

# 中国南方沿海城市对流层臭氧变化

谢扬程<sup>1</sup>, 唐南军<sup>2</sup>

(1. 福建师范大学地理科学学院, 福州 350108;

2. 福建省气象局 福建省灾害天气重点实验室, 福州 350025)

**摘要:** 对流层臭氧是对植被和人类健康有害的污染气体, 同时也是影响辐射强迫的温室气体。近年来, 臭氧污染日益严重, 虽然地表臭氧污染一直是人们的关注焦点, 但其变化与地表之上的对流层臭氧变化密切相关。因此, 本文结合中国南方沿海城市香港、台北和南京的对流层臭氧飞机观测数据, 研究了对流层臭氧水平和垂直方向上的变化情况。研究发现, 在同一高度层内, 三个城市在冬季臭氧的变化最小, 夏季的变化最大; 在垂直梯度方面, 平均而言对流层中层最大, 对流层高层最小。总体而言, 春季的对流层臭氧浓度最大, 秋季和冬季最小, 南京在整个对流层中各个季节的臭氧浓度均高于香港和台北。

**关键词:** 中国南方; 对流层臭氧; 垂直梯度; 飞机观测

**中图分类号:** P402

## Changes of tropospheric ozone in coastal cities of southern China

XIE Yangcheng<sup>1</sup>, TANG Nanjun<sup>2</sup>

(1. Department of Geographical Sciences, Fujian Normal University, Fuzhou 350108;

2. Fujian Provincial Key Laboratory of Disaster Weather, Fujian Meteorological Bureau, Fuzhou 350025)

**Abstract:** Tropospheric ozone is a pollutant gas harmful to vegetation and human health, as well as a greenhouse gas affecting radiative forcing. In recent years, ozone pollution has become increasingly serious. Although surface ozone pollution has always been the focus of attention, its change is closely related to the change of tropospheric ozone above the surface. Therefore, the horizontal and vertical variations of tropospheric ozone in the south China coastal cities of Hong Kong, Taipei and Nanjing are studied in this paper. It is found that in the same level, the change of ozone in the three cities is the least in winter, and the biggest in summer. In terms of vertical gradient, the middle troposphere is the largest and the upper troposphere is the smallest on average. In general, the tropospheric ozone concentration is the highest in spring and the lowest in autumn and winter, and the ozone concentration in Nanjing is higher than that in Hong Kong and Taipei in all seasons.

**Key words:** southern China; tropospheric ozone; vertical gradient; IAGOS

## 0 引言

地球大气中的臭氧(O<sub>3</sub>)大约有90%分布在平流层, 10%分布在对流层<sup>[1-2]</sup>。平流层中的臭氧可以吸收太阳放射出的强烈紫外线辐射, 使近地面边界层内的生物体免受太阳辐射伤害, 充当“地球保护伞”的角色, 并且在全球气候变化中发挥着重要作用<sup>[3-4]</sup>。与平流层臭氧不同, 对流层中的臭氧是一种痕量气体, 在大气中的占比很低, 但对流层近地面的高浓度臭氧对人体呼吸和心血管系统、农作物及植被生长都有不利影响<sup>[5-6]</sup>。此外, 在对流层高层的臭氧还是一种温室气体<sup>[7-8]</sup>, 吸收地表反射辐射, 影响辐射平衡, 进而影响全球的气候变化<sup>[9]</sup>, 臭氧现已成为全球仅次于二氧化碳(CO<sub>2</sub>)的第二大温室气体。作为空气的主要污染物之一,

**作者简介:** 谢扬程(1998-), 男, 主要研究方向: 臭氧环境污染

**通信联系人:** 唐南军(1987-), 男, 工程师, 主要研究方向: 平流层与对流层交换. E-mail: tangnjtnj@163.com

对流层臭氧不是直接排放的，而是通过氮氧化物（ $\text{NO}_x=\text{NO}+\text{NO}_2$ ）、挥发性有机化合物（VOCs）和一氧化碳（CO）等臭氧前体物在强烈的太阳辐射下发生复杂的光化学反应生成的二次空气污染物<sup>[6]</sup>。另外，对流层还有一部分臭氧是来源于平流层臭氧的向下输送<sup>[10]</sup>。臭氧依据其在垂直方向上的分布和所在地区的污染情况，寿命从几小时到几周不等。在自由对流层臭氧可以存在几周；在如城市中心等高污染地区氮氧化物排放量大，在一氧化氮（NO）和二氧化氮（ $\text{NO}_2$ ）光化学反应和滴定效应的影响下，臭氧的生成和消亡速率快，而在农村和城市郊区或偏远地区氮氧化物排放水平低，臭氧的存活时间更长。

