朱彬. 2012. 东亚太平洋地区近地面臭氧的季节和年际变化特征及其与东亚季风的关系[J]. 大气科学学报,35(5):513-523. Zhu Bin. 2012. Seasonal and interannual variation features of surface ozone over East Asia-Pacific region and its relation with East Asian monsoon[J]. Trans Atmos Sci,35(5):513-523. (in Chinese)

东亚太平洋地区近地面臭氧的季节和年际变化特征 及其与东亚季风的关系

朱彬1,2

(南京信息工程大学1.中国气象局大气物理与大气环境重点开放实验室;2.大气物理学院,江苏南京210044)

摘要:利用东亚清洁背景站近地面臭氧观测资料,结合风场和降水资料,分析东亚各地区臭氧的多 年季节变化特征,并探讨东亚太平洋地区臭氧的季节和年际变化与季风的关系以及影响近地层臭 氧的主要因子。结果表明:东亚大部分地区与北半球背景站观测一致,近地层臭氧季节变化表现为 春季最高、夏季最低的特征;但在东亚中纬度33~43°N,臭氧表现为夏季最高,而在东亚20°N 以南 地区臭氧则表现为冬末、春初最高。东亚太平洋沿岸近地面臭氧的季节变化主要受东亚冬、夏季风 环流的季节变化控制。该地区不同纬度上春季峰值出现时间的差异与亚洲大陆春季不同时期污染 物输送路径的差异有关。对东亚太平洋沿岸对流层顶附近位势涡度、高空急流和垂直环流季节变 化的分析表明,冬春季可能是平流层向对流层输送的最强期,对近地面臭氧贡献最大。初夏至秋季 (5—11 月),平流层向对流层输送较弱,对近地面臭氧贡献较小。东亚太平洋地区夏季风爆发的时 间和强度以及季风环流型的年际差异是导致该地区春、夏季臭氧年际变化的主要原因;而季风降水 和云带位置以及平流层—对流层交换是造成臭氧年际变化的其他原因。

关键词:近地面臭氧;东亚季风;季节变化;年际变化

中图分类号:P402 文献标志码:A 文章编号:1674-7097(2012)05-0513-11

Seasonal and interannual variation features of surface ozone over East Asia-Pacific region and its relation with East Asian monsoon

ZHU Bin^{1,2}

(1. Key Laboratory for Atmospheric Physics and Environment of China Meteorological Administration;2. School of Atmospheric Physics, NUIST, Nanjing 210044, China)

Abstract: By using the monthly surface ozone data collected at remote sites over East Asia (EA) and related wind field and precipitation data, this paper studies the ozone seasonal cycle, interannual variation characteristics and their relations to EA monsoon, and the main factors influencing the surface ozone. The results show that the spring maximum and summer minimum of surface ozone occurs widely across mid-latitudes in the North Hemisphere at remote sites, including most parts of EA. However, the surface ozone has a summer maximum in the region of 33—43°N over EA, and a later winter/early spring maximum in south of 20°N over EA. These ozone seasonal cycle features were mainly controlled by the seasonal transitions of East Asia winter/summer monsoon circulations. The latitudinal differences of appearing time of surface ozone peaks in spring over EA Pacific Rim regions are closely related to the differences of pollutants transport path and strength from Asian continental. The analysis of seasonal variations of potential vorticity, upper air jet stream around tropopause, and the variation of vertical cir-

收稿日期:2012-02-12;改回日期:2012-06-04

基金项目:国家自然科学基金资助项目(40875078);国家"973"项目(2010CB428505);江苏省高校自然科学研究重大项目 (12KJA170003);江苏省"333"高层次人才培养工程资助项目;江苏高校优势学科建设工程资助项目(PAPD)

作者简介:朱彬(1969—),男,江苏姜堰人,博士,教授,博士生导师,研究方向为大气化学和大气环境,binzhu@nuist.edu.cn.

culations shows that the winter and spring are the strongest periods of air mass transport from stratosphere to troposphere. However, the transport from stratosphere to troposphere is weakest from May to November and has lower impact on surface ozone. The interannual variations of EA summer monsoon onset(time and strength) and patterns of circulation are the main reasons of surface ozone interannual variations in spring and summer over EA Pacific Rim regions. The other factors for surface ozone variation could be attributed to monsoon precipitations, cloud effects on photochemistry and the stratospheretroposphere transport.

