量估算的不确定范围, 有助于更清楚地认识闪电在中国气候变化中的重要作用。

**关键词** 青藏高原 闪电 LNO<sub>x</sub> 对流层

文章编号 1006-9585 (2015) 05-0523-10

中图分类号 P446

文献标识码 A

doi:10.3878/j.issn.1006-9585.2015.14252

## Estimation of Lightning-Generated NO<sub>x</sub> in Inland China by Comparison of the Lightning Activity and NO<sub>2</sub> Distribution over the Tibetan Plateau

JU Xiaoyu<sup>1</sup>, GUO Fengxia<sup>2,3</sup>, BAO Min<sup>2,3</sup>, MU Yijun<sup>2,3</sup>, and ZHENG Tianxue<sup>2,3</sup>

<sup>1</sup> Anhui Lightning Protection Center, Hefei 230061

<sup>2</sup> Collaborative Innovation Center on Forecast and Evaluation of Meteorological Disasters, Nanjing University of Information Science and Technology, Nanjing 210044

<sup>3</sup> Key Laboratory for Aerosol-Cloud-Precipitation of China Meteorological Administration, Nanjing University of Information Science and Technology, Nanjing 210044

**Abstract** In order to better understand the relationship between lightning activities and nitrogen oxide (LNO<sub>x</sub>) in the troposphere, and estimate the lightning-generated NO<sub>x</sub> production in China more precisely, monthly means of lightning density and tropospheric NO<sub>2</sub> vertical column densities (VCD) from the Tibetan Plateau, where there is a sparse population and underdeveloped industrial activity, are analyzed in terms of their distribution and correlation. The data are obtained from LIS (Lightning Imaging Sensor) measurements and GOME-2 (the Global Ozone Monitoring Experiment-2) from January

收稿日期 2014-11-26; 网络预出版日期 2015-05-18

资助项目 国家自然科学基金项目 41275008, 国家重点基础研究发展计划项目 2014CB441403, 公益性行业(气象)科研专项 GYHY201306069, 安徽省防雷业务综合应用平台项目 KM201410

作者简介 鞠晓雨, 女, 1988 年出生, 助理工程师, 主要从事雷电监测预警及雷暴电学研究。E-mail: jxy\_1101@hotmail.com

2009 to February 2012. The LNO<sub>x</sub> production in inland China is estimated based on Beirle's LNO<sub>x</sub> estimation method. The results show that the tropospheric NO<sub>x</sub> over the selected region of inland China is influenced little by anthropogenic sources. Lightning densities over the region are in reasonable agreement with tropospheric NO<sub>2</sub> in terms of annual, spatial and seasonal variations. Combined with the correlation coefficient of 0.84 calculated by linear fitting, LNO<sub>x</sub> production in inland China is evaluated as 0.15 (0.03–0.38) Tg(N) a<sup>-1</sup>. It is indicated that the Tibetan Plateau is an ideal area to study LNO<sub>x</sub>. The conclusion further reduces the estimation uncertainty range of LNO<sub>x</sub> production in previous work, helping us to more clearly recognize the important role of lightning in climate change in China.

**Keywords** Tibetan Plateau, Lightning, LNO<sub>x</sub>, Troposphere

## 1 引言

氮氧化物 (NO<sub>x</sub>: NO+NO<sub>2</sub>) 是大气化学中一种十分重要的痕量气体, 秦瑜和赵春生 (2003) 研究指出, 氮氧化物一方面影响臭氧 (O<sub>3</sub>) 的形成, 另一方面与经氢氧根 (OH) 氧化生成的硝酸 (HNO<sub>3</sub>) 及与二氧化硫 (SO<sub>2</sub>) 生成的硫酸 (H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>) 等一起形成酸雨, 影响着对流层的化学结构和气候环境。全球现有的 NO<sub>x</sub> 源主要可以分为人为排放 (化石燃料的燃烧、尾气排放、生物质燃烧、飞机排放等) 和自然排放 (闪电、土壤微生物等)。近年来国内外许多研究表明, 闪电产生的 NO<sub>x</sub> (LNO<sub>x</sub>) 虽然只占全球 NO<sub>x</sub> 的 10%~20% (Seinfeld and Pandis, 1997), 但其在对流层上层却起到了决定性的作用。对流层中只有 20% 的 NO<sub>x</sub> 来自地面的向上输送, 而 50% 以上来自闪电的贡献, 特别在热带和亚热带地区, 对流层顶 70% 以上的 NO<sub>x</sub> 均来自闪电 (Martin et al., 2002)。该区域内 NO<sub>x</sub> 的生命史要远高于近地面 (Levy et al., 1999), 控制着对流层 O<sub>3</sub> 和 OH 自由基的含量, 影响着全球大气环境和气候变化, 所以 LNO<sub>x</sub> 已逐渐成为大气化学及雷电科学领域内的一个研究重点。

迄今为止, 众多学者利用理论模式、实验室模拟、野外观测和卫星平台等研究手段分析了 LNO<sub>x</sub> 的特性并估算了局地或全球的 LNO<sub>x</sub> 产量。在早期的理论计算中, 主要对闪电的各个参数, 如温度、闪电频数、峰值电流、通道长度半径等做出假设来估算 LNO<sub>x</sub> 的全球产量和分布情况, 由于各个学者所选用的参数各有不同, 计算结果差异较大。近年来, 包含闪电的参数化方案的云模式和全球化学模式开始被运用到 LNO<sub>x</sub> 研究中, 逐步缩小了估算的不确定范围。实验室模拟方面, Chameides et al. (1987) 通过火花放电第一次在实验室中得到了 NO<sub>x</sub> 的量并外推计算出全球闪电产生的 NO<sub>x</sub> 量, 随

后其他研究人员也做了类似的相关试验 (Lawrence et al., 1995; Wang et al., 1998), 但在实验室中难以完全模拟出自然闪电的特性, 这是利用该研究方法在估算时出现较大误差的主要原因。早期的野外观测试验是在地面上利用观测仪来分析雷暴附近的 NO<sub>x</sub> 特征。从 20 世纪 90 年代开始, 学者们利用配备了测量大气痕量气体设备的飞机进行穿云试验, 直接观测雷暴云中及附近区域的 NO<sub>x</sub> 浓度变化, 再通过外推来估算全球的 LNO<sub>x</sub> 产量。穿云观测试验中的雷暴由于地区的不同存在一定的特异性, 使得不同雷暴 LNO<sub>x</sub> 计算的结果存在一定的差异。相对以上的研究手段, 基于卫星平台的大气痕量气体的探测是一种较为全面的方法, 它们可以持续数年的观测, 并可提供全球统一的数据集。随着卫星资料越来越多地运用到 NO<sub>x</sub> 研究中, LNO<sub>x</sub> 含量及分布也越来越精确。随着人们逐渐意识到闪电对全球 N 循环的重要性, 估算 LNO<sub>x</sub> 已成为当前雷电领域的研究热点之一, 表 1 中给出了各学者利用不同研究手段得到的全球 LNO<sub>x</sub> 估算结果。由于闪电产生的 NO<sub>x</sub> 具有很大的不确定性, 全球 LNO<sub>x</sub> 的计算结果范围为 1~220 Tg(N) a<sup>-1</sup>, 近十几年不确定性被缩小至 2~20 Tg(N) a<sup>-1</sup> (Schumann and Huntrieser, 2007)。