进入 21 世纪以来，随着城市的快速发展和工业化进程的推进，人类排放的空气污染物大量增加，由此引发的环境空气污染问题日益突出。其中因光化学污染的加剧导致的臭氧污染问题不容忽视，尤其是在中国南方沿海城市这些经济发达的地区臭氧污染问题更加严重<sup>[11-14]</sup>。因此，本研究将从中国南方沿海城市的对流层臭氧观测出发，提供对流层臭氧水平和垂直方向上的变化情况，加深对臭氧变化规律的认识。

## 1 IAGOS 简介

本研究采用的中国南方沿海城市对流层臭氧数据，来自于 IAGOS（In-service Aircraft for a Global Observing System）项目的空中大气化学成分垂直廓线观测。IAGOS 是一项欧洲研究基础设施，用于利用搭载在商用飞机上的观测仪器在飞机的起飞和降落过程中进行全球大气成分观测，提供关于全球范围内空气质量和气候变化的基本数据（<https://www.iagos.org>）<sup>[15-16]</sup>。IAGOS 以长期可持续运营为目标，第一架飞机于 2011 年 7 月投入使用，但目前在中国只有部分城市机场对臭氧有垂直观测。飞机配备了在 253.7nm 波段下运行的双光束紫外线吸收监测仪自动测量和校正臭氧浓度。臭氧测量响应时间（时间分辨率）为 4 秒，臭氧浓度精度为  $\pm 2\text{ppbv}$ <sup>[17]</sup>。

## 2 研究数据处理

本研究选取了 2012-2018 年间香港（Hong Kong）台北（Taipei）以及南京（Nanjing）上空观测的 IAGOS 臭氧廓线。每个观测臭氧的机场都位于相应城市的郊区，原始数据在垂直方向上 0-12 公里高度范围内被统一处理成 250 米分辨率。由于飞机不是垂直地起飞和降落，数据观测不是一直固定在机场的垂直上空，但是随着高度的增加对流层臭氧在水平方向上的差异远大于垂直方向上的变化，因此在一定范围内可忽略水平方向上观测数据的变化，因此本研究将臭氧廓线限定在距离机场 150 公里范围内以获得更多垂直方向上的数据。香港、台北和南京的臭氧廓线总数分别为 1128、2632 和 298 条。

## 3 对流层臭氧变化

### 3.1 臭氧季节分布变化

图 1、2 和 3 分别展示了香港、台北和南京每 1 公里的高度层上臭氧观测值的分布情况，

由于每个高度层上的观测数量分布不均,因此每个臭氧浓度区间上的观测数量被归一化为在相应高度层的占比(即每个区间的观测数量和相应高度层的所有观测数量的比值)。为了方便描述,这里将对流层划分为边界层(0-2 km)、对流层低层(2-4 km)、对流层中层(4-8 km)和对流层高层(8-12 km)。

80 冬季(如图 1a、2a 和 3a 所示)香港、台北和南京所有高度层观测到的对流层臭氧浓度大部分小于 80ppbv。香港和台北各个高度层上的臭氧浓度集中分布在 30ppbv 到 60ppbv 之间,南京则集中分布在 40ppbv 到 70ppbv 之间。相对于冬季,春季(如图 1b、2b 和 3b 所示)香港和台北对流层中高层臭氧浓度大于 80ppbv 的占比明显升高,且南京在所在高度层均能明显观测到大于 80ppbv 的臭氧浓度。

85 夏季(如图 1c、2c 和 3c 所示)这些城市各个高度层上的臭氧浓度分布范围较广,香港和台北主要分布在 20 到 80ppbv 之间,而南京主要分布在 30 到 100ppbv 之间。但香港和台北对流层中高层依然可以观测到大于 80ppbv 的臭氧浓度,南京在边界层和对流层高层甚至有部分臭氧浓度大于 110ppbv。秋季(如图 1d、2d 和 3d 所示)香港和台北对流层臭氧浓度主要分布在 20 到 80ppbv 之间,南京主要分布在 30 到 90ppbv 之间。值得注意的是,在 9 到 10 公里的高度层观测到突出的异常值(160-170ppbv),但在这个高度层观测样本较少,所以该异常值可能是个例。

