

窦鑫, 张金强, 朱彬, 等. 2019. 香河地基观测臭氧柱总量数据分析及臭氧变化趋势研究 [J]. 气候与环境研究, 24 (2): 143–151. Dou Xin, Zhang Jinqiang, Zhu Bin, et al. 2019. Analysis of total ozone column from ground-based observation and its trend at Xianghe station [J]. Climatic and Environmental Research (in Chinese), 24 (2): 143–151, doi:10.3878/j.issn.1006-9585.2018.17102.

香河地基观测臭氧柱总量数据分析及臭氧变化趋势研究

窦鑫¹ 张金强^{2,3,4} 朱彬⁵ 郑向东⁶ 夏祥鳌^{2,3,4} 陈洪滨^{2,3,4}

1 南京信息工程大学大气物理学院环境工程系, 南京 210044

2 中国科学院大气物理研究所, 北京 100029

3 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

4 中国科学院大学, 北京 100049

5 南京信息工程大学大气物理学院, 南京 210044

6 中国气象科学研究院, 北京 100081

摘 要 大气臭氧变化在全球气候和环境中具有重要作用, 是当今大气科学领域的重要研究对象之一。对比分析了中国科学院大气物理研究所河北香河大气综合观测试验站 2014~2016 年 Dobson 和 Brewer 两种臭氧总量观测仪器探测结果的一致性, 并使用 1979~2016 年 Dobson 观测数据分析了香河地区臭氧总量的长期变化趋势。结果表明: 进行有效温度修正后, 两种臭氧总量仪器观测结果一致性较好, 平均偏差仅为-0.14 DU (多布森单位), 平均绝对偏差为 8.00 DU, 标准差为 36.09 DU, 相关系数达 0.964。整体来说, 两类仪器观测臭氧总量吻合较好。SO₂ 浓度对 Dobson 仪器数据精度有一定影响, 两组仪器数据在 SO₂ 浓度为 0~0.2 DU、0.2~0.4 DU 和 >0.4 DU 大气条件情况下的平均偏差分别为 4.8 DU、7.0 DU 和 8.0 DU, 平均偏差随 SO₂ 浓度升高而增大。过去 38 年香河地区的臭氧总量季节差异性强, 春、冬两季臭氧总量高, 夏、秋两季臭氧总量相对低, 季节变化趋势差异明显。从长期变化上看, 臭氧总量变化波动有不同的周期, 在 4 个大的时间段变化趋势不同, 2000~2010 年臭氧层有显著恢复, 但最近几年又有变薄的趋势。

关键词 臭氧柱总量 地基观测 Brewer 观测仪器 Dobson 观测仪器 一致性分析

文章编号 1006-9585 (2019) 02-0143-09

中图分类号 P412.293

文献标识码 A

doi:10.3878/j.issn.1006-9585.2018.17102

Analysis of Total Ozone Column from Ground-Based Observation and Its Trend at Xianghe Station

DOU Xin¹, ZHANG Jinqiang^{2,3,4}, ZHU Bin⁵, ZHENG Xiangdong⁶, XIA Xiangao^{2,3,4},
and CHEN Hongbin^{2,3,4}

1 Department of Environmental Engineering, Institute of Atmospheric Physics, Nanjing University of Information Science and Technology, Nanjing 210044

2 Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029

3 Collaborative Innovation Center on Forecast and Evaluation of Meteorological Disasters, Nanjing University of Information Science and Technology,

收稿日期 2017-07-17; **网络预出版日期** 2018-03-21

作者简介 窦鑫, 男, 1993 年出生, 硕士, 主要从事大气环境探测研究. E-mail: 1063739203@qq.com

通讯作者 张金强, E-mail: zjq@mail.iap.ac.cn

资助项目 国家重点研发计划项目 2017YFA0603504, 中国科学院战略性先导科技专项 XDA17010101, 国家自然科学基金项目 61327810

Funded by National Key Research and Development Program of China (Grant 2017YFA0603504), Strategic Priority Research Program of the Chinese Academy of Sciences (Grant XDA17010101), National Natural Science Foundation of China (Grant 61327810)

Nanjing 210044

4 University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049

5 Institute of Atmospheric Physics, Nanjing University of Information Science and Technology, Nanjing 210044

6 Chinese Academy of Meteorological Sciences, Beijing 100081

Abstract Atmospheric ozone plays an important role in the global climate and environment. It is one of the important research topics in the atmospheric science field. In this study, the consistency of the measurement of the total ozone column, using the Dobson and Brewer instruments during the period of 2014–2016 at Xianghe, were analyzed. The Dobson measurement data during the longer period of 1979–2016 was used to investigate the long-term variation trend in the total ozone column at the same site. The results showed that the average deviation, the average absolute deviation, the standard deviation, and the correlation coefficient between Dobson and Brewer instrument data were -0.14 DU, 8.00 DU, 36.09 DU, and 0.964 , respectively. In general, the total amount of ozone observed by the two instruments agreed well. SO_2 concentration had a noticeable effect on the Dobson instrument data accuracy. The average deviations of the two sets of instrument data in the atmospheric SO_2 concentration of $0\text{--}0.2$ DU, $0.2\text{--}0.4$ DU, and >0.4 DU, were 4.8 DU, 7.0 DU, and 8.0 DU, respectively. The data deviation of the two sets of instruments increased with increasing SO_2 concentration. Apparent seasonal variations in the total ozone column are presented for the past 38 years at Xianghe. Ozone concentrations were larger in spring and winter relative to summer and autumn. Variation tendencies of ozone were also seasonally dependent. Different cycles of ozone amount fluctuation were derived from the long-term Dobson data. The variation tendencies were different during four long periods. Distinct ozone recovery was found from 2000 to 2010; however, ozone depletion trends occurred during recent years.