表 1 各学者通过不同研究手段得出的一些全球 LNO<sub>x</sub> 年产量结果

Global LNO <sub>x</sub> production per year through different methods from literatures		Tg(N) a <sup>-1</sup>	
理论模式模拟 LNO <sub>x</sub> 年产量	实验室模拟 LNO <sub>x</sub> 年产量	野外观测 LNO <sub>x</sub> 年产量	卫星平台观测 LNO <sub>x</sub> 年产量
0.2(孙安平等, 2004)	2(1~8) (Lawrence et al., 1995)	30(Drapcho et al., 1983)	3.5(1.1~6.4) (Boersma et al., 2005)
6.6(Murray et al., 2012)	2.5~8.3(Wang et al., 1998)	0.3~0.7 (Huntrieser et al., 1998)	2.8 (0.8~14) (Beirle et al., 2004)

目前, 针对于中国地区 LNO<sub>x</sub> 的估算以及研究主要是基于闪电的单方面资料并结合理论计算, 或

者是基于某次雷暴过程的闪电和氮氧化物地面观测资料, 结果有  $0.016 \text{ Tg (N) a}^{-1}$  和  $0.38 \text{ Tg(N) a}^{-1}$  (周筠珺和鄒秀书, 2002; 孙安平, 2004)。而卫星平台能够直接探测到对流层 NO<sub>x</sub> 的浓度变化和闪电的活动情况, 可为 LNO<sub>x</sub> 的估算提供长时间、大尺度范围的数据产品, 避免了理论计算时对众多物理参量选取的复杂性和地面观测外推时的特异性。为了尽量减小对流层其他 NO<sub>x</sub> 源对 LNO<sub>x</sub> 的估算带来的影响, 选取一个除闪电外, 其他源对 NO<sub>x</sub> 影响较小的研究区域是一种有效的途径。中国青藏高原区域大多数地方人烟稀少, 人为排放量所占比重很小, NO<sub>x</sub> 主要来源于自然排放; 同时该地区热力作用对流比较旺盛, 雷暴活动较周围地区也相对活跃, 所以是进行 LNO<sub>x</sub> 估算研究的理想区域。NO<sub>2</sub> 为对流层 NO<sub>x</sub> 的成分之一, 故本文利用 LIS (Lightning Imaging Sensor) 和 GOME-2 (the Global Ozone Monitoring Experiment-2) 卫星的逐月资料, 通过分析青藏高原地区闪电与 NO<sub>2</sub> 的时空分布特征, 估算了中国地区 LNO<sub>x</sub> 的产量, 该研究有利于进一步缩小 LNO<sub>x</sub> 的估算范围, 并明确闪电在中国气候变化中的作用。

## 2 资料介绍

本文所采用的闪电资料是美国全球水资源和气候中心 (GHRC) 提供的最新的 OTD (Optical Transient Detector) /LIS2.3 版本格点资料。该资料由 5 年 (1995 年 4 月至 2000 年 3 月) OTD 资料和 14 年 (1998 年 1 月至 2012 年 2 月) LIS 资料合成, 总的时间尺度为 17 年。文中所选取时间序列内的格点资料由 LIS 观测得出。产品数据中每一个网格点上的闪电率密度由探测器探测到的该网格点上的总闪电数除以对该网格点的实际照射时间而得, 并经过了探测器探测效率及网格面积等的订正。闪电成像感应器 LIS 搭载于热带测雨任务卫星 TRMM (Tropical Rainfall Measuring Mission)。该卫星于 1997 年发射至距地球 350 km 高的近地轨道, 轨道倾角为 35°。LIS 采用  $128 \times 128$  像素点的 CCD (Charged Coupled Device) 阵列组成, 使用一个中心波长为 77 nm 的窄带滤波器来探测闪电。其需要大约 49 d 的时间来完成一个完整的本地日循环, 给出闪电发生的时间、持续时间、位置和闪电光辐射能等, 但不能区分云、地闪。LIS 通过一个中心波长为 777 nm 的窄带滤波器来探测闪电, 实时时间

处理器可以去除背景光信号, 将闪电信号从白天很强的背景中检测出来, 因此可对闪电进行昼夜监测。研究表明 LIS 在夜晚和白天的探测效率分别为  $93\% \pm 4\%$  和  $73\% \pm 11\%$  (Boccippio et al, 2002; Cecil et al., 2012)。

文中所涉及的气体浓度柱资料是由荷兰皇家气象研究所 (TEMIS) 提供的二级月均值产品, 通过搭载于 2006 年 10 月欧洲航空局发射的 METOP-A 卫星上的全球臭氧监测试验仪 GOME-2 观测得出。该卫星轨道高度约 840 km, 倾角为 98.8°。该试验仪上所携带的 4 个分光计的光谱范围为 240~790 nm, 光谱分辨率为 0.2~0.4 nm, 空间分辨率为  $80 \text{ km} \times 40 \text{ km}$ , 利用先进的光栅分光技术观测地球反射太阳光谱, 从太阳同步轨道对地球大气层痕量气体进行高精度的全面探测。对于 GOME-2 卫星探测仪的 NO<sub>2</sub> 浓度柱产品的验证工作和误差分析已有大量较为成熟的研究, 结果表明, GOME-2 探测仪的 NO<sub>2</sub> 观测数据中, 每像素的相对误差约为  $(0.3 \sim 0.6) \times 10^{15} \text{ molec/cm}^2$  (molec 表示分子个数) (Boersma et al., 2005)。由于该仪器不观测 NO<sub>x</sub> 中的 NO 气体, 故本文选取 GOME-2 试验仪探测并经过处理的 NO<sub>2</sub> 垂直柱浓度 (VCD) 月均产品 ( $10^{14} \text{ molec/cm}^2$ ) 进行分析反演。该产品利用 GOME-2 观测到的大气层 NO<sub>2</sub> 总浓度柱减去平流层浓度柱, 得到的差值经过化学模式 TM3 再分析和订正后的格点化资料 (Boersma et al., 2004, 2005), 时间覆盖范围为 2007 年 1 月至 2012 年 12 月。

本文在研究青藏高原地区闪电活动与氮氧化物的分布特征时, 选取的两个卫星资料的经纬度范围为 ( $26^\circ \text{N} \sim 37^\circ \text{N}$ ,  $78^\circ \text{E} \sim 100^\circ \text{E}$ ), 而在分析两者的年际变化趋势时, 所选取资料的时间序列为 2009 年 1 月至 2012 年 2 月共 38 个月。

## 3 青藏高原地区闪电和 NO<sub>2</sub> 的时空特征及相关性

### 3.1 闪电与对流层 NO<sub>2</sub> 的时空分布特征

Lin (2012) 通过 GEOS-Chem 模式模拟结果表明, 针对整个中国地区, 化石燃料燃烧是 NO<sub>x</sub> 主要来源, 这是由于近十年来迅速的经济的发展使得人为工业活动对对流层 NO<sub>x</sub> 的影响愈发强烈, 尤其在中国东部人口密集和工业发达的地区更为突出, 这些区域对流层 NO<sub>x</sub> 源的组成比较复杂。青藏高原地区