90

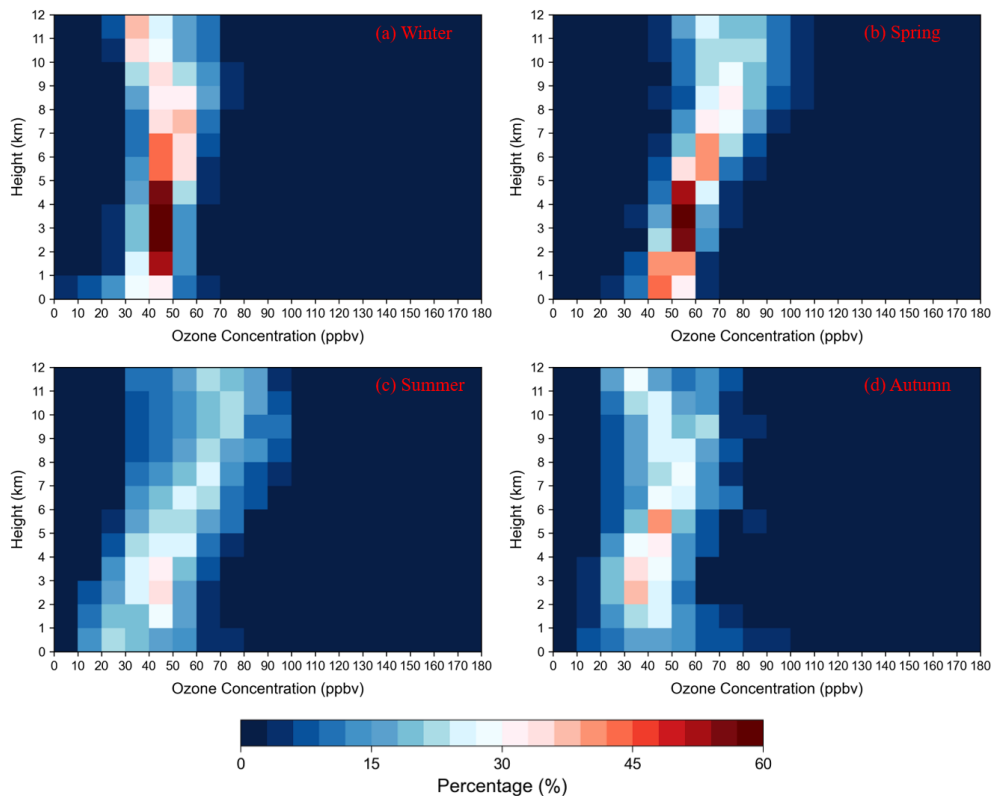


图1 香港臭氧分布

Fig. 1 Ozone distribution in Hong Kong

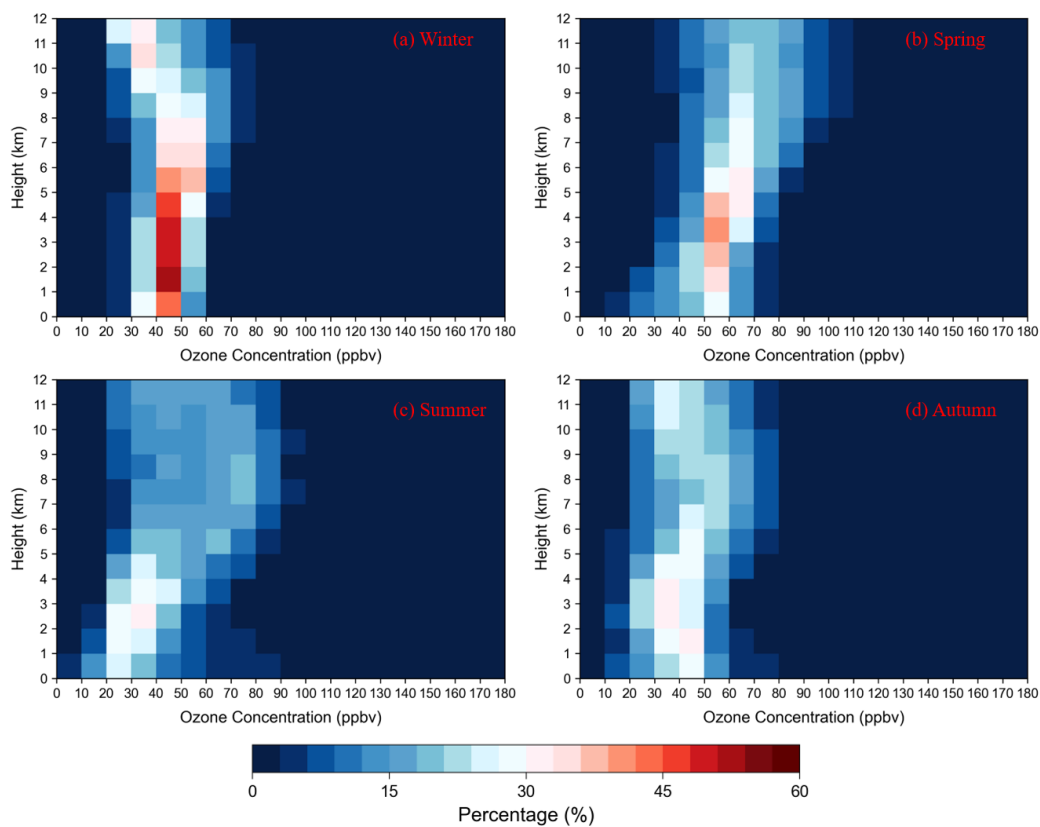


图2 台北臭氧分布

Fig. 2 Ozone distribution in Taipei

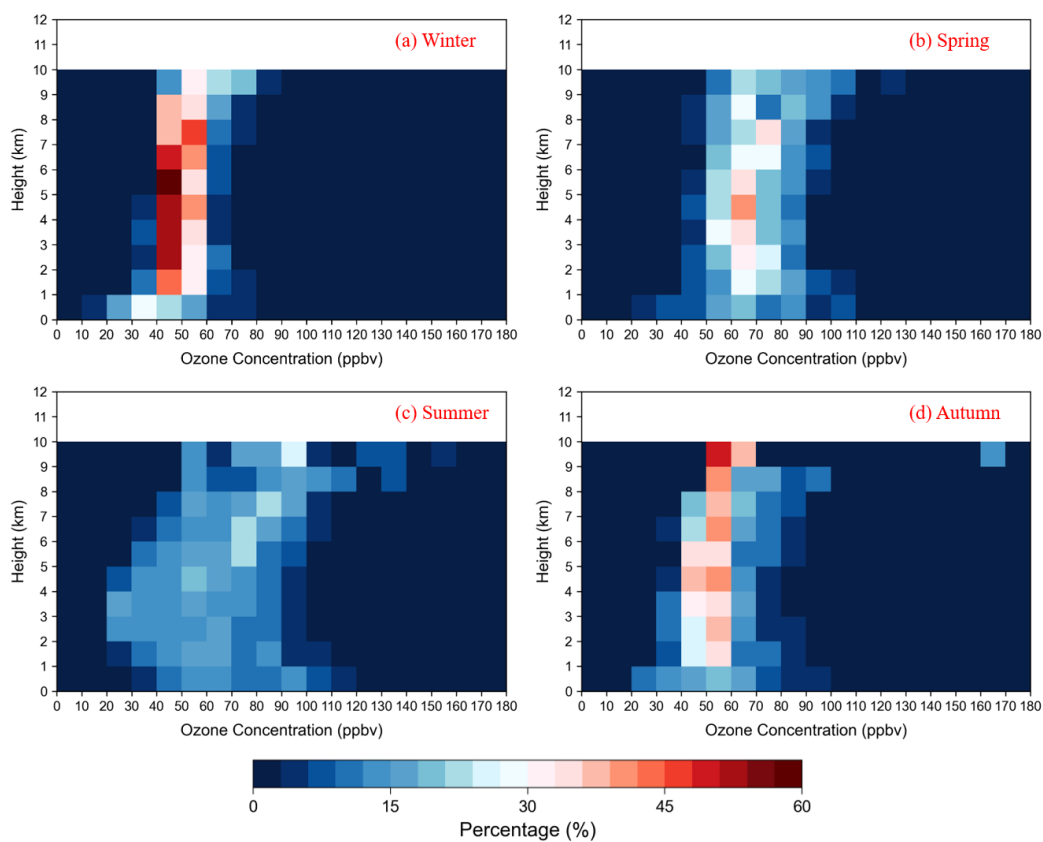


图3 南京臭氧分布

Fig. 3 Ozone distribution in Nanjing

100

### 3.2 臭氧垂直梯度

为了研究各城市每个季节对流层臭氧随高度变化的速率,表 3.2、3.3、3.4 和 3.5 列出了香港、台北和南京对流层臭氧每 1 公里高度层的垂直梯度。

105

香港(见表 1)春季对流层臭氧浓度从地面到海拔 10 公里每个高度层内平均变化为随高度的增加而增加(垂直梯度大于 0),10 公里到 12 公里表现为随高度的增加而较小(垂直梯度小于 0)。对流层中层臭氧垂直梯度在整个对流层中最大(平均为  $4.49\text{ppbv km}^{-1}$ ),在 7-8 公里高度层内达到最大,臭氧浓度随高度的增加上升得最快。而对流层高层的臭氧平均垂直梯度最小( $-2.31\text{ppbv km}^{-1}$ ),11-12 公里高度层内的垂直梯度在整个对流层中达到最小,臭氧浓度随高度的增加减小得最快。夏季对流层中层臭氧垂直梯度在整个对流层中最大,平均达到  $4.99\text{ppbv km}^{-1}$ ,在对流层高层最小,平均只有  $-1.21\text{ppbv km}^{-1}$ 。