Keywords Total ozone column, Ground-based observation, Brewer instrument, Dobson instrument, Consistency analysis

1 引言

臭氧只占大气的几百万分之一,但对全球气候和大气环境起重要作用,是大气化学和气候变化研究的重要内容之一。臭氧的作用主要表现:首先,约 10% 的臭氧存在于对流层中(唐孝炎等,1992),强烈吸收一定范围的红外波段辐射,是重要的温室气体之一;其次,约 90% 的臭氧存在于平流层中吸收太阳紫外辐射,不仅直接影响了平流层的温度结构,调节全球气候和大气环流,同时保护了地球的生态系统。

鉴于臭氧的重要作用,需要获取高质量观测数据作为基础,用以研究对流层和平流层区域内臭氧的分布和长期变化趋势,并对平流层臭氧损耗做出准确判断。目前,全球大气臭氧总量的观测手段主要有地基、卫星和探空观测等(李天奕,2011)。20 世纪 20 年代,英国科学家 Dobson 基于大气臭氧吸收紫外波段辐射的波长选择性(即差分吸收原理),设计研发了地基 Dobson 臭氧分光光度计来遥感测量臭氧柱含量(Dobson,1968)。1970 年代,一种基于 Dobson 分光光度计原理设计的地基臭氧总量观测仪器——Brewer 分光光度计问世(Brewer,1973)。臭氧和 SO_2 是紫外波段($310\text{--}330\text{ nm}$)最主要的两种吸收气体,其中 SO_2 吸收明显强于臭

氧(王普才等,1999;王刚等,2009),因此高 SO_2 浓度可能影响 Dobson 观测臭氧总量结果(Dobson,1963)。Brewer 臭氧分光光度计考虑了 SO_2 吸收的影响,并且可以测量 SO_2 的柱总量(柴素盈,2016)。除了上述 Dobson 和 Brewer 仪器外,地基臭氧观测仪器还包括滤光片型臭氧测量仪、高分辨率太阳光谱仪和天光光度计等(王庚辰,1991)。1975 年世界气象组织(WMO)第一次对全球臭氧状态进行了国际评估。1984 年在臭氧委员会会议上,日本学者首次报告了 1982 年 10 月在南极洲昭和站(Syowa)出现臭氧总量异常低值,但其重要性直到第二年才被认可。1991 年,WMO 基于臭氧卫星遥感监测数据分析揭示,臭氧损耗不仅出现在冬春季节,全年都存在,并且出现在热带以外的所有地区。2010 年《臭氧损耗科学评估报告》显示,卫星观测和模式研究结果表明,全球 2002~2005 年臭氧柱含量平均值与 1964~1980 年的平均值相比,仅降低了 3.5%,该现象说明臭氧总含量下降趋势得到一定抑制;2002~2005 年,南、北半球的中纬度地区($35^\circ\text{--}60^\circ$)的臭氧总含量比 1964~1980 年低 3%和 5.5%,与 1998~2001 年平均值基本持平。

20 世纪 50 年代中后期,我国开始使用 Dobson 仪器开展臭氧观测。1979 年 1 月 1 日,中国科学院大气物理研究所香河臭氧观测站加入 WMO 全球臭

氧观测网。1年后,昆明臭氧站也加入该观测网络。迄今为止,两个站点已连续提供了长时间序列的高质量大气臭氧观测资料(WMO, 1988; Bian et al., 2002)。周秀骥等(1995, 2004)研究指出利用美国臭氧总量成像光谱仪(TOMS)提供的全球臭氧总量资料,发现夏季青藏高原上空出现明显的臭氧总量低值区,称为臭氧低谷,这一现象促使我国科学家开始在青藏高原及其周边地区开展了臭氧探空实验(石广玉等, 2000; 郑向东等, 2000; 王卫国等, 2004; 颜晓露等, 2015)。Zou (1996)、Zou and Gao (1997a, 1997b)研究指出通过对 TOMS 和 SAGE II 卫星资料的分析研究,发现在几个高原上空和斯基的维亚地区都存在臭氧低值中心。

地基仪器易于维护和标定,其臭氧总量观测资料具有较高的稳定性和延续性。长期连续且可靠的臭氧柱总量测量是研究臭氧变化及其原因和影响的重要基础。1990年代之前国际上主要采用 Dobson 仪器测量臭氧柱总量,但近年来 Dobson 已逐步被 Brewer 测量所取代,其主要原因是 Brewer 可以自动测量,在光谱分辨率和光谱通道数量上都优于 Dobson,由于 Dobson 和 Brewer 在定标系统和数据处理方法等方面都存在差异,因此 Brewer 取代 Dobson 的一个重要前提条件是需要针对两种仪器开展较长的详细平行比对试验,以定量获取它们之间的差异。

2014 年中国科学院大气物理研究所在河北香河站同时开展 Dobson 和 Brewer 大气臭氧总量观测,迄今一直在开展平行比对观测试验。本研究将综合利用两种仪器同期观测数据(2014~2016 年),通过对比分析,定量研究两种观测资料在不同大气环境下,特别是高 SO_2 污染大气条件下的一致性,所得研究结果将为自动化观测仪器(Brewer)替代人工参与观测仪器(Dobson)后数据均一性分析提供基础,这是本文的首要研究目的。此外,香河站积累的长时间序列地基 Dobson 观测数据(1979~2016 年)可定量分析臭氧总量的长期变化趋势,为我国大陆上空平流层臭氧损耗和相应气候环境变化等研究提供参考。

2 观测仪器和站点资料

2.1 Dobson 臭氧分光光度计

Dobson 仪器基于臭氧吸收的光学特性设计,

实际测量需要人工参与,主要用于臭氧柱总量观测。太阳紫外辐射在晴空大气的传输过程中受到臭氧分子吸收、分子瑞利散射和大气气溶胶消光的影响,大气成分消光可用比尔—郎伯定律描述,其中分子散射和气溶胶消光随波长变化较臭氧吸收平缓,因此 Dobson 仪器通过测量到达地表的一对或多对太阳紫外辐射波段来反演臭氧总量。仪器选取多组工作波长并获得高光谱分辨率,可以最大限度地消除仪器内部的杂散光以保证仪器有足够的信噪比和测量精度(王庚辰, 2003)。选用的几组标准的波长对通常为 A (305.5 和 325.4 nm)、B (308.8 和 329.1 nm)、C (311.4 和 332.4nm) 和 D (317.6 和 339.8 nm)。选取波长对,遵循波长间距小、而臭氧在这两个波长对紫外辐射的吸收作用差别大的原则。实际观测时,往往采用 A、D 两对波长;计算表明,同时利用这两对波长测量臭氧总量的误差最小。Dobson 测量的大气臭氧柱总量单位为多布森单位 DU, 1 DU 定义为标准大气状况下单位底面积厚度为 10^{-3} cm 的纯臭氧柱量。此外要说明的是,香河站 Dobson 臭氧仪(75 号)没有进行自动化改造,一直需要人工参与实际测量。