工业生产水平较低,人口稀疏,结合国家统计局的年度统计资料表明(中华人民共和国国家统计局,2012),其化石燃料和生物质燃烧等人为排放的 $\text{NO}_x$ 量较小,对流层的 $\text{NO}_x$ 源主要来自于自然排放(张兴赢等,2007);岳捷等(2009)利用 GOME 和 SCIAMACHY (Scanning Imaging Absorption spectrometer for Atmospheric Chartography) 卫星观测数据并结合大气化学传输模式分析了中国地区对流层 $\text{NO}_2$ 的分布特征,研究中发现西部背景地区 $\text{NO}_2$ 人为源几乎为零,主要为自然排放源。朱润鹏等(2013)基于卫星观测资料发现青藏高原等高海拔地区由于地理位置和海拔高度的影响下闪电活动较为活跃;郭凤霞和陈聪(2012)通过高层大气研究卫星(UARS)上的卤素掩星实验仪(HALOE)的卫星资料研究表明, $80^\circ\text{E}\sim 90^\circ\text{E}$ 的青藏高原南部是中国地区对流层 $\text{NO}_x$ 集中地区之一,该地区闪电密度均明显高于周围地区, $\text{NO}_x$ 极值中心和闪电密度在空间分布的吻合证明闪电越多的区域 $\text{NO}_x$ 的含量也越大;杜健等(2002)通过理论计算得出,经纬度范围在( $26^\circ\text{N}\sim 40^\circ\text{N}$ ,  $78^\circ\text{E}\sim 105^\circ\text{E}$ )的青藏高原地区 $\text{LNO}_x$ 量各年变化不大,占中国地区的 $9.1\%\sim 12.2\%$ ,5年平均值为 $10.2\%$ 。此外,有研究指出,作为对流层 $\text{NO}_x$ 源之一的土壤微生物排放,其月均数据并没有明显的年际变化规律(Potte et al., 1996);且边界层向对流层输送的 $\text{NO}_x$ 中,有 $50\%\sim 75\%$ 的 $\text{NO}_x$ 增量来源于 $\text{LNO}_x$ (Huntrieser et al., 1998)。因此,结合各研究学者的结论以及青藏高原特殊的地质因素,本文暂不考虑土壤微生物排放以及边界层输送带来的影响,分析对流层 $\text{NO}_x$ 组成部分之一的 $\text{NO}_2$ 含量与闪电密度的关系。

图1是利用 LIS 和 GOME-2 探测数据给出的2010年不同月份的青藏高原地区闪电活动[闪电密度,单位: $\text{flashes d}^{-1} \text{ km}^{-2}$ (flashes表示闪电次数)]与对流层 $\text{NO}_2$  VCD 分布情况,选取1、4、7、10月是为了体现春、夏、秋、冬四个季节的不同特征。图1a中表明,青藏高原地区的闪电活动情况呈现出明显的季节特征,夏季是雷暴活动最为频繁的时期,闪电频数最大值位于唐古拉山脉南麓的青藏高原中部,春秋东部比西部高,与郟秀书和 Toumi (2003)通过 LIS 观测到的青藏高原雷电活动特征基本一致;张鸿发等(2003)也利用雷暴天气资料分析指出,青藏高原多雷暴中心集中在高原中部的那曲、安多和索县一带,自东向西,与青藏高原山

脉走向一致。

从图1b中可以看出,该区域 $\text{NO}_2$  VCD 也呈现出较为明显的夏高冬低的分布特征,各季节 $\text{NO}_2$ 浓度的峰值区域与同时期闪电频数峰值区域基本一致,闪电较少的区域, $\text{NO}_2$ 也较少,闪电较多的区域, $\text{NO}_2$ 也较多。在7月份的夏季,整体 $\text{NO}_2$ 浓度较高。而国内外很多研究则表明,在中国东部地区, $\text{NO}_2$ 在冬季出现最高值,夏季是低值,原因是该区域对流层 $\text{NO}_2$ 主要来源于人为排放,排放源不呈现出季节性变化规律,但由于冬季的气象因子不利于大气扩散,污染物可以长时间留存在对流层中,表现出冬高夏低的季节特征。而在青藏高原等西部地区,由于化石燃料、交通尾气等人为活动带来的影响较小,对流层 $\text{NO}_2$ 的最大值出现在夏季,表明自然源是该地区 $\text{NO}_2$ 的主要贡献者。张兴赢等(2007)通过研究指出,中国东部对流层 $\text{NO}_2$ 的最大值在冬季,来源主要为人为排放;而西部的最大值在夏季,自然排放为主要贡献者。

在青藏高原西南缘的印度半岛及尼泊尔一侧地区,闪电密度与 $\text{NO}_2$  VCD 全年均处于较高值,变化较小,这一方面由于印度半岛与西藏地区气候的显著差异,高原南侧受到来自印度洋西南季风的影响,雨量丰沛,闪电活动频繁(郟秀书和 Toumi, 2003),而喜马拉雅山脉的阻隔使得北部温凉干燥,闪电活动相对较少;另一方面喜马拉雅山脉南侧的印度半岛、尼泊尔地区人口较为稠密, $\text{NO}_2$  VCD 受到人为源的影响较大,对流层 $\text{NO}_x$ 源的组成较为复杂。

### 3.2 闪电密度与 $\text{NO}_2$ VCD 年际变化特征及相关性

青藏高原中部区域( $26^\circ\text{N}\sim 37^\circ\text{N}$ ,  $78^\circ\text{E}\sim 100^\circ\text{E}$ )对流层 $\text{NO}_x$ 受其他源影响较小,且通过对比图1a和1b可知其与闪电呈现较好的对应关系,因此我们针对这一区域进一步分析两者的年际变化趋势、季节分布及相关性。图2中的实线和虚线展示了2009年1月至2012年2月共38个月内对流层上空 $\text{NO}_2$ 浓度月均值和闪电月平均活动密度的时间序列变化,图3给出了两者的季节分布情况(春季:3~5月,夏季:6~8月,秋季:9~11月,冬季:12~2月)。

图2中可以看出,该地区闪电活动年际变化趋势呈现出一年周期性变化,从2月份开始闪电活动增强,最大值出现在7、8月,9月份开始,由于受到冷空气影响,闪电活动急剧减少,到11、12、