臭氧浓度在 0-1 公里高度层内增加最快,在 11-12 公里减小最快。秋季的臭氧垂直梯度同样在对流层中层最大,平均为  $2.57\text{ppbv km}^{-1}$ ,但是在边界层的平均垂直梯度最小( $-3.00\text{ppbv km}^{-1}$ )。其中臭氧浓度增加最快和减小最快的高度范围都在边界层内(分别为 0-1 公里和 1-2 公里)。冬季臭氧浓度随高度的增加而增长最快的是边界层,平均垂直梯度  $7.89\text{ppbv km}^{-1}$ ,在对流层高层减小最快,平均垂直梯度  $-1.83\text{ppbv km}^{-1}$ 。臭氧垂直梯度最大和最小的高度层分别为 0-1 公里和 10-11 公里。所有季节中,对流层臭氧在冬季 0-1 公里的高度层有最大垂直梯度,在秋季 1-2 公里的高度层有最小垂直梯度。

115

表 1 香港对流层臭氧季节垂直梯度

Tab.1 Seasonal vertical gradient of tropospheric ozone over Hong Kong

高度 (km)	季节垂直梯度 ( $\text{ppbv km}^{-1}$ )			
	春季	夏季	秋季	冬季
0-1	3.29	7.40	14.93	16.65
1-2	1.97	-5.34	-20.92	-0.88
2-3	2.91	0.70	-0.66	0.46
3-4	0.54	4.67	4.03	2.34
4-5	2.47	5.61	4.33	1.07
5-6	5.49	6.17	2.38	1.97
6-7	4.48	4.93	3.51	0.79
7-8	5.50	3.24	0.07	0.97
8-9	2.25	0.57	-1.19	-1.94