2.2 Brewer 臭氧分光光度计

Brewer 臭氧分光光谱仪由加拿大公司设计生产,是 WMO 推荐使用的测量大气臭氧总量和臭氧垂直廓线的仪器(柴素盈, 2016),工作原理与 Dobson 臭氧分光光度计相似。光谱仪的工作范围为 295~330 nm,工作波长为: 306.3、310.1、313.5、316.8、320.1 nm。Brewer 仪器主要用于测量臭氧总量,同时可以利用 306.3、316.8、320.0 nm 3 个波段来测量大气中 SO_2 浓度。臭氧测量过程中,考虑到 SO_2 在紫外波段的强烈吸收而进行 SO_2 订正。这是相对于 Dobson 臭氧分光光度计的最大改变,旨在高 SO_2 情况下提供精确的臭氧总量观测(张中波, 2005)。此外, Brewer 还考虑了环境温度变化对仪器的影响而进行温度补偿(Kerr et al., 1994),同时还考虑了光电倍增管响应时间和大气瑞利散射修正等因素。Brewer 臭氧分光光度计是自动测量仪器,这比 Dobson 需要人工参与存在一定优势,使得 Brewer 在臭氧观测中的应用越来越广泛(Kerr et al., 1981)。

2.3 MAX-DOAS 多轴差分光谱仪

差分吸收光谱(DOAS)技术主要是利用空气和污染源中的痕量污染成份对紫外及可见光波段

的吸收特征来进行定性定量分析的, 19 世纪 70 年代 DOAS 方法被用于大气污染气体的测量 (Platt et al., 1979), 地基 DOAS 技术中应用最广泛的是多轴差分吸收光谱技术 (MAX-DOAS)。MAX-DOAS 技术基于太阳散射光, 通过不同仰角的观测, 结合大气辐射传输模式, 能够得到整个对流层污染物的垂直柱浓度, 对于痕量气体柱浓度及其垂直分布测量十分有效。香河站所采用的 MAX-DOAS 仪器包含两台光谱仪, 一台在紫外波段 300~390 nm 工作, 一台在可见波段 400~720 nm 工作 (Cllémer et al., 2010)。在目前的观测中, 望远镜指向北方 (固定方位角), 包含 8 个不同俯仰角 (2°、4°、6°、8°、10°、12°、15°、30°) 的离轴观测, 天顶观测及太阳直射光观测, 扫描一次大约需要 15 min (余环, 2011)。MAX-DOAS 仪器成本低、结构简单、多种成分同时探测的优势, 具有很大的研究价值。

2.4 有效臭氧温度订正

臭氧总量测量的准确度取决于臭氧吸收系数, Huggins 带中的臭氧吸收截面随着波长的增加而强烈下降, 并显示出明显的温度依赖性, 标准工作状态下的有效臭氧温度为 -46.3 °C, 而 Dobson 和 Brewer 的工作温度随着季节有着明显的变化, 这意味着两组仪器臭氧观测数据都需要做温度修正, 进一步剔除温度对臭氧总量的影响 (Vanicek, 2006; Scarnato et al., 2009):

$$T_{\text{eff}} = \frac{\int_{800 \text{ hPa}}^{10 \text{ hPa}} T(p) O_3(p) dp}{\int_{800 \text{ hPa}}^{10 \text{ hPa}} O_3(p) dp}, \quad (1)$$

其中, $T(p)$ 为 800 hPa 至 10 hPa 的温度廓线中温度值, $O_3(p)$ 为 800 hPa 至 10 hPa 的臭氧廓线中臭氧总量值, T_{eff} 为有效温度。

$$X_{\text{Bcor}} = X_{\text{Borig}} - 0.005(-46.3 - T_{\text{eff}}), \quad (2)$$

$$X_{\text{Dcor}} = X_{\text{Dorig}} - X_{\text{SO}_2} + 0.13(-46.3 - T_{\text{eff}}), \quad (3)$$

其中, X_{Borig} 为 Brewer 观测原始值, X_{Dorig} 为 Dobson 观测原始值, X_{SO_2} 为 SO_2 影响项, X_{Bcor} 为 Brewer 订正值, X_{Dcor} 为 Dobson 订正值。

2.5 站点资料

香河县地处河北省中部, 地势西北高东南低, 海拔 4.9~15.9 m, 属于大陆性季风气候, 四季分明。中国科学院大气物理研究所香河大气综合观测试验站的地理位置为 (39°37'N~39°51'N, 116°51'E~117°12'E)。香河站 Dobson 与 Brewer 仪分别位于楼顶的东西观测平台上, 所在高度一致, 水平距离小

于 50 m。2014~2016 年除阴天和仪器标定时段外, 香河站 Dobson 与 Brewer 臭氧仪总量观测数据连续性很好, 两种仪器观测次数和时间等信息如表 1 所示。Dobson 仪每天观测小于等于 5 次, Brewer 仪晴天条件下提供多组观测数据。Dobson 与 Brewer 每日相隔 15 min 内匹配数据共有 1404 组, Dobson 与 Brewer 日平均 (每日相隔 15 min 内所有数据平均) 匹配数据共有 550 组, Dobson 和 Brewer 在近似天顶角条件下每日相隔 15 min 内匹配数据共有 300 组, 本文使用该部分匹配数据进行了两种仪器的对比分析。此外, 尽管 Brewer 提供了 SO_2 反演产品, 但由于 SO_2 紫外吸收信号受臭氧的影响, 反演存在比较大的误差, 因此为分析 SO_2 的可能影响, 本文还采用了香河站 MAX-DOAS 提供的 SO_2 观测数据, Dobson 所选波段的臭氧紫外吸收截面受温度的影响很大, 但由于 WOUDC (World Ozone and Ultraviolet Radiation Data Centre) 臭氧台站往往缺乏臭氧和温度廓线的同步探测, 因此统一采用 -46.3 °C 时的臭氧紫外截面用于 Dobson 和 Brewer 的臭氧总量反演, 从而可能使得 Dobson 和 Brewer 测量的臭氧总量误差存在比较明显的季节变化特征。为订正此影响, 本文采用北京 (距香河站约 50 km) 臭氧廓线探空数据 (每周一次), 采用公式 (1) 计算了有效温度, 并基于公式 (2) 和 (3) 的有效温度订正方法对香河站 Dobson 和 Brewer 数据进行了温度订正。由于臭氧廓线每周仅有 1 次, 因此在两组数据有效温度订正中, 选择最接近臭氧总量测量时间的有效温度来进行订正。

表 1 3 种仪器观测次数和累计天数

Table 1 Observational numbers and days of the instruments

仪器	每天测量次数	累计天数/d	观测时间段
Dobson	≤5	550	2014 年 1 月至 2016 年
Brewer	多次	550	12 月
MAX-DOAS	多次	300	

3 分析结果

3.1 Dobson 和 Brewer 观测对比

图 1 为香河站 2014~2016 年期间 Dobson 和 Brewer 观测匹配数据散点对比图, 两者平均偏差值、平均绝对偏差、标准差、相关系数信息如表 2 所示。有效温度订正前, Dobson 与 Brewer 观测数据平均偏差为 -0.39 DU, 平均绝对偏差为 8.73 DU,