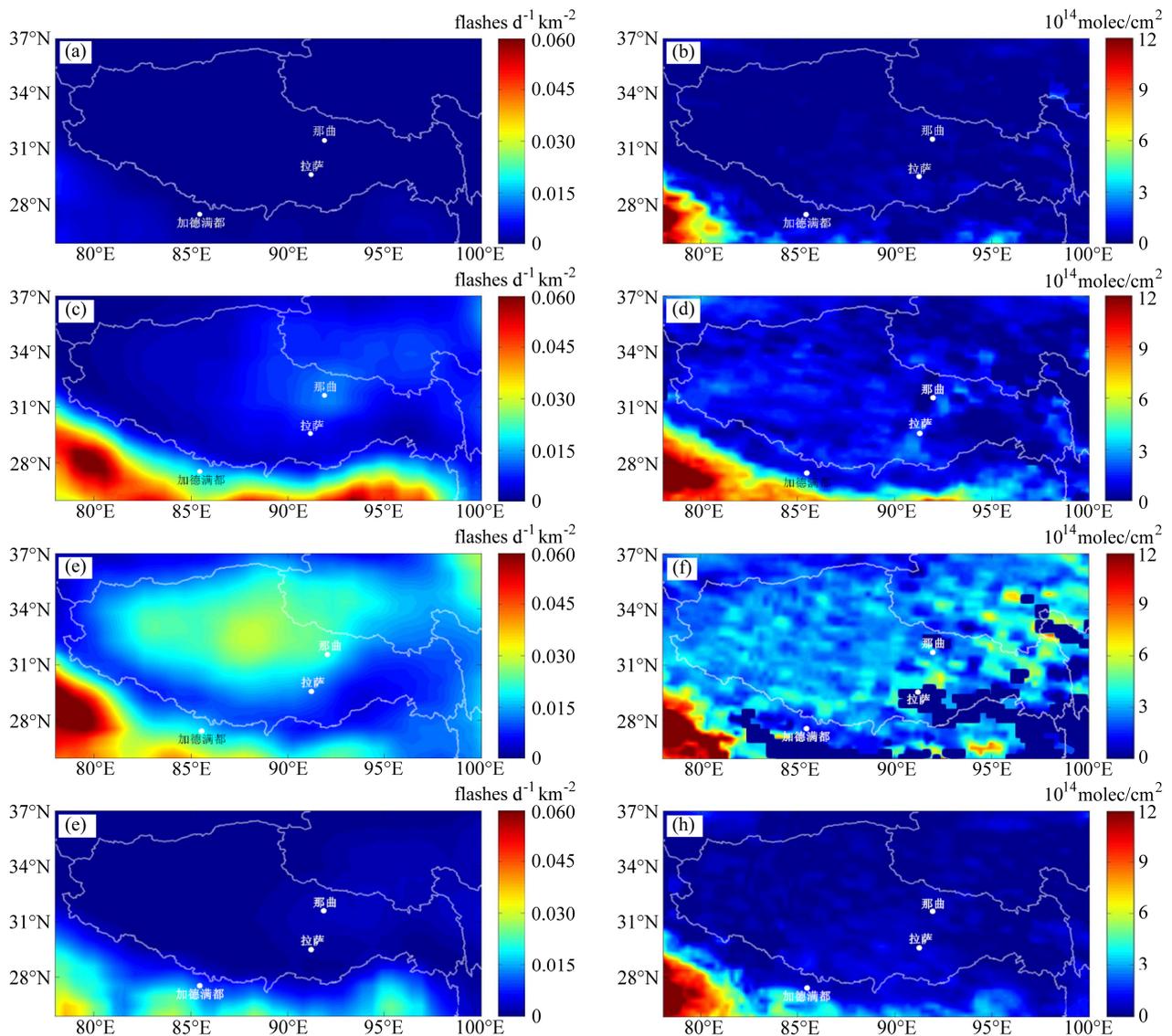


图1 2010年1、4、7、10月青藏高原地区闪电密度(左列, 单位:  $\text{flashes d}^{-1} \text{ km}^{-2}$ )与NO<sub>2</sub>VCD(右列, 单位:  $10^{14} \text{ molec/cm}^2$ )分布特征:(a、b) 1月;(c、d) 4月;(e、f) 7月;(g、h) 10月

Fig. 1 Distribution of lightning density (left column, units:  $\text{flashes d}^{-1} \text{ km}^{-2}$ ) and NO<sub>2</sub>VCD (Vertical Column Density) (right column, units:  $10^{14} \text{ molec/cm}^2$ ) over the Tibetan Plateau in (a, b) January, (c, d) April, (e, f) July, and (g, h) October 2010

1月时达到最低值。对流层NO<sub>2</sub>VCD的年际变化趋势总体上与闪电年际变化趋势总体上基本一致, 峰值出现在7、8月, 在12、1月达到最低值。但由于氮氧化物的寿命与温度有着显著的关系, 温度越低, 氮氧化物的生命周期越长, 所以在图3中可以看出, 当青藏高原进入秋冬季时, 闪电活动急剧减弱, 对流层NO<sub>2</sub>VCD仍然保持着一定的浓度。不过从长时间两者的整体季节变化情况来看, 该地区的闪电活动频次和对流层NO<sub>2</sub>VCD总体都表现为夏季>春季>秋季>冬季。而张兴赢等(2007)对1997~2007年10年的中国对流层NO<sub>2</sub>变化趋势研究表明, 东部地区在闪电极少的冬季, NO<sub>2</sub>VCD仍

均在 $8 \times 10^{15} \text{ molec/cm}^2$ 以上, 且呈现出 $1.15 \times 10^{15} \text{ molec cm}^{-2} \text{ a}^{-1}$ 的年均增长趋势, 这也进一步证实了该地区对流层氮氧化物受人为源影响较小。此外, 在几乎没有闪电发生的冬季, NO<sub>2</sub>的浓度大于零, 平均浓度为 $2.7 \times 10^{14} \text{ molec/cm}^2$ , 数值变化小, 较为稳定, 表明土壤微生物以及冰雪的光化学释放(林伟立等, 2011)等可能是除闪电外主要的自然源。

通过分析图2发现, 每年的春季会出现两者趋势不同的奇异点, 分别发生在2009年5月、2010年4月和2011年5月, 这可能由于该时期青藏高原地区大气环流变化引起的。有研究表明, 一

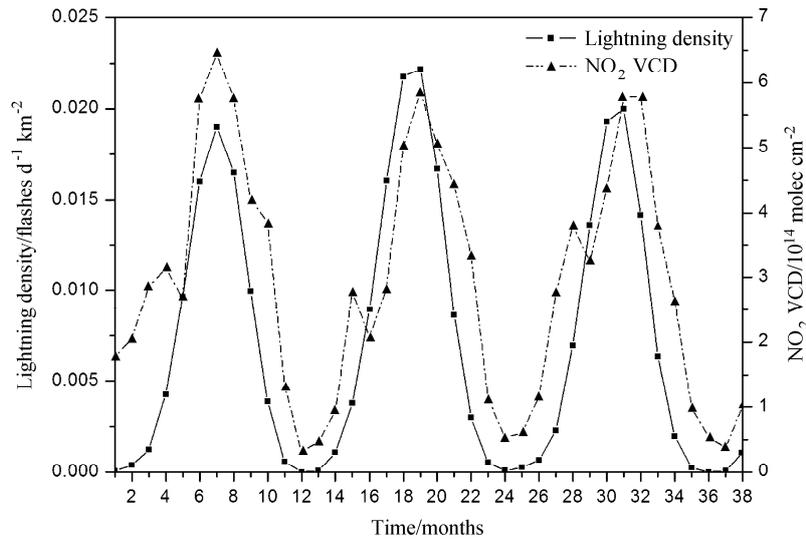


图2 2009年1月至2012年2月闪电密度与NO<sub>2</sub>VCD年际变化趋势

Fig. 2 Annual trend of lightning density and NO<sub>2</sub>VCD from Jan 2009 to Feb 2012