9-10	1.41	1.52	-4.69	-2.23
10-11	-0.41	-3.33	-1.76	-2.45
11-12	-12.47	-3.60	1.21	-0.70

120

台北(见表 2)春季边界层的臭氧平均垂直梯度最大( $4.28\text{ppbv km}^{-1}$ ),对流层高层平均垂直梯度最小( $-0.44\text{ppbv km}^{-1}$ )。最大的对流层臭氧垂直梯度 0-1 公里的高度层,最小的在 1-2 公里的高度层。夏季臭氧平均垂直梯度最大的在对流层中层( $4.01\text{ppbv km}^{-1}$ ),最小的在对流层高层( $-1.83\text{ppbv km}^{-1}$ )。在 0-1 公里的高度层有最大的对流层臭氧垂直梯度,在 10-11 公里的高度层有最小的垂直梯度。秋季对流层中层的臭氧平均垂直梯度最大( $2.33\text{ppbv km}^{-1}$ ),对流层高层的臭氧浓度随着高度的增加一直减小,平均垂直梯度最小( $-2.08\text{ppbv km}^{-1}$ )。

km<sup>-1</sup>)。在 0-1 公里的高度层有最大的对流层臭氧垂直梯度, 在 1-2 公里的高度层有最小的垂直梯度。冬季边界层的臭氧平均垂直梯度最大 (4.10ppbv km<sup>-1</sup>), 和秋季一样, 对流层高层的臭氧浓度也随着高度的增加一直减小, 平均垂直梯度最小 (-3.09ppbv km<sup>-1</sup>)。在 0-1 公里的高度层有最大的对流层臭氧垂直梯度, 在 10-11 公里的高度层有最小的垂直梯度。从所有季节看, 对流层臭氧在春季 0-1 公里的高度层有最大垂直梯度, 在秋季 1-2 公里的高度层有最小垂直梯度。