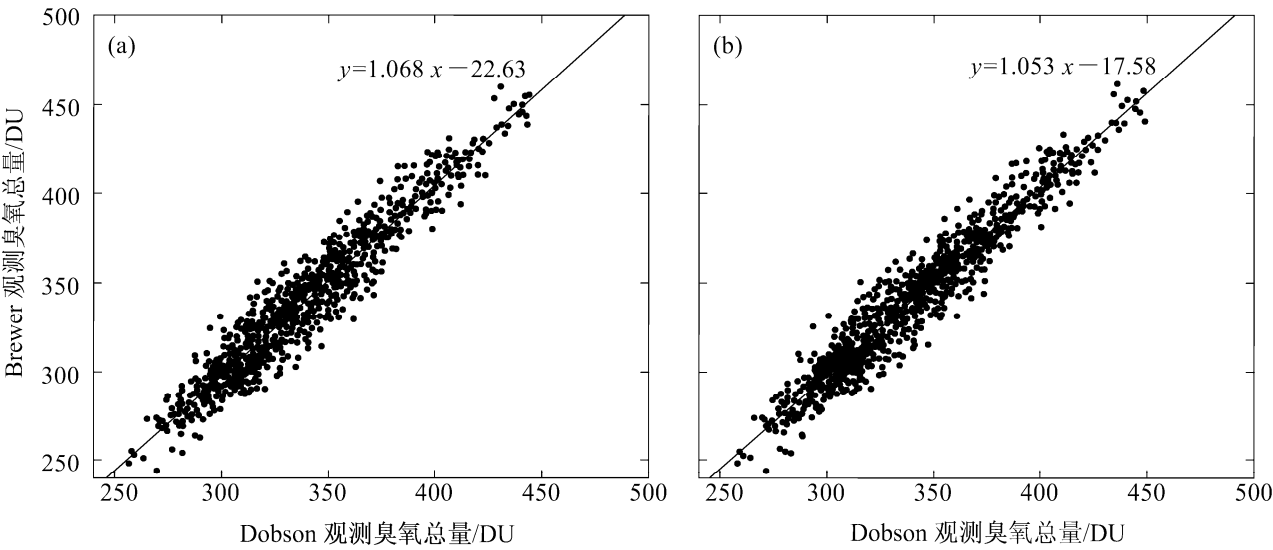


图 1 2014~2016 年香河站 Dobson 和 Brewer 匹配观测臭氧总量数据散点图：(a) 有效温度订正前；(b) 有效温度订正后
Fig. 1 Scatter plots of total ozone amounts between Dobson and Brewer measurement observations at Xianghe station during 2014–2016: (a) Before effective temperature correction; (b) after effective temperature correction

表 2 2014~2016 年香河站 Dobson 和 Brewer 匹配观测臭氧总量数据结果

Table 2 Results of matched total ozone amounts from Dobson and Brewer measurements at Xianghe station during 2014–2016

	平均偏差/ DU	平均绝对 偏差/DU	标准差/ DU	相关 系数	样本数
有效温度订正前	-0.39	8.73	35.73	0.959	1404
有效温度订正后	-0.14	8.00	36.09	0.964	1404

标准差为 35.73 DU，相关系数为 0.959。有效温度订正后，Dobson 与 Brewer 观测数据平均偏差为 -0.14 DU，平均绝对偏差为 8.00 DU，标准差为 36.09 DU，相关系数为 0.964。可以看出，有效温度订正后的数据平均偏差和平均绝对偏差小于订正前，相关系数大于订正前，表明有效温度修正进一步提高了两组数据的精度和一致性。整体来看，两种仪器臭氧总量观测吻合较好。图 2 为香河站 2014~2016 年匹配 Dobson 和 Brewer 日平均臭氧总量时间序列分布及偏差 (Dobson-Brewer)，两者平均偏差值、平均绝对偏差、标准差、相关系数信息如表 3 所示。可以看出，2014~2016 年，Dobson 和 Brewer 观测臭氧日平均数据集中在 300~450 DU 区间，在 350 DU 上下浮动。两组仪器数据偏差绝对值处于 0~10 DU 区间的有 407 天(74%)，10~20 DU 区间有 125 d (22.7%)，大于 20 DU 区间有 18 d (3.3%)。两组仪器数据偏差最大值 29.85 DU，

最小值-34.65 DU。此外一个有意思的现象是二者偏差有一定季节变化特征，冬季 Dobson 偏高，而夏季 Dobson 偏低，这可能暗示着 Dobson 仪器温度依赖性，此外可能也与 SO₂ 浓度季节变化有关(Kerr et al., 1988; Kerr, 2002)。

为探讨 SO₂ 对 Dobson 和 Brewer 探测臭氧总量的影响，图 3 为香河站 2014~2016 年不同 SO₂ 浓度大气条件下 Dobson 和 Brewer 观测数据对比结果，两者平均偏差 (Dobson-Brewer)、平均绝对偏差、标准差、相关系数信息如表 4。香河站点在本

表 3 2014~2016 年香河站 Dobson 和 Brewer 日平均匹配臭氧总量数据结果

Table 3 Daily average results of matched total ozone amounts from Dobson and Brewer measurements at Xianghe station during 2014–2016

平均偏差/DU	平均绝对偏差/DU	标准差/DU	相关系数	样本数
0.91	7.41	34.68	0.969	550

表 4 2014~2016 年 3 类 SO₂ 大气条件下 Dobson 和 Brewer 匹配观测臭氧总量数据对比

Table 4 Comparison of matched total ozone amount observations between Dobson and Brewer under three types of SO₂ atmospheric conditions

	平均偏差/ DU	平均绝对 偏差/DU	标准差/ DU	相关 系数	匹配样 本数
SO ₂ 浓度 0~0.2 DU	4.8	6.1	30.4	0.98	102
SO ₂ 浓度 0.2~0.4 DU	7.0	7.7	37.6	0.98	74
SO ₂ 浓度 >0.4 DU	8.0	8.5	32.8	0.98	124