Key words: surface ozone; East Asian monsoon; seasonal variation; interannual variation

0 引言

臭氧是对流层大气的重要痕量气体。它既是光 化学反应的产物,又是对流层化学过程的参与者,其 变化和分布直接影响到对流层大气的氧化能力,进 而影响到其他大气成分的组成和平衡(Thompson, 1992),以及城市、区域和全球的空气质量(Akimoto,2003)。作为温室气体,对流层臭氧参与对地球 大气的辐射强迫(IPCC,2007)。观测和模拟研究基 本确认,北半球人为源 NOx 等的增加,是近 30 多年 乃至近百年近地面臭氧升高的主要原因(Vingarzan,2004)。在近地层,臭氧多被视为污染物,过 高的臭氧体积分数将造成一系列不利于人类及生态 环境的不良影响,如降低农作物和森林生产力、危害 人体健康等(Mauzerall,2005)。

对流层臭氧的来源有两个:平流层输入和对流 层光化学反应生成。就某一地区而言,臭氧来源又 可分为平流层输入、局地光化学反应生成和长距离 输送(指从其他地区输送来的对流层光化学反应生 成的臭氧)。而控制对流层臭氧的物理、化学过程 则又可分为化学产生,水平、垂直平流,对流(如积 云深对流交换)以及沉降过程。以上源、汇及其过 程控制了全球对流层臭氧的时空变化。正是由于上 述源、汇及其过程在不同地区、不同时间所起的作用 不同,导致对流层臭氧的区域分布、日、季和年际变 化产生了巨大差异。目前,对臭氧源、汇及其过程的 定量认识还不够全面精细,这是造成我们对区域臭 氧分布和变化的认识存在不确定性的主要原因 (Wild,2007)。

观测表明,北半球大多数相对清洁地区(即人 类活动直接影响小的地区),近地层臭氧以春季为 全年最高(Monks,2000;Vingarzan,2004)。长期以 来,该季节变化的原因一直是大气化学界争论的热 点。经典的 Brower-Dobson 理论认为,热带地区对 流层上层和平流层形成的高体积分数臭氧,在 Brower-Dobson 环流的作用下,向热带外输送并在中高 纬地区下沉,并通过平流层一对流层交换过程 (stratosphere-troposphere exchange, STE)输送到对 流层和近地层,即对流层臭氧主要来自平流层,且春 季 STE 最强是产生此季节变化的根本原因(Levy, et al.,1985;Logan,1985)。近30多年,大多数研究 认为,就全球尺度而言,对流层本身的化学过程是对 流层臭氧的主要源,平流层作用较小(Lelieveld and Denterner,2000; Vingarzan,2004; Grewe,2006; Stevenson et al.,2006)。但是,就某一地区而言,对流 层臭氧受不同物理化学过程的控制,其来源组成因 地理位置、距人为源区远近以及季节不同而具有很 大的差异。