表 2 台北对流层臭氧季节垂直梯度  
Tab.2 Seasonal vertical gradient of tropospheric ozone over Taipei

高度 (km)	季节垂直梯度 (ppbv km <sup>-1</sup> )			
	春季	夏季	秋季	冬季
0-1	11.25	9.19	8.68	8.30
1-2	-2.70	-1.2	-5.89	-0.10
2-3	4.66	0.72	-1.52	-0.15
3-4	1.84	5.39	4.45	1.36
4-5	3.03	4.77	3.81	2.07
5-6	3.38	5.26	2.73	0.30
6-7	4.25	3.42	2.33	1.49
7-8	1.96	2.57	0.43	-0.26
8-9	0.52	-0.27	-1.67	-1.02
9-10	-2.11	-3.77	-1.64	-2.54
10-11	-1.30	-4.06	-2.57	-4.64
11-12	1.14	0.78	-2.42	-4.14

南京 (见表 3) 春季 0-1 公里的高度层的臭氧垂直梯度明显最大, 而在 1-2 公里的高度层臭氧垂直梯度最小。但边界层的臭氧平均垂直梯度最大 (7.00ppbv km<sup>-1</sup>), 对流层低层的垂直梯度最小 (-1.42ppbv km<sup>-1</sup>)。到了夏季, 臭氧平均垂直梯度最大的在对流层中层 (5.64ppbv km<sup>-1</sup>), 最小的在边界层 (-6.45ppbv km<sup>-1</sup>)。在 8-9 公里的高度层内有最大的对流层臭氧垂直梯度, 在 1-2 公里的高度层有最小的垂直梯度。在 8 公里以下, 秋季边界层的臭氧平均垂直梯度最大 (4.32ppbv km<sup>-1</sup>), 对流层低层的平均垂直梯度最小 (-0.74ppbv km<sup>-1</sup>)。最大的对流层臭氧垂直梯度在 8-9 公里的高度层, 最小的垂直梯度在 1-2 公里的高度层。冬季对流层臭氧浓度整体上随高度的增加而增加, 对流层高层的臭氧平均垂直梯度最大 (21.12ppbv km<sup>-1</sup>), 对流层低层的平均垂直梯度最小 (-1.10ppbv km<sup>-1</sup>)。在 9-10 公里的高度层有最大的对流层臭氧垂直梯度, 在 3-4 公里的高度层有最小的垂直梯度。所有季节中, 对流层臭氧浓度在冬季 9-10 公里的高度层增长最快, 在夏季 9-10 公里的高度层减小最快。



表 3 南京对流层臭氧季节垂直梯度  
Tab.3 Seasonal vertical gradient of tropospheric ozone over Nanjing

高度 (km)	季节垂直梯度 (ppbv km <sup>-1</sup> )			
	春季	夏季	秋季	冬季
0-1	19.73	1.80	13.04	19.32
1-2	-5.74	-14.69	-4.41	0.04
2-3	-1.94	-2.12	-0.02	-0.80
3-4	-0.90	3.09	-1.45	-1.39
4-5	-2.18	4.08	1.99	0.84
5-6	5.74	7.53	3.39	-0.16
6-7	-1.53	3.06	2.45	1.39
7-8	4.97	7.89	3.37	5.64
8-9	4.82	23.08	17.14	7.32
9-10	-4.58	-20.29	-	34.92
10-11	-	-	-	-
11-12	-	-	-	-