文观测时间段内最大 SO_2 浓度为 2.9 DU。 SO_2 浓度为 0~0.2 DU 时, 匹配样本 102 组, Dobson 与 Brewer 平均偏差为 4.8 DU, 平均绝对偏差 6.1 DU, 标准差 30.4 DU, 相关系数 0.98。在低浓度 SO_2 情况下, 两组仪器的相关性好, 偏差小, SO_2 对两组仪器的观测无显著影响。 SO_2 浓度为 0.2~0.4 DU 时 (图 3b), 匹配样本 74 组, Dobson 与 Brewer 平均偏差为 7.0 DU, 平均绝对偏差为 7.7 DU, 标准差 37.6 DU, 相关系数 0.98。 SO_2 浓度大于 0.4 DU (图 3c) 时, 匹配样本 124 组, Dobson 与 Brewer 平均偏差为 8.0 DU, 平均绝对偏差为 8.5 DU, 标准差 32.8 DU, 相关系数 0.98。在后面两种 SO_2 情况下 (中

等浓度和较高浓度), Dobson 和 Brewer 观测的臭氧数据偏差要明显大于低浓度 SO_2 情况下, 且两组仪器数据偏差随着 SO_2 浓度升高而增大, 表明 SO_2 可能影响了 Dobson 测量。如前所述, Brewer 测量臭氧考虑了 SO_2 的影响, 而 Dobson 未进行 SO_2 订正, 因此, 不同浓度 SO_2 条件下两者测量结果的一致性也受到一定影响 (张中波, 2005)。

3.2 臭氧总量变化趋势

图 4a 显示 1979~2016 年香河站 Dobson 观测臭氧总量数据月平均变化, 可以看出, 香河站臭氧总量月际变化显著。臭氧总量呈显著的季节变化, 春、冬两季臭氧水平高, 夏、秋两季臭氧水平相对

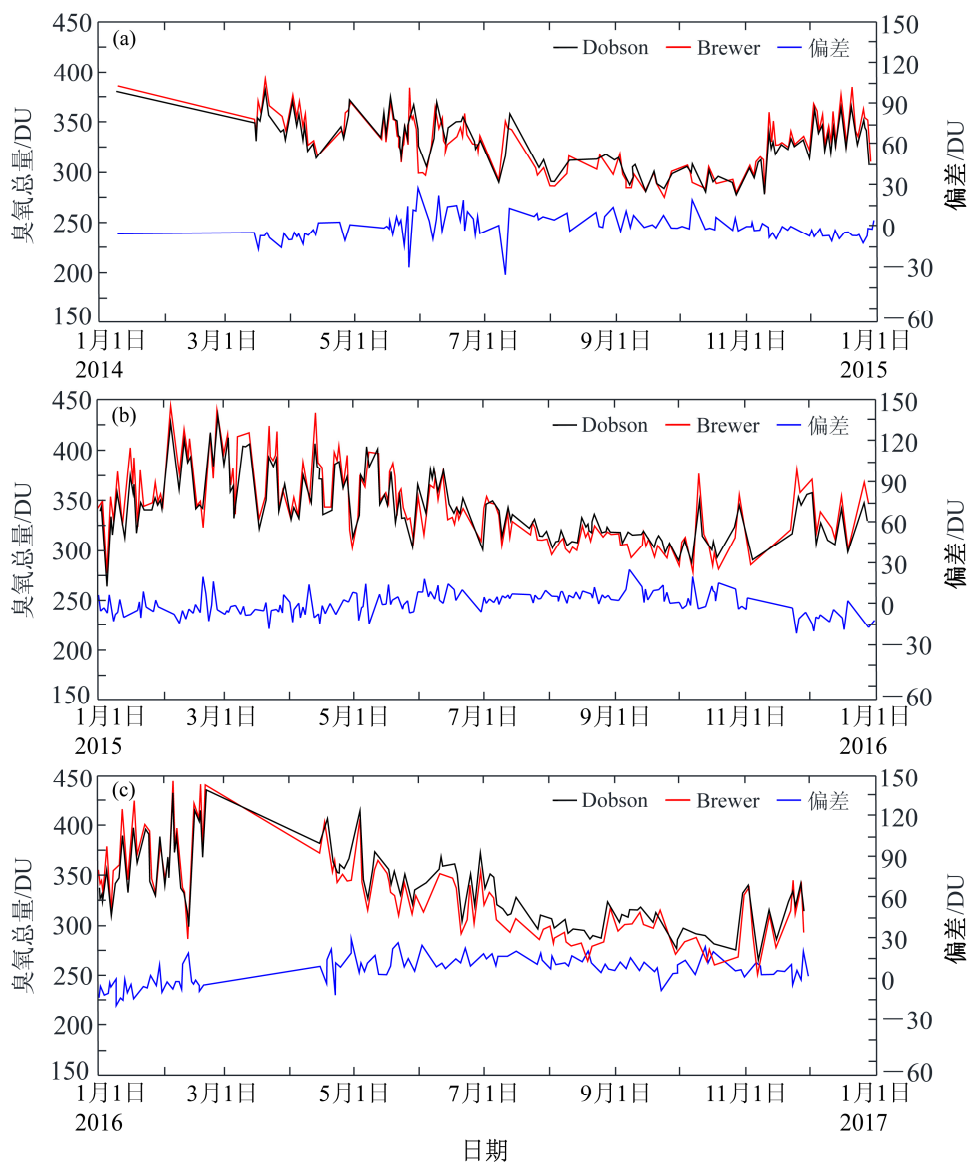


图 2 2014~2016 年香河站 Dobson 和 Brewer 观测臭氧总量时间序列分布及偏差: (a) 2014 年; (b) 2015 年; (c) 2016 年

Fig. 2 Time series of the total ozone amounts from Dobson and Brewer measurements and their deviations at Xianghe station during 2014–2016: (a) 2014; (b) 2015; (c) 2016