与北半球基本一致,东亚太平洋沿岸许多臭氧 背景站的观测结果亦显示出臭氧在春季最高、夏季 最低的季节变化特征,如中国华东地区(周秀骥, 2004) 以及日本、韩国等地 (Pochanart et al., 2002, 2003; Tanimoto, 2009)。一般认为, 此种季节性变化 特征是由于春季北半球中纬地区大陆光化学反应产 生的高体积分数臭氧随西风带向东输送,以及东亚 夏季风侵入带来低臭氧体积分数的海洋性气团所 致。在大陆腹地,东西伯利亚 Mondy 站(100.9°E, 51.7°N)的观测结果也显示出了臭氧体积分数在春 季最高、夏季最低的特征(Pochanart et al., 2003)。 Tanimoto et al. (2005)首先注意并分析了环西北太 平洋各站春季臭氧高值的纬向差异,利用区域模式 结果分析得出:春季亚洲大陆污染物输出路径的纬 向差异和季节性的光化学反应耦合是此特征的原 因。Zhang et al. (2002)模拟研究了东亚太平洋地 区冬季近地面臭氧的输送和光化学产生作用。 Yamaji et al. (2006)指出,春季臭氧峰值出现的时 间不同主要是由于平流层输入和洲际间的传输不同 所致。Li et al. (2007)应用区域化学模式研究了东 亚对流层低层臭氧的季节变化控制因子,发现:夏季 (6月)泰山和华山臭氧峰值主要是由人为臭氧前体 物通过活跃的光化学反应产生;而春末(5月)黄山 臭氧峰值是由于长距离输送和光化学反应共同作用 形成的。

季风是指近地面冬夏盛行风向接近相反且气候 特征明显不同的现象。东亚大陆一日本一带为副热 带季风区,冬季30°N以北盛行西北季风,以南盛行 东北季风;夏季盛行西南或东南季风(陈隆勋等, 1991:朱乾根等,1992)。近10 多年,针对东亚季风 对东亚大气污染物影响的研究已有开展。Liu et al. (2002)应用全球化学模式,研究了东亚对流层臭氧 来源的季节变化与季风输送路径、对流抬升、平流层 侵入、生物质燃烧和闪电产生的臭氧前体物的复杂 关系,结论之一是东亚近地层来自平流层的臭氧以 冬春季最强、夏季最弱。He et al. (2008)指出,东亚 季风对臭氧的季节变化具有显著影响。Kurokawa et al. (2009) 应用区域化学模式并考虑年变化的排 放源清单(Ohara et al., 2007), 模拟研究了 1981-2005年东亚近地层春季臭氧的年际变化,认为气象 场的年际差异是导致春季臭氧变化的主要原因,排 放源的年际变化影响较小。春季日本以东太平洋上 海平面气压异常,可影响东亚大陆污染气团和低纬 南向清洁海洋性气团的输送路径,且日本春季臭氧 与ENSO有一定程度的相关。Liang et al. (2005)应 用全球模式模拟了亚洲 CO 跨太平洋输送的年际变 化,建立了基于中国东北部、东北和北太平洋的海平 面气压异常的三类跨太平洋输送指数,由此可判定 日一季节一年际的亚洲污染物输送强度。Liu et al. (2009)研究发现,生物质燃烧(如东南亚秸秆焚烧 和西伯利亚森林火灾)对区域臭氧的季节变化有重 要贡献。

本文利用东亚清洁背景站近地面臭氧观测资料、NCEP/NCAR 再分析风场资料以及 GPCP (Global Precipitation Climatology Project)全球降水资料,研究 2000—2008 年东亚各地区臭氧的多年季节变化特征,重点讨论东亚太平洋地区臭氧季节和年际变化与季风环流的关系,并对控制该地区近地面臭氧的主要因子——季风输送、光化学产生和平流层输入等进行定性评估。

1 资料与方法

1.1 资料来源

2000—2008 年臭氧的月平均体积分数资料来 源于东亚酸沉降监测网(the Acid Deposition Monitoring Network in East Asia, EANET)和世界温室气 体数据中心(World Data Centre for Greenhouse Gases, WDCGG);瓦里关站多年月均臭氧资料取自文 献(得力格尔和赵玉成,2007);黄山、泰山、华山臭 氧资料由 Frontier 全球变化研究中心提供。