说明：“-”表示无观测数据或数据太少不足以计算

4 结论

本文通过城市的飞机观测数据，给出了中国南方沿海城市对流层臭氧的变化情况。在臭氧分布方面，在同一高度层内，三个城市在冬季臭氧的变化最小，夏季的变化最大，南京在整个对流层各个季节中臭氧浓度均高于香港和台北。在垂直梯度方面，三个城市各个季节边界层 1 公里以下全部为正垂直梯度，臭氧浓度随高度增加而增加，且春季和冬季的垂直梯度普遍较大。边界层 1-2 公里的高度层大多数为负垂直梯度，臭氧浓度随高度增加而减小，其中夏季和秋季减小较快。各城市对流层中低层的季节臭氧垂直梯度基本上为正，虽然具体数值大小有差异，但臭氧浓度整体上随高度的增加而增加。从对流层高层臭氧垂直梯度看，香港和台北的臭氧浓度呈下降趋势。南京在夏季、秋季和冬季对流层高层的特定高度层内臭氧垂直梯度明显较大（尤其是冬季），但夏季臭氧浓度在急剧上升后又开始急剧下降。

[参考文献] (References)

[1] EYRING V, ARBLASTER J M, CIONNI I, et al. Long-term ozone changes and associated climate impacts in CMIP5 simulations[J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2013, 118(10):5029-5060.

[2] FISHMAN J, LARSEN J C. Distribution of total ozone and stratospheric ozone in the tropics: Implications for the distribution of tropospheric ozone[J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 1987, 92(D6):6627-6634.

[3] SOLOMON S. Stratospheric ozone depletion: A review of concepts and history[J]. Reviews of Geophysics, 1999, 37(3):275-316.

[4] ARMSTRONG B K. Stratospheric ozone and health[J]. International journal of epidemiology, 1994, 23(5):873-885.

[5] LEFOHN A S, MALLEY C S, SMITH L, et al. Tropospheric ozone assessment report: Global ozone metrics for climate change, human health, and crop/ecosystem research[J]. Elementa: Science of the Anthropocene, 2018, 6.

[6] MONKS P S, ARCHIBALD A T, COLETTE A, et al. Tropospheric ozone and its precursors from the urban to the global scale from air quality to short-lived climate forcer[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2015, 15(15):8889-8973.

[7] GAUDEL A, COOPER O, ANCELLET G, et al. Tropospheric Ozone Assessment Report: Present-day distribution and trends of tropospheric ozone relevant to climate and global atmospheric chemistry model evaluation[J]. Elementa: Science of the Anthropocene, 2018, 6.

- 185 [8] STEVENSON D S, YOUNG P J, NAIK V, et al. Tropospheric ozone changes, radiative forcing and attribution to emissions in the Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project (ACCMIP)[J]. Atmos. Chem. Phys., 2013, 13(6):3063-3085.
- [9] KERR G H, WAUGH D W, STRODE S A, et al. Disentangling the Drivers of the Summertime Ozone - Temperature Relationship Over the United States[J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2019, 124(19):10503-10524.
- 190 [10] YOUNG P J, NAIK V, FIORE A M, et al. Tropospheric Ozone Assessment Report: Assessment of global-scale model performance for global and regional ozone distributions, variability, and trends[J]. Elementa: Science of the Anthropocene, 2018, 6.
- [11] WANG T, XUE L, BRIMBLECOMBE P, et al. Ozone pollution in China: A review of concentrations, meteorological influences, chemical precursors, and effects[J]. Sci Total Environ, 2017, 575:1582-1596.
- 195 [12] LU X, ZHANG L, WANG X, et al. Rapid increases in warm-season surface ozone and resulting health impact in China since 2013[J]. Environmental Science & Technology Letters, 2020, 7(4):240-247.
- [13] LI K, JACOB D J, SHEN L, et al. Increases in surface ozone pollution in China from 2013 to 2019: anthropogenic and meteorological influences[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2020, 20(19):11423-11433.
- [14] LI K, JACOB D J, LIAO H, et al. Anthropogenic drivers of 2013-2017 trends in summer surface ozone in China[J]. Proceedings of the National Academy of Sciences, 2019, 116(2):422-427.
- 200 [15] WANG H Y, DING K, HUANG X, et al. Insight into ozone profile climatology over northeast China from aircraft measurement and numerical simulation[J]. Science of the Total Environment, 2021, 785.
- [16] PETZOLD A, THOURET V, GERBIG C, et al. Global-scale atmosphere monitoring by in-service aircraft - current achievements and future prospects of the European Research Infrastructure IAGOS[J]. Tellus Series B-Chemical and Physical Meteorology, 2015, 67.
- 205 [17] THOURET V, CHO J Y N, NEWELL R E, et al. General characteristics of tropospheric trace constituent layers observed in the MOZAIC program[J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2000, 105(D13):17379-17392.