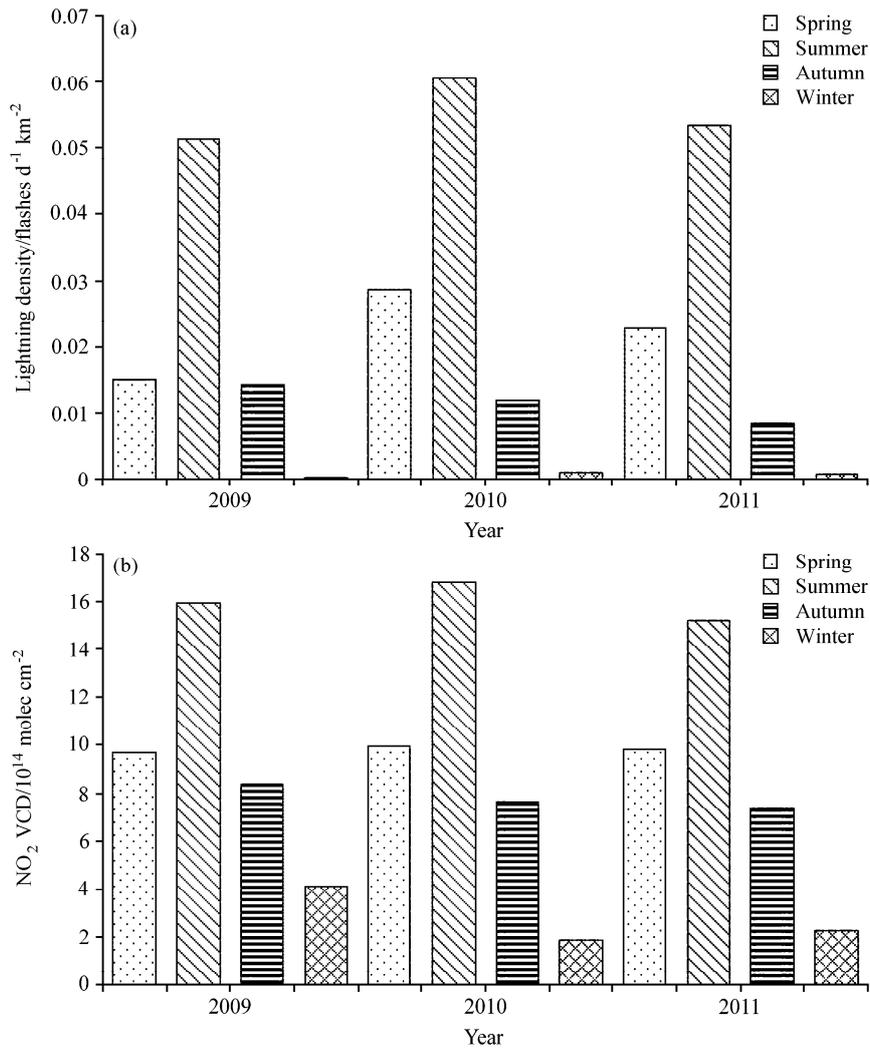


图3 (a) 闪电密度与 (b) 对流层NO<sub>2</sub>VCD季节分布

Fig. 3 Seasonal distribution of (a) lightning density and (b) tropospheric NO<sub>2</sub>VCD

般位于赤道到 30°N (S) 之间存在 Hadley 环流圈, 该环流是垂直经圈环流中重要的组成部分, 在赤道辐合带上升, 在两个半球的副热带地区下沉(刘新等, 2002)。但在春末夏初(4~6 月)的东亚大陆, 青藏高原融雪吸热和土壤温度的升高使得高原对大气的感热加热最强, 成为一个温度高于高原南边海洋的巨大热源。随着加热作用的增强, Hadley 环流减弱并消失, 逐渐发展成与其他地区 Hadley 环流方向相反的季风环流(钱正安等, 2001)。这种垂直环流的变化可能影响到对流层痕量气体的含量, 使得将对流层 NO<sub>2</sub> 浓度在环流变化期内降低, 呈现出与闪电密度活动不同的趋势。本文针对两者趋势的奇异点这一现象给出解释尚且为一种猜想, 有关这方面的研究尚不成熟, 目前还无法肯定其正确性, 今后需要针对更长时间序列的 NO<sub>2</sub>VCD 和闪电活动情况进行对比, 并结合风场资料以及大气化学传输模式来进一步分析大气环流对对流层 LNO<sub>x</sub> 传输所带来的影响, 明确出现奇异点的原因。

由于闪电密度与 NO<sub>2</sub>VCD 月均值变化趋势一致性较好, 本文对两者进行线性拟合。如图 4 所示, 实线为 2009 年 1 月至 2012 年 2 月两者 38 个月所有月均值数据的拟合曲线, 相关系数  $R_a=0.84$ , 相关程度比较明显。为了更好的描述闪电活动频繁时期与 NO<sub>2</sub> 浓度的响应关系以及下文中估算中国地区 LNO<sub>x</sub> 的产量, 图中还给出了闪电资料中月均值频次大于 0.001 flashes d<sup>-1</sup> km<sup>-2</sup> 时两者的拟合结果, 用虚线表示,

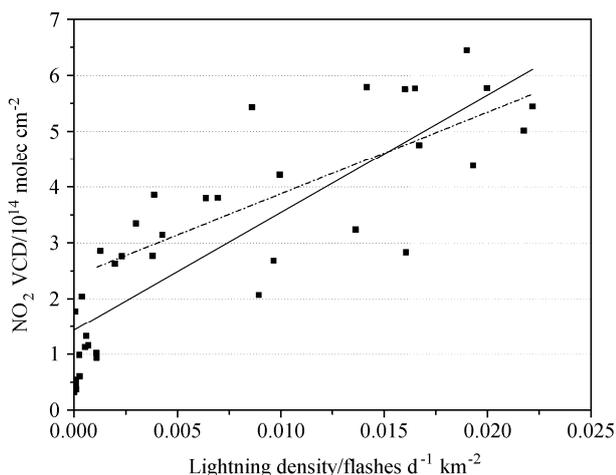


图 4 青藏高原中部地区闪电密度与 NO<sub>2</sub>VCD 相关性变化(实线表示所有月份的拟合结果, 虚线表示当闪电频次大于 0.001 flashes d<sup>-1</sup> km<sup>-2</sup> 的拟合情况)

Fig. 4 Correlation of lightning density and NO<sub>2</sub>VCD for the central Tibetan Plateau (full line is for all data points; dashed line is for data with lightning density more than 0.001 flashes d<sup>-1</sup> km<sup>-2</sup>)

$R_b=0.72$ 。两条拟合曲线的斜率分别为  $k_a=210$  和  $k_b=147$ , 表示卫星观测到闪电带来的 NO<sub>2</sub>VCD 增量, 误差值约为 25.5, 单位:  $10^{14}$  moles cm<sup>-2</sup> / (flashes d<sup>-1</sup> km<sup>-2</sup>) =  $10^{24}$  molec / (flashes d<sup>-1</sup>)。

#### 4 对中国地区 LNO<sub>x</sub> 产量的估算

由前面的分析可见, 青藏高原 NO<sub>x</sub> 人为排放量所占比重很小, 主要来源于自然排放, 在自然排放源中土壤微生物的排放所占比重很小, 主要的排放源是闪电, 所以, 在青藏高原闪电活动和 NO<sub>2</sub>VCD 的相关性研究结果基础上, 对全国的 LNO<sub>x</sub> 的产量进行估算, 可以进一步减小其他源的影响, 缩小以往估算中的不确定范围。本文在以上研究的基础上, 根据 Beirle et al. (2004) 提出的方法对中国地区 LNO<sub>x</sub> 产量进行粗略的估算。Beirle et al. 选取受其他排放源较小的澳大利亚中部沙漠地区为研究区域, 利用 GOME 试验仪探测资料得到闪电和 NO<sub>2</sub>VCD 的关系, 进而外推出全球的 LNO<sub>x</sub> 产量, 结果为 2.8 (0.8~14) Tg(N)/a, 这个值在国内外广泛认可的估算范围内。该方法中 Beirle et al. (2004) 首先将 NO<sub>2</sub>VCD 换算成每日 NO<sub>x</sub> 总排放量, 计算公式为

$$P_{\text{day}} = C_F \times P_{\text{NO}_2\text{VCD}} / (\tau \times f_{\text{NO}_2}), \quad (1)$$