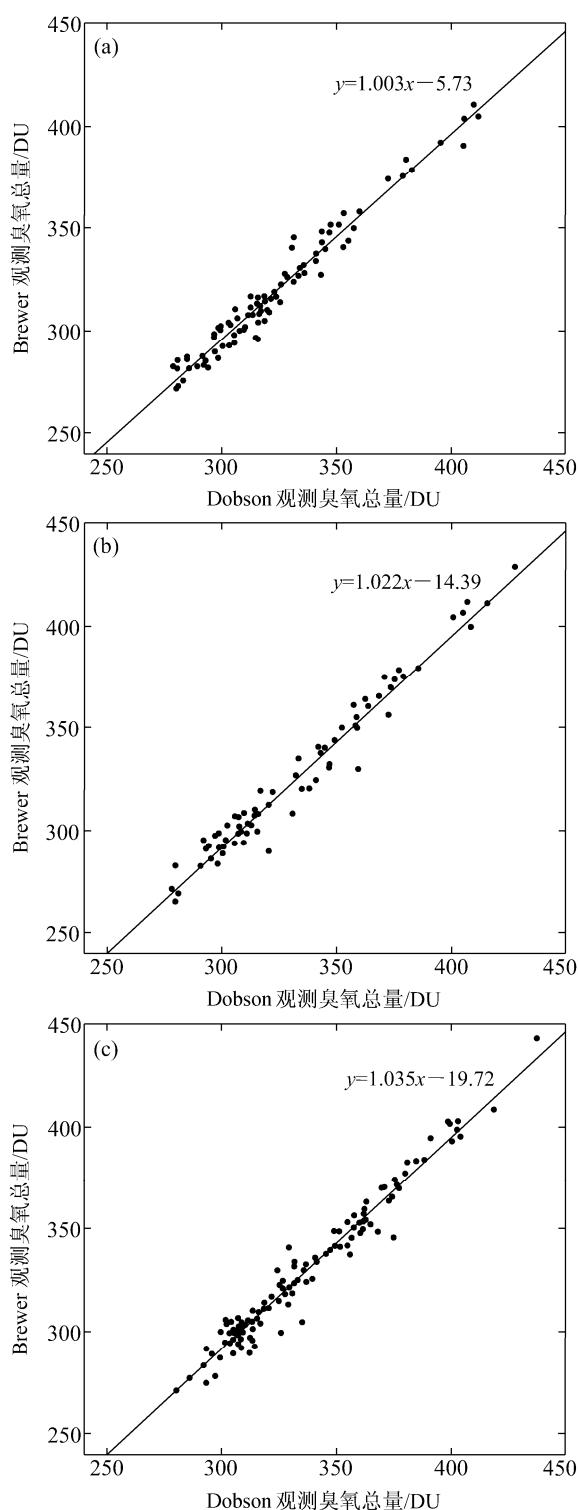


图3 2014~2016年SO₂浓度为(a) 0~0.2 DU、(b) 0.2~0.4 DU和(c) >0.4 DU大气条件下香河站Dobson和Brewer匹配观测臭氧总量数据对比

Fig. 3 Scatter plots of total ozone amounts between Dobson and Brewer observations at Xianghe station during 2014~2016, with the SO₂ concentrations of (a) 0~0.2 DU, (b) 0.2~0.4 DU, and (c) >0.4DU, separately

低, 臭氧总量变化幅度为 73.3 DU。10 月至次年 3 月臭氧总量总体上升, 3 月达到最高值 376.7 DU。之后 3~10 月臭氧总量急剧下降, 在 10 月达到最低值 303.4 DU。不同季节的大气环流差异, 使臭氧总量变化明显 (Kerr et al., 1988)。

图 4b 为 1979~2016 年香河站 Dobson 观测臭氧总量月平均变化趋势 (取每个月各自在 1979~2016 年间的月平均变化趋势斜率), 其中 1 月、2 月、4 月、6 月、8 月变化趋势通过信度检验, 3 月、5 月、7 月、9 月、10 月、11 月、12 月变化趋势未通过信度检验。如图所示, 6~8 月与 11 月这 4 个月臭氧月平均变化斜率都大于 0, 说明月均值呈增长趋势。其余的 8 个月臭氧月平均变化斜率小于 0, 月平势呈减少趋势。在 1 月、2 月和 4 月这 3 个月的月平均变化斜率绝对值都较大, 说明这 3 个月臭氧月平均变化明显, 波动大。在其余 9 个月趋势斜率绝对值较小, 说明臭氧月平均变化不明显, 波动小。可以看出, 臭氧月平均变化趋势与季节有关, 不同季节臭氧月平均趋势变化差异大。

图 5 为 1979~2016 年香河站 Dobson 观测数据年平均值的变化。可见, 在 1979~1997 年, 臭氧总体水平呈下降趋势; 1997~2010 年, 臭氧总体水平呈上升趋势; 2010~2016 年, 臭氧总体水平又呈下降趋势。1993 年测得最低值 325.8 DU, 2010 年测得最高值 355.6 DU。臭氧总量年际变化呈现出一定周期波动, 原因是太阳活动和准两年振荡的调制以及臭氧层破坏和恢复 (张莹, 2014)。还可以看出, 臭氧总量变化格局在年代际尺度上是不同的。

4 总结

作为地基臭氧总量观测的两种常用仪器, Dobson 与 Brewer 臭氧分光光度计的观测原理相同, 但在光谱通道和反演处理技术上存在差别。本文使用中国科学院大气物理研究所在河北香河大气综合观测试验站观测数据, 对比分析了差异性, 并研究了该地区臭氧总量的长期变化趋势, 主要结论如下:

(1) 总体来看, 进行有效温度修正后, 两种臭氧总量仪器观测结果一致性较好, 平均偏差仅为 -0.14 DU, 平均绝对偏差为 8.00 DU, 标准差为 36.09 DU, 相关系数达 0.964。

(2) Dobson 和 Brewer 测量的臭氧总量差有比较明显的季节变化特征, 此外数据分析表明二者差

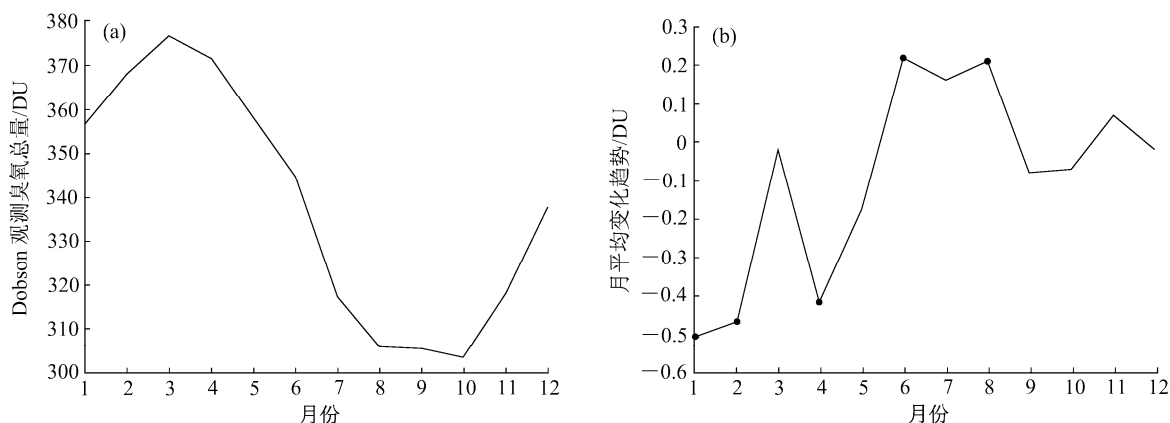


图4 1979~2016年香河站 Dobson 观测 (a) 月平均臭氧总量及 (b) 其变化趋势

Fig. 4 (a) Dobson measurement monthly averaged total ozone amount, and (b) its variation trend at Xianghe station during 1979–2016