2000—2008 年1°×1°网格月平均1000 hPa风 场和气压资料来自 NCEP/NCAR 再分析数据集;全 球降水气候计划(Global Precipitation Climatology Project, GPCP)提供全球日平均降水资料,分辨率为 1°×1°。GPCP综合了 GPCC(Global Precipitation Climatology Center)地面雨量计的降水观测结果和 卫星遥感对降水的反演结果,能较好地反映降水的 时空分布及变化特征。

1.2 站点分布

选取的站点均为区域背景站,受局地排放源的 影响小。Happo测站设在日本中部山区,它能够反 映日本中部地区污染物的变化情况。Rishiri测站为 沿海测站。四个西太平洋岛屿测站分别位于韩国的 Cheju和日本的Oki、Hedo、Ogasawara。Cheju和 Oki测站距陆地较近,Hedo和Ogasawara测站为日 本南部太平洋上独立的岛屿,距排放源高值地区较远,仅仅受当地生活排放源的微小影响。俄罗斯的 Mondy测站位于亚洲东北偏远内陆区,处于非季风 区,其背景清洁,常被用作北半球陆地背景站。中国 瓦里关站为全球大气本底站,代表欧亚大陆腹地;临 安、泰山、黄山和华山分别代表中国东部和西部人类 活动区。表1给出了各测站的经纬度及海拔高度。

表1 各测站的经纬度及海拔高度

_

Table 1 Longitude, latitude	and a	altitude o	f moni	toring	sites
-----------------------------	-------	------------	--------	--------	-------

测站	经度	纬度	海拔高度/m
中国临安	119°44′E	30°18′N	138
中国黄山	118°15′E	30°13′N	1 836
中国泰山	117°10'E	36°25′N	1 533
中国华山	110°09'E	34°49′N	2 064
中国瓦里关	100°54′E	34°17′N	3 830
日本 Yonogunigima	123°01′E	24°28′N	30
日本 Hedo	128°15′E	26°52′N	60
日本 Oki	133°11′E	36°17′N	90
日本 Happo	137°48′E	36°42′N	1 850
日本 Ryori	141.49'E	39. 02 ' N	260
日本 Rishiri	141°12′E	45°07′N	40
俄罗斯 Mondy	101°00'E	51°40′N	2 000

1.3 资料处理及分析方法

为了分析臭氧9a平均的季节变化特征,对 2000—2008年各月臭氧体积分数做平均,得到臭氧 的气候月平均变化。太阳辐射是光化学臭氧形成的 必要条件,而云和降水会显著减弱太阳辐射,在前体物充足的条件下,可以显著减少光化学臭氧产生量(Zhu et al.,2001;Liu et al.,2009)。此外,降水对云下臭氧还有一定的清除作用。因此,本文利用GPCP月均降水资料表征月平均光化学臭氧产生条件的强弱。由NCEP/NCAR全球再分析资料的近地层风矢量场及GPCP的降水资料,可以确定季风的季节变化和年际差异,进而得出季风对不同地区臭氧体积分数变化的影响。

引入距平量,以风矢量为例。对9a各月风速 做平均,每月得到一个平均值,再用9a中第j年第i 月风速减去对应月的平均值,即得风速距平,其计算 公式为

$$\delta_{i,j}^{u} = u_{i,j} - u_{i}; \delta_{i,j}^{v} = v_{i,j} - v_{i\circ}$$
(1)

式中: $\delta_{i,j}^{u}$ 、 $\delta_{i,j}^{v}$ 分别为第*j*年第*i*月*u*、*v*的距平(单位: m/s); $u_{i,j}$ 、 $v_{i,j}$ 分别为第*j*年第*i*月*u*、*v*(单位:m/s); $\overline{u_i}$ 、 $\overline{v_i}$ 分别为9 a 第*i*月*u*、*v*的平均值(单位:m/s), 称为气候平均风速($\overline{u_i} = \sum_{j=1}^{9} u_{i,j}, \overline{v_i} = \sum_{j=1}^{9} v_{i,j}$)。 (1)式给出的是第*j*年第*i*月相对于9 a 平均的距平 值,表征该月盛行风与9 a 该月气候平均风速的 差值。