其中,  $P_{\text{day}}$  表示闪电的 NO<sub>x</sub> 日排放量,  $P_{\text{NO}_2\text{VCD}}$  表示卫星探测到的 NO<sub>2</sub>VCD 量,  $C_F$  表示修正系数, 由于 GOME-2 对对流层中痕量气体进行观测主要基于垂直轮廓线, 地表反射率和云层覆盖情况, 由于云量的大小影响到卫星的能见度而带来一定的误差, 故引入修正系数  $C_F$  来进行校正。通常在边界层处取值大约为 4, 在云层稀少的沙漠地区近似为 1 (Velders et al., 2001)。由于青藏高原中部地区云量较少, 卫星观测能见度较高, 故  $C_F$  取值为 1.5 (1~2)。 $\tau$  表示 NO<sub>x</sub> 的生命周期, 在对流层中  $\tau$  值较大, 能够反映 NO<sub>2</sub> 在大气层中的积累情况, 对于某一固定的 NO<sub>x</sub> 源, 观测到的 NO<sub>2</sub>VCD 与  $\tau$  成正比, 本文中取值为 4 (2~6) d (Jaeglé et al., 1998; Penner et al., 1998)。由于 GOME-2 相关产品中没有 NO 的资料, 我们用  $C_{\text{NO}_x}$  和  $C_{\text{NO}_2}$  分别表示对流层 NO<sub>x</sub> 及 NO<sub>2</sub> 的含量, 并利用  $f_{\text{NO}_2}$  表示对流层中 NO<sub>2</sub> 所占比例来反推 NO<sub>x</sub> 的总量, 即

$$f_{\text{NO}_2} = [C_{\text{NO}_2}] / [C_{\text{NO}_x}]. \quad (2)$$

本文中对该量的取值为 0.4 (0.4~0.8), 参考

Ziereis et al. (2000) 在 POLINAT-2 (Pollution from Aircraft Emissions in the North Atlantic Flight Corridor) 野外观测活动中的研究成果, 该研究发现, 在 28°N~61°N 区域的北半球对流层顶部以及平流层底部的氮氧化物含量比呈现出随纬度递增的分布特征。

综上,  $\text{NO}_x$  日排放量  $P_{\text{day}}$  为

$$\begin{aligned} P_{\text{day}} &= C_F \times P_{\text{NO}_2\text{VCD}} / (\tau \times f_{\text{NO}_2}) \\ &= 1.5 / (4 \times 0.4) \times P_{\text{NO}_2\text{VCD}} \\ &\approx 0.94 \times P_{\text{NO}_2\text{VCD}} \end{aligned} \quad (3)$$

分别考虑到各系数的不确定度极值求得:

$$P_{\text{day}} = 0.94(0.2 \sim 2.5) \times P_{\text{NO}_2\text{VCD}} \quad (4)$$

利用图 4 中的拟合斜率平均值  $k=(k_a+k_b)/2 \approx 178 \pm 22.5$  表示通过卫星观测到闪电带来的  $\text{NO}_2\text{VCD}$  增量, 即  $17.8 \times 10^{25} \text{ molec}/(\text{flashes d}^{-1})$ 。结合式(4), 得到单次闪电的  $\text{LNO}_x$  产量大约为  $16.7 (3.4 \sim 41.8) \times 10^{25} \text{ molec} (\text{NO}_x)$ , 换算成质量单位后, 即每次闪电产生的  $\text{NO}_x$  量为  $3.9 (0.8 \sim 9.7) \text{ kg} (\text{N})$ 。该值比 Beirle et al. (2004) 的结果 [ $1.4 \text{ kg} (\text{N})/\text{flash}$ ] 要大, 这可能是受到闪电区域特征特性的差异的影响。有研究表明, 北半球多大陆性雷暴, 闪电峰值电流较大, 单次闪电能量较大; 南半球多海洋性雷暴, 峰值电流较小, 单次闪电能量比北半球小。由于单个闪电能量的大小与  $\text{NO}_x$  产量成正比, 所以青藏高原地区每次闪电产生的  $\text{LNO}_x$  量应高于澳大利亚地区。此外 Beirle et al. (2004) 所得到的闪电密度与  $\text{NO}_2\text{VCD}$  的相关系数为 0.76, 本文的结果为 0.84, 相关性更好, 所得到的误差也较小。由于以上的估算方法考虑到所有闪电的发生, 没有区分云地闪, 故结合 OTD/LIS2.3 版本格点资料求得中国内陆地区平均年闪电发生次数约为  $3.8 \times 10^7$  次, 估算出中国地区  $\text{LNO}_x$  的产量约为  $0.15 (0.03 \sim 0.38) \text{ Tg}(\text{N})/\text{a}$ 。

针对中国地区  $\text{LNO}_x$  年产量的估算并不多, 金敏等 (2012) 也利用中国 2008~2010 年的闪电定位数据结合 Price 理论 (Price et al., 1997) 进行了估算, 认为  $\text{LNO}_x$  在武汉、广州、成都、重庆、长沙、南京和南昌地区量值较大, 春夏秋冬的四季产量分别占总产量的 4.8%、89.4%、5.3% 以及 0.5%。周筠珺等通过分析闪电产生  $\text{NO}_x$  的主要物理及化学过程, 利用 Goldenbaum 等得到的地闪每焦耳能量产生的  $\text{NO}$  分子数, 结合 1989~1999 年陇东、北

京、东北 3 个地区的闪电定位系统 DF 和广东地区的 3S 系统技术观测到的中国不同纬度的地闪资料, 对全国内陆  $\text{LNO}_x$  产量估算的结果为  $0.38 \text{ Tg}(\text{N})/\text{a}$ , 由于其在估算中所用的闪电观测资料存在一定的地域特异性, 且在理论计算外推中选取地闪能量为  $6.7 \times 10^9 \text{ J}$ , 该值为 Price et al. (1997) 提出的, 但随后有研究认为该值为单次闪电产生能量的上限值, 可能使得其结果较大, 接近本文估算的上限值。此外, 在估算过程中缺少对流层闪电产生  $\text{NO}_x$  的直接观测资料加以验证, 可能存在一定误差。孙安平等 (2004) 基于 1995~2000 年的 OTD 卫星资料, 通过对单次闪电能量、单位能量产生  $\text{NO}_x$  分子数以及闪电频数 3 个参量的分析、定性及取值, 对全球闪电年平均产 N 量估算结果为  $0.2 \text{ Tg}(\text{N})/\text{a}$ , 中国地区年平均  $\text{LNO}_x$  产量占全球的 7.8%, 约为  $0.016 \text{ Tg} (\text{N})/\text{a}$ , 比本文的估算值要小将近一个量级, 主要由于在他们的理论估算方法中利用 OTD 观测到的每次闪电的能量计算, 选取的值为  $4.5 \times 10^7 \text{ J}$ , 较小, 且没有考虑到光学厚度对光能的影响、从光能到总能量的反演和每焦耳能量产生的  $\text{NO}$  量, 该能量值比闪电本身的光能要小, 从而可能使得其结果偏小。