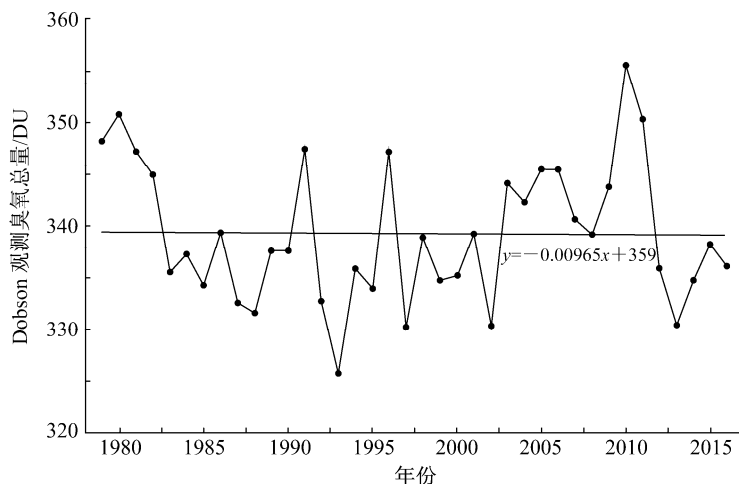


图5 1979~2016年香河站 Dobson 观测臭氧总量数据年平均时间序列

Fig. 5 Time series of annual mean total ozone amounts from Dobson observation data at Xianghe station during 1979–2016

异也与 SO_2 浓度有关,低 SO_2 条件下二者差异较低,而高 SO_2 条件下两者差异加大。

(3) 近 40 年香河地区的臭氧总量水平季节差异性,月际变化显著,季节变化趋势差异明显。而从年际上看,臭氧变化波动频繁,在 4 个大的时间段呈现不同的变化趋势,2000~2010 年臭氧层有显著恢复,但近几年又有变薄的趋势。这需要开展连续不断的长期监测和深入的变化机理研究。

致谢 感谢中国科学院大气物理研究所香河站维护 Dobson 和 Brewer 仪器,提供臭氧总量观测数据;感谢中国科学院大气所王普才研究员课题组提供 MAX-DOAS 数据。

参考文献 (References)

- Bian J C, Chen H B, Zhao Y L, et al. 2002. Variation features of total atmospheric ozone in Beijing and Kunming based on Dobson and TOMS data [J]. *Advances in Atmospheric Sciences*, 19 (2): 279–286, doi:10.1007/s00376-002-0022-z.
- Brewer A W. 1973. A replacement for the Dobson spectrophotometer? [J]. *Pure Appl. Geophys.*, 106–108 (1): 919–927, doi:10.1007/BF00881042.
- 紫素盈. 2016. 昆明地区的臭氧探测及地基臭氧总量反演方案的订正研究 [D]. 云南大学博士学位论文, 119pp.
- Chai Suying. 2016. Ozone observation and correction of ground-based total ozone retrieval algorithm at Kunming [D]. Ph.D. dissertation (in Chinese), Yunnan University, 119pp.
- Clémer K, van Roozendaal M, Fayt C, et al. 2010. Multiple wavelength retrieval of tropospheric aerosol optical properties from MAXDOAS measurements in Beijing [J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 3 (4): 863–878, doi:10.5194/amt-3-863-2010.
- Dobson G M B. 1963. Note on the measurement of ozone in the atmosphere [J]. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 89 (381): 409–411, doi:10.1002/qj.49708938112.
- Dobson G M B. 1968. Forty Years' research on atmospheric ozone at Oxford: A history [J]. *Appl. Opt.*, 7 (3): 387–405, doi:10.1364/AO.7.000387.
- Kerr J B. 2002. New methodology for deriving total ozone and other atmospheric variables from Brewer spectrophotometer direct sun spectra [J]. *J. Geophys. Res.*, 107 (D23): ACH 22-1–ACH 22-17, doi:10.1029/2001JD001227.
- Kerr J B, Asbridge I A, Evans W F J. 1988. Intercomparison of total ozone

Bian J C, Chen H B, Zhao Y L, et al. 2002. Variation features of total atmospheric ozone in Beijing and Kunming based on Dobson and TOMS data [J]. *Advances in Atmospheric Sciences*, 19 (2): 279–286, doi:10.