2 结果和讨论

2.1 东亚各地臭氧季节变化

东亚太平洋及沿岸地区受东亚季风环流系统的 控制,特别是东亚副热带季风子系统对其影响更大 (Zhu et al.,1986;陈隆勋等,1991),冬夏季风及其 转换期东亚副热带大气环流变化很大,由此导致不 同地区受大陆性污染气团或海洋性清洁气团的影响 差别显著。对参与大气化学反应的痕量成分而言, 太阳辐射、云和降水、STE等物理化学过程的季节 变化也是大气痕量成分季节变化的重要因素。本节 首先分析东亚太平洋各站臭氧的季节变化特征,而 东亚其他站点臭氧的季节变化将另文详细讨论,在 此仅作为比较对象而采用。

图 1 给出了东亚太平洋地区由南至北选择的 5 个代表站(Yonogunijima、Hedo、Oki、Happo、Rishiri) 以及作为比较对象的中国东部黄山、临安、泰山、华 山、青藏高原东北部瓦里关和俄罗斯 Mondy 站近地 面臭氧若干年平均的逐月变化情况。东亚酸沉降网 (EANET)和部分站有 10 a 的月平均资料,图 1 给 出了这些站的多年月均 ±1σ 的标准偏差。可以发 现,东亚太平洋各站与长江中下游的黄山、临安站的 臭氧季节变化类似,都表现为春季最高、夏季最低、 秋季有一个次峰的变化特征;其中临安比其邻近的 黄山、泰山等背景点偏低 10×10⁻⁹(体积分数)以 上,这与长三角地区人为 NOx 源强大、体积分数高, 抑制臭氧产生有关(Wang et al.,2001;杨关盈等, 2008)。纬度较低的 Yonogunijima、Hedo 站在冬季 仍维持较高体积分数,使其冬春和秋冬过渡期的臭 氧增减变化幅度不大。Mondy 站只有春季一个峰 值,从夏季至冬季臭氧体积分数都较低。而中国 35°N 附近从东至西的测站都表现出夏初(6月)最 高和冬季最低的单峰分布特征。

综上所述,东亚近地层季平均的臭氧最大值可 出现在不同的季节,东亚大部分地区与北半球背景 点观测结果一致,近地层臭氧季节变化表现为春季 最高、夏季最低、秋季一般还有次高值的特征。然 而,在东亚中纬度33~43°N,夏季有一臭氧高值带, 此高值带可延伸至亚洲内陆腹地和中东地区,这一 带状区域表现为初夏(6月)臭氧最高的特征;在东 亚20°N 以南地区则表现为冬末春初臭氧最高的特 征;中国江南、华南地区,有些年份臭氧体积分数表 现为秋季最高的特征。图2给出了利用 NAQPMS 模式(Zhu et al.,2004)计算的 1996 年东亚太平洋 近地面臭氧峰值出现的季节分布。

上述现象已被区域和全球化学输送模式模拟再现(Zhu et al.,2004;Li et al.,2007;Sudo and Akimoto,2007),东亚地区臭氧季节变化特征基本可以用东亚季风季节转换导致的污染物输送路径变化以及季节性光化学臭氧形成(与云量、降水、流场变化导致的前体物辐散辐合有关)解释;中纬度高海拔地区臭氧高值还与平流层输送和对流活动的季节性变化有关。

2.2 东亚太平洋地区近地面臭氧的季节变化

从东亚太平洋各站多年月平均臭氧体积分数 ±1σ标准偏差(图1中浅灰色阴影)可见,年际标 准偏差以春季最大、秋季次之、冬夏很小。这说明冬 夏季风转换期间,近地层流场变化较大,由此导致东 亚人为污染区臭氧及其前体污染物输送路径和强度 产生差异。流场的年际差异与各年西太平洋东亚副 热带冬夏季风建立期的差别(陈隆勋等,1991)直接 有关。在东亚季风建立的成熟期,流场较为稳定,各 年臭氧值变化不大。