## 5 结论与讨论

本文利用 LIS 和 GOME-2 资料, 对比分析了青藏高原地区闪电与对流层  $\text{NO}_2\text{VCD}$  的分布特征。通过分析卫星资料表明, 青藏高原地区是研究闪电产生  $\text{NO}_x$  的理想区域之一, 该地区对流层  $\text{NO}_2\text{VCD}$  夏季达到峰值, 春季次之, 然后是秋季, 最后是冬季, 这与闪电密度分布一致, 两者的年际趋势和季节变化也基本相同。但春季末会出现两者趋势不同的奇异点, 可能是由于该时期大气环流变化影响到对流层  $\text{NO}_2$  的含量, 但具体的原因还有待进一步分析更长时间序列  $\text{NO}_2\text{VCD}$ 、闪电密度以及风场资料来明确几者之间的相互关系。

基于卫星观测资料分析的结果, 结合 Beirle et al. (2004) 的计算方法计算出青藏高原地区每次闪电产生的  $\text{LNO}_x$  量约为  $3.9 (0.8 \sim 9.7) \text{ kg}(\text{N})$ , 并对中国内陆地区  $\text{LNO}_x$  产量进行了粗略的估算, 结果为  $0.15 (0.03 \sim 0.38) \text{ Tg}(\text{N})/\text{a}$ , 该结果在国内外学者的研究结果范围内。为了缩小了理论计算中对闪电众多参数的假设而带来的不确定度, 该估算过程中利

用了直观的卫星观测资料, 为 LNO<sub>x</sub> 的估算提供了长时间、大尺度的数据产品。除此之外, 虽然青藏高原地区闪电为对流层 NO<sub>x</sub> 主要源, 但比重较小的人为源和其他自然源仍然会给估算带来一定的误差, 使结果尚存在一些不确定性。进一步的工作希望能结合大气化学模式对不同 NO<sub>x</sub> 源加以量化计算, 从而更加精确的估算出不同地区闪电对对流层 NO<sub>x</sub> 的贡献; 同时, 在今后的研究中希望能够开展对 LNO<sub>x</sub> 的实地观测试验, 对估算方法加以验证并完善, 提高估算精度, 从而更全面的了解闪电与全球大气环境和气候变化的关系。

**致 谢** 感谢荷兰皇家气象研究所 (KNMI) 在网站 <http://www.temis.nl> 提供 NO<sub>2</sub> 卫星观测数据。感谢全球水文资源中心为本研究工作提供 LIS/OTD 格点资料。

### 参考文献 (References)

- Beirle S, Platt U, Wenig M, et al. 2004. NO<sub>x</sub> production by lightning estimated with GOME [J]. *Advances in Space Research*, 34 (4): 793–797, doi: 10.1016/j.asr.2003.07.069.
- Boccippio D J, Koshak W J, Blakeslee R J. 2002. Performance assessment of the optical transient detector and lightning imaging sensor. Part I: Predicted diurnal variability [J]. *J. Atmos. Oceanic Technol.*, 19 (9): 1318–1332, doi: 10.1175/1520-0426(2002)019<1318:PAOTOT>2.0.CO;2.
- Boersma K F, Eskes H J, Brinksma E J. 2004. Error analysis for tropospheric NO<sub>2</sub> retrieval from space [J]. *J. Geophys. Res.*, 109: D04311, doi: 10.1029/2003JD003962.
- Boersma K F, Eskes K J, Meijer E W, et al. 2005. Estimates of lightning NO<sub>x</sub> production from GOME satellite observations [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 5 (9): 2311–2331, doi: 10.5194/acp-5-2311-2005.
- Cecil D J, Buechler D E, Blakeslee R J. 2012. Gridded lightning climatology from TRMM-LIS and OTD: Dataset description [J]. *Atmospheric Research*, 135-136: 404–414, doi: 10.1016/j.atmosres.2012.06.028.
- Chameides W L, Davies D D, Bradshaw J, et al. 1987. An estimate of the NO<sub>x</sub> production rate in electrified clouds based on NO observations from the GTE/CITE 1 fall 1983 field operation [J]. *J. Geophys. Res.*, 92 (D2): 2153–2156, doi: 10.1029/JD092iD02p02153.
- Drapcho D L, Sisterson D, Kumar R. 1983. Nitrogen fixation by lightning activity in a thunderstorm [J]. *Atmos. Environ.*, 17 (4): 729–734.
- 杜健, 张义军, 言穆弘. 2002. 闪电产生氮氧化物 (LNO<sub>x</sub>) 区域特征计算(II): LNO<sub>x</sub> 计算结果分析 [J]. *高原气象*, 21 (5): 433–440. Du Jian, Zhang Yijun, Yan Muhong. 2002. Regional characteristic calculation of lightning production of nitrogen oxides (LNO<sub>x</sub>) (II): Analysis on calculation result of LNO<sub>x</sub> [J]. *Plateau Meteorology (in Chinese)*, 21 (5): 433–440, doi: 10.3321/j.issn:1000-0534.2002.05.001.
- 郭凤霞, 陈聪. 2012. 中国地区闪电和对流层上部 NO<sub>x</sub> 的时空分布特征及其相关性分析 [J]. *大气科学*, 36 (4): 713–721. Guo Fengxia, Chen Cong. 2012. Comparison of lightning activity and NO<sub>x</sub> distribution in the upper troposphere in China [J]. *Chinese Journal of Atmospheric Sciences (in Chinese)*, 36 (4): 713–721.
- Huntrieser H, Schlager H, Feigl C, et al. 1998. Transport and production of NO<sub>x</sub> in electrified thunderstorms: Survey of previous studies and new observations at midlatitudes [J]. *J. Geophys. Res.*, 103 (D21): 28247–28264, doi: 10.1029/98JD02353.
- Jaeglé L, Jacob D J, Wang Y, et al. 1998. Sources and chemistry of NO<sub>x</sub> in the upper troposphere over the United States [J]. *Geophys. Res. Lett.*, 25 (10): 1705–1708, doi: 10.1029/97GL03591.
- 金敏, 张其林, 安兴琴, 等. 2012. 中国区域闪电特征分析及闪电产生 NO<sub>x</sub> 量的估算 [J]. *大气科学学报*, 35 (3): 372–379. Jin Min, Zhang Qilin, An Xingqin, et al. 2012. Analysis of the features of lightning in China and estimation of lightning-produced NO<sub>x</sub> [J]. *Transactions of Atmospheric Sciences (in Chinese)*, 35 (3): 372–379.
- Lawrence M G, Chameides W L, Kasibhatla P S, et al. 1995. Lightning and atmospheric chemistry: The rate of atmospheric NO production [M]// Volland H. *Handbook of Atmospheric Electrodynamics*. Boca Raton, Florida: CRC Press, 189–202.
- Levy II H, Moxim W J, Klonecki A A, et al. 1999. Simulated tropospheric NO<sub>x</sub>: Its evaluation, global distribution, and individual source contributions [J]. *J. Geophys. Res.*, 104 (D21): 26279–26306, doi: 10.1029/1999JD900442.
- Lin J T. 2012. Satellite constraint for emissions of nitrogen oxides from anthropogenic, lightning and soil sources over East China on a high-resolution grid [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12 (6): 2881–2898, doi: 10.5194/acp-12-2881-2012.
- 林伟立, 汪君霞, 朱彤. 2011. 极地与青藏高原地区 NO<sub>x</sub> 的冰雪来源 [J]. *气候变化研究进展*, 7 (1): 1–7. Lin Weili, Wang Junxia, Zhu Tong. 2011. NO<sub>x</sub> release from snow and ice covered surface in polar regions and Tibetan Plateau [J]. *Advances in Climate Change Research (in Chinese)*, 7 (1): 1–7.
- 刘新, 李伟平, 吴国雄. 2002. 夏季青藏高原加热和北半球环流年际变化的相关分析 [J]. *气象学报*, 60 (3): 267–277. Liu Xin, Li Weiping, Wu Guoxiong. 2002. Interannual variation of the diabatic heating over the Tibetan Plateau and the Northern Hemispheric circulation in summer [J]. *Acta Meteorologica Sinica (in Chinese)*, 60 (3): 267–277.
- Martin R V, Jacob D J, Logan J A, et al. 2002. Interpretation of TOMS observations of tropical tropospheric ozone with a global model and in situ observations [J]. *J. Geophys. Res.*, 107 (D18): ACH 4-1–ACH 4-27, doi: 10.1029/2001JD001480.
- Murray L T, Jacob D J, Logan J A, et al. 2012. Optimized regional and interannual variability of lightning in a global chemical transport model constrained by LIS/OTD satellite data [J]. *J. Geophys. Res.*, 117 (D20), doi: 10.1029/2012JD017934.
- Penner J E, Bergmann D J, Walton J J, et al. 1998. An evaluation of upper troposphere NO<sub>x</sub> with two models [J]. *J. Geophys. Res.*, 103 (D17): 22097–22113, doi: 10.1029/98JD01565.
- Potter C S, Matson P A, Vitousek P M, et al. 1996. Process modeling of controls on nitrogen trace gas emissions from soils worldwide [J]. *J. Geophys. Res.*, 101 (D1): 1361–1377, doi: 10.1029/95JD02028.
- Price C, Penner J, Prather M. 1997. NO<sub>x</sub> from lightning: 1. Global