- measured by the Brewer and Dobson spectrophotometers at Toronto [J]. *J. Geophys. Res.*, 93 (D9): 11129–11140, doi:10.1029/JD093iD09p11129.
- Kerr J B, McElroy C T, Olafson R A. 1981. Measurements of total ozone with the Brewer spectrophotometer [C]//*Proceedings of the Quadrennial Ozone Symposium*. Boulder: National Center for Atmospheric Research, 74–79.
- Kerr J B, McElroy C T, Tarasick D W, et al. 1994. The Canadian ozone watch and UV-B advisory programs [C]//*Proceedings of the Quadrennial Ozone Symposium*. Virginia: NASA.
- 李天奕. 2011. 基于 OMI 和 TOMS 的大气臭氧柱总量时空变化的研究 [D]. 中国科学技术大学硕士学位论文, 61pp.
- Li Tianyi. 2011. The spatio-temporal variations of the total ozone column based on measurements of OMI and TOMS [D]. M.S. thesis (in Chinese), University of Science and Technology of China, 61pp.
- Platt U, Perner D, Pätz H W. 1979. Simultaneous measurement of atmospheric CH_2O , O_3 , and NO_2 by differential optical absorption [J]. *J. Geophys. Res.*, 84 (C10): 6329–6335, doi:10.1029/JC084iC10p06329.
- Scarnato B, Staehelin J, Peter T, et al. 2009. Temperature and slant path effects in Dobson and Brewer total ozone measurements [J]. *J. Geophys. Res.*, 114 (D24): <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/full/10.1029/2009JD012349>, doi:10.1029/2009JD012349.
- 石广玉, 白宇波, 岩坂泰信, 等. 2000. 拉萨上空大气臭氧垂直分布的高空气球探测 [J]. *地球科学进展*, 15 (5): 522–524.
- Shi Guangyu, Bai Yubo, Iwasaka Y, et al. 2000. A balloon measurement of the ozone vertical distribution over Lhasa [J]. *Advances in Earth Science (in Chinese)*, 15 (5): 522–524, doi:10.3321/j.issn:1001-8166.2000.05.006.
- 唐孝炎, 张远航, 邵敏. 1992. 大气环境化学 [M]. 2 版. 北京: 高等教育出版社, 606–611.
- Tang Xiaoyan, Zhang Yuanhang, Shao Min. 1992. *Atmospheric Environmental Chemistry (in Chinese)* [M]. 2nd ed. Beijing: Higher Education Press, 606–611.
- Vanicek K. 2006. Differences between ground Dobson, Brewer and satellite TOMS-8, GOME-WFDOAS total ozone observations at Hradec Kralove, Czech [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6 (12): 5163–5171, doi:10.5194/acpd-6-5839-2006.
- 王刚, 张鹏, 王维和, 等. 2009. 卫星遥感测量大气二氧化硫的新进展 [C]//第 26 届中国气象学会年会大气成分与天气气候及环境变化分会场论文集. 杭州: 中国气象学会, 274–275.
- Wang Gang, Zhang Peng, Wang Weihe, et al. 2009. New progress of measurement of atmospheric sulfur dioxide by satellite remote sensing [C]. Hangzhou: China Meteorological Society, 274–275.
- 王庚辰. 1991. 我国大气臭氧探测技术的进展现状 [J]. *地球科学进展*, 6 (6): 31–36.
- Wang Gengchen. 1991. Current status of atmospheric ozone detection technology in China [J]. *Advances in Earth Science (in Chinese)*, 6 (6): 31–36, doi:10.11867/j.issn.1001-8166.1991.06.0031.
- 王庚辰. 2003. 大气臭氧层和臭氧洞 [M]. 北京: 气象出版社, 60–70.
- Wang Gengchen. 2003. *Atmospheric Ozone Layer and Ozone Hole (in Chinese)* [M]. Beijing: Meteorological Press, 60–70.
- 王普才, 吴北婴, 章文星. 1999. 影响地面紫外辐射的因素分析 [J]. *大气科学*, 23 (1): 1–8.
- Wang Pucai, Wu Beiyang, Zhang Wenxing. 1999. Analysis on the factors affecting surface UV radiation [J]. *Chinese Journal of Atmospheric Sciences (in Chinese)*, 23 (1): 1–8, doi:10.3878/j.issn.1006-9895.1999.01.01.
- 王卫国, 罗燕, 陈鲁言, 等. 2004. 中国西南上空大气臭氧垂直分布的结构特征 [J]. *云南大学学报 (自然科学版)*, 26 (4): 315–319.
- Wang Weiguo, Luo Yan, Chen Luyan, et al. 2004. A structural measurement of ozone vertical distribution in spring over Kunming [J]. *Journal of Yunnan University*, 26 (4): 315–319, doi:10.3321/j.issn:0258-7971.2004.04.010.
- WMO. 2010. Scientific Assessment of Ozone Depletion [R]. World Meteorological Organization Global Ozone Research and Monitoring Project-Report No. 52, Geneva: WMO.
- 颜晓露, 郑向东, 周秀骥, 等. 2015. 夏季青藏高原及其周边地区卫星 MLS 水汽、臭氧产品的探空检验分析 [J]. *中国科学: 地球科学*, 45 (3): 335–350.
- Yan Xiaolu, Zheng Xiangdong, Zhou Xiuji, et al. 2015. Validation of aura microwave limb sounder water vapor and ozone profiles over the Tibetan Plateau and its adjacent region during boreal summer [J]. *Chinese Science: Earth Science*, 58 (4): 589–603.
- 余环. 2011. 对流层 NO_2 的卫星和地基遥感反演算法研究及其在华北地区的观测应用 [D]. 中国科学院大气物理研究所博士学位论文, 120pp.
- Yu Huan. 2011. Study of the tropospheric NO_2 retrieval from satellite and ground-based special measurement and its application in North China [D]. Ph.D. dissertation (in Chinese), Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, 120pp.
- 张莹. 2014. 中国臭氧总量 30a 时空变化以及近地面臭氧浓度气象要素影响研究 [D]. 南京信息工程大学硕士学位论文, 77pp.
- Zhang Ying. 2014. Variation of total ozone over China for 30 years and meteorological factors on ozone concentrations near the ground [D]. M.S. thesis (in Chinese), Nanjing University of Information Science & Technology, 77pp.
- 张中波. 2005. 地基观测与卫星 TOMS 观测的全球大气臭氧总量对比分析 [D]. 南京信息工程大学硕士学位论文, 74pp.
- Zhang Zhongbo. 2005. Comparative analysis of global total atmospheric ozone with ground-based observations and satellite TOMS observations [D]. M.S. thesis (in Chinese), Nanjing University of Information Science & Technology, 74pp.
- 郑向东, 汤洁, 李维亮, 等. 2000. 拉萨地区 1998 年夏季臭氧总量及垂直廓线的观测研究 [J]. *应用气象学报*, 11 (2): 173–179.
- Zheng Xiangdong, Tang Jie, Li Weiliang, et al. 2000. Observational study on total ozone amount and its vertical profile over Lhasa in the summer of 1998 [J]. *Quarterly Journal of Applied Meteorology (in Chinese)*, 11 (2): 173–179, doi:10.3969/j.issn.1001-7313.2000.02.006.
- 周秀骥, 罗超, 李维亮, 等. 1995. 中国地区臭氧总量变化与青藏高原低值中心 [J]. *科学通报*, 40 (15): 1396–1398.
- Zhou Xiuji, Luo Chao, Li Weiliang, et al. 1995. Variation of total ozone in China and low value center of Tibetan Plateau [J]. *Chinese Science Bulletin (in Chinese)*, 40 (15): 1396–1398.
- 周秀骥, 李维亮, 陈隆勋, 等. 2004. 青藏高原地区大气臭氧变化的研究 [J]. *气象学报*, 62 (5): 513–527.
- Zhou Xiuji, Li Weiliang, Chen Longxun, et al. 2004. Study of ozone change over Tibetan Plateau [J]. *Acta Meteorologica Sinica (in Chinese)*, 62 (5): 513–527, doi:10.11676/qxxb2004.053.
- Zou H. 1996. Seasonal variation and trends of TOMS ozone over Tibet [J]. *Geophys. Res. Lett.*, 23 (9): 1029–1032, doi:10.1029/96GL00767.
- Zou H, Gao Y Q. 1997a. Long-term variation in TOMS ozone over 60°–70°S [J]. *Geophys. Res. Lett.*, 24 (18): 2295–2298, doi:10.1029/97GL02311.
- Zou H, Gao Y Q. 1997b. Vertical ozone profile over Tibet using sage I and II data [J]. *Advances in Atmospheric Sciences*, 14 (4): 505–512, doi:10.1007/s00376-997-0068-z.