由图1还可发现,低纬海洋站 Hedo 的年际变 化比中高纬 Oki 和 Rishiri 站的年际变化大。Hedo



- 图 1 东亚大气本底站臭氧体积分数(单位:10⁻⁹)的月平均值(灰色阴影表示多年月平均值的±1σ标准偏差范围;资料年份短于5 a 或仅有 1 a 的站点没有标准偏差范围)
 a. Yonogunijima; b. Hedo; c. Oki; d. Happo; e. Rishiri; f. Mondy;
 g. 黄山; h. 临安; i. 泰山; j. 华山; k. 瓦里关
- Fig. 1 The monthly mean volume fraction (units: 10^{-9}) of surface ozone over baseline sites of East Asia (the grey shadings indicate the $\pm 1\sigma$ standard deviation of monthly mean variations in all observed years, and if the data of the sites are shorter than 5 years, no standard deviation be shown) a. Yonogunijima; b. Hedo; c. Oki; d. Happo; e. Rishiri; f. Mondy; g. Mt. Huang; h. Lin'an; i. Mt. Tai; j. Mt. Hua; k. Waliguan

为典型的海洋站,相比内陆站和邻近大陆人为影响 较大的站而言,海洋站几乎无臭氧前体物(NOx、 CO、VOCs等)排放源,污染物主要来自大陆的输 送。这表明,低纬海洋站 Hedo 的年际变化显著,与 东亚中低纬季风流场年际变化显著相吻合。此外, 臭氧年际变化还与平流层输入、光化学产生条件 (云量、前体物源强变化)有关,平流层输入在春季 较强,光化学反应从春至秋季均较强,第2.3节将对 此进行详细分析。

图 3 为东亚太平洋沿岸日本 8 个观测站 10 a 平均的臭氧体积分数的月份一纬度变化(图中叠加 了测站 10 a 月平均的风矢量场)。图 3 除了体现了 前述臭氧春秋高值、夏季低值的特征外,还表现出明 显的臭氧经向变化特征。36°N 以北的中高纬测站 臭氧体积分数明显比中低纬测站高,这主要是由于 中高纬测站多邻近(在)日本大陆,受人为源直接影



- 图2 区域化学模式模拟的东亚地区 1996 年月平均臭氧 体积分数达峰值的季节(绿色:春季;红色:夏季; 橙色:秋季;白色:冬季)
- Fig. 2 The season in which the monthly mean ozone reaches the highest peak over East Asia in 1996, simulated by the regional chemical model(green:spring; red;summer;orange;autumn;white;winter)



- 图3 东亚太平洋沿岸日本8个观测站9a平均的臭氧体 积分数(单位:10⁻⁹)及风矢量(单位:m/s)的月 份—纬度变化
- Fig. 3 Latitude-month cross-section of the 9-yr averaged surface ozone volume fraction (10^{-9}) and wind vector (m/s) observed by the eight Japanese sites over East Asia-Pacific region

响大,光化学过程活跃。此外,37.7°N的 Happo 站 海拔较高(1850m),春季平流层输送可能有更大的 贡献,但 Kaiji et al. (1998)详细分析了该站资料后 认为,Happo 高臭氧主要是由人为污染和长距离输 送造成的,与平流层侵入关系较小。