- distribution based on lightning physics [J]. *J. Geophys. Res.*, 102 (D5): 5929–5941, doi: 10.1029/96JD03504.
- 钱正安, 吴统文, 梁潇云. 2001. 青藏高原及周围地区的平均垂直环流特征 [J]. *大气科学*, 25 (4): 444–454. Qian Zheng'an, Wu Tongwen, Liang Xiaoyun. 2001. Feature of mean vertical circulation over the Qinghai-Xizang Plateau and its neighborhood [J]. *Chinese Journal of Atmospheric Sciences (in Chinese)*, 25 (4): 444–454.
- 鄯秀书, Toumi R. 2003. 卫星观测到的青藏高原雷电活动特征 [J]. *高原气象*, 22 (3): 288–294. Qie Xiushu, Toumi R. 2003. Lightning activities on Qinghai-Xizang Plateau as observed by satellite-based lightning imaging sensor [J]. *Plateau Meteorology (in Chinese)*, 22 (3): 288–294.
- 秦瑜, 赵春生. 2003. 大气化学基础 [M]. 北京: 气象出版社, 73-75. Qin Yu, Zhao Chunsheng. 2003. *Atmospheric Chemistry Basic (in Chinese) [M]*. Beijing: China Meteorological Press, pp.
- Schumann U, Huntrieser H. 2007. The global lightning-induced nitrogen oxides source [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7 (14): 3823–3907, doi: 10.5194/acp-7-3823-2007.
- Seinfeld J H, Pandis S N. 1997. *Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change [M]*. New York: John Wiley and Sons, 521–525.
- 孙安平, 杜健, 张义军, 等. 2004. 闪电产生氮氧化物 (LNO<sub>x</sub>) 全球特征计算 [J]. *高原气象*, 23 (4): 481–487. Sun Anping, Du Jian, Zhang Yijun, et al. 2004. Calculation of global characteristics of NO<sub>x</sub> produced by lightning [J]. *Plateau Meteorology (in Chinese)*, 23 (4): 481–487, doi: 10.3321/j.issn:1000-0534.2004.04.010.
- Velders G J M, Granier C, Portmann R W, et al. 2001. Global tropospheric NO<sub>2</sub> column distributions: Comparing three-dimensional model calculations with GOME measurements [J]. *J. Geophys. Res.*, 106 (D12): 12643–12660, doi: 10.1029/2000JD900762.
- Wang Y, DeSilva A W, Goldenbaum G C, et al. 1998. Nitric oxide production by simulated lightning: Dependence on current, energy, and pressure [J]. *J. Geophys. Res.*, 103 (D15): 19149–19159, doi: 10.1029/98JD01356.
- 岳捷, 林云萍, 邓兆泽, 等. 2009. 利用卫星数据和全球大气化学传输模式研究中国东部大城市对流层 NO<sub>2</sub> 季节变化的原因 [J]. *北京大学学报 (自然科学版)*, 45 (3): 431–438. Yue Jie, Lin Yunping, Deng Zhaoze, et al. 2009. Seasonal variations of tropospheric NO<sub>2</sub> over megalopolis in Eastern China using satellite remote-sensing data and chemistry-transport model [J]. *Acta Scientiarum Naturalium Universitatis Pekinensis (in Chinese)*, 45 (3): 431–438.
- 张鸿发, 郭三刚, 张义军, 等. 2003. 青藏高原强对流雷暴云分布特征 [J]. *高原气象*, 22 (6): 558–564. Zhang Hongfa, Guo Sangang, Zhang Yijun, et al. 2003. Distribution characteristic of severe convective thunderstorm cloud over Qinghai-Xizang Plateau [J]. *Plateau Meteorology (in Chinese)*, 22 (6): 558–564.
- 张兴赢, 张鹏, 张艳, 等. 2007. 近 10 a 中国对流层 NO<sub>2</sub> 的变化趋势、时空分布特征及其来源解析 [J]. *中国科学 (D)*, 37 (10): 1409–1416. Zhang Xingying, Zhang Peng, Zhang Yan, et al. 2007. The trend, characterize and source analysis of tropospheric NO<sub>2</sub> in China in 1997-2006[J]. *Science in China (Series D) (in Chinese)*, 37(10): 1409–1416.
- 中华人民共和国国家统计局. 2012. 中国统计年鉴 [M]. 北京: 中国统计出版社, 463pp. National Bureau of Statistics of the People's Republic of China. 2012. *China Statistical Yearbook(in Chinese) [M]*. Beijing: China Statistics Press, pp.
- 周筠珺, 鄯秀书. 2002. 闪电产生 NO<sub>x</sub> 机制及中国内陆闪电产生 NO<sub>x</sub> 量的估算 [J]. *高原气象*, 21 (5): 501–508. Zhou Yunjun, Qie Xiushu. 2002. Mechanism and estimation of lightning-generated NO<sub>x</sub> in Chinese inland area [J]. *Plateau Meteorology (in Chinese)*, 21 (5): 501–508.
- 朱润鹏, 袁铁, 李万莉, 等. 2013. 基于卫星观测资料的全球闪电活动特征研究 [J]. *气候与环境研究*, 18 (5): 639–650. Zhu Runpeng, Yuan Tie, Li Wanli, et al. 2013. Characteristics of global lightning activities based on satellite observations[J]. *Climatic and Environmental Research (in Chinese)*, 18 (5): 639–650, doi: 10.3878/j.issn.1006-9585.2012.12017.
- Ziereis H, Schlager H, Schulte P, et al. 2000. Distributions of NO, NO<sub>x</sub>, and NO<sub>y</sub> in the upper troposphere and lower stratosphere between 28°N and 61°N during POLINAT 2 [J]. *J. Geophys. Res.*, 105 (D3): 3653–3664, doi: 10.1029/1999JD900870.