由测站月平均风矢量可见,夏季各站主要受偏 南或偏东气流控制,结合各站地理位置可以发现,气 流皆来自海洋,海洋性气团的臭氧体积分数很低,这 就是夏季臭氧低值的原因。冬季中低纬盛行偏北 风,各站受大陆性污染气团控制,尽管此时光化学反 应弱,但各站臭氧体积分数并不低,在 30°N 以南冬 季臭氧体积分数往往较高。冬季中高纬主要为偏西 北和西风,各站受大陆性气团影响亦较大。春秋季 各站风矢方向随纬度差异较大,冬至春季,中低纬由 偏北风先转为偏东北风,再转为偏东南风。3-4月 大气环流仍维持冬季环流特征,气团来源仍为大陆 性,但此时光化学反应得到加强,臭氧体积分数升 高:4-5月偏东、偏南海洋性气流盛行,臭氧体积分 数降低。冬至春季,中高纬由偏西风先转为偏西南 风,再转为偏南风,随着春季光化学反应的加强,臭 氧体积分数在4—5月达最高。5—6月偏东南的海 洋性气流盛行,臭氧值降低。图3中风矢量方向还 需要结合水平环流场才可以分析气团的来向。春季 太阳辐射加强是形成高体积分数臭氧的必要条件, 但如果测站气团来自人为污染的大陆地区,则臭氧 体积分数必然增高。由图1和图3还可发现,尽管 各站臭氧体积分数皆在春季达全年峰值,但发生时 间略有差异,30°N以南测站在3月达到极值,中纬 度测站在4-5月达到极值,而40°N以北测站在4 月达到极值。Tanimoto et al. (2005)首先注意并分 析了东亚太平洋各站春季臭氧高值的纬向差异,认 为春季亚洲大陆污染物输出路径的纬向差异和季节 性的光化学反应耦合是此特征的原因。本文的重点 是利用观测资料分析各站的臭氧特征,而有关定量 分析长距离输送和光化学反应的作用可参见有关模 拟研究(Zhu et al., 2004; Tanimoto et al., 2005; Li et al.,2007)_°

2.3 平流层输入作用

在 Brewer-Dobson 经向环流 (Holton et al., 1995)的作用下,空气在赤道地区上升进入平流层 到中高纬度地区下沉,构成了平流层至对流层的大 尺度物质交换。因平流层臭氧体积分数远高于对流 层,因此长期以来人们认为平流层是对流层臭氧的 主要来源。实际上,由于对流层顶较稳定,STE 物 质交换过程并不很容易发生。近 30 多年的观测研 究特别是大气化学数值模式的研究,支持了对流层 内发生的光化学反应才是对流层臭氧主要来源的结 论。然而,STE 在不同天气过程和季节下的差异较 大,比如:其时空分布极不均匀,随高度、纬度变化很 大。因此,评估不同 STE 过程及其时空分布差异, 仍是对流层臭氧来源研究的重要方面。 根据世界气象组织(WMO)定义:PV(potential vorticity,位势涡度)大于 1.6 PVU(1 PVU = 10^{-6} m² · s⁻¹ · K · kg⁻¹)可定义为动力对流层顶。由于 对流层顶附近副热带高空急流位置和强度(Langford,1999)及其位涡值高低可以反映平流层下部与 对流层上部的空气质量交换强度,所以本节重点分

析东亚西北太平洋上空副热带高空急流和位涡的强度及位置的季节变化,以此讨论平流层向下输送对 东亚太平洋臭氧季节变化的可能影响。

519

由图 4 可见,同一等压面上由低纬至高纬,各月 PV 都是由小变大,且在 150~300 hPa 层,30~35°N 都存在 PV 经向梯度的极大值(夏季在 35~40°N),





Fig. 4 Latitude-pressure cross-sections of the 9-yr averaged upper air jet stream, potential vorticity and wind vectors of *v*-*w* along 130°E in (a) January, (b) March, (c) April, (d) May, (e) July and (f) October from 2000 to 2008 (the black isoline is the upper air jet stream with wind speed higher than 30 m/s; shading is the potential vorticity and 2 PVU is indicated by thick white line $(1 \text{ PVU} = 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{K} \cdot \text{kg}^{-1}; 2 \text{ PVU}$ could represent the dynamic tropopause in extratropical regions); the vertical wind is multiplied by factor of 1 000, units; m/s)

该 PV 梯度高值往往对应对流层顶折叠、对流层顶 断裂、切断低压等过程,大量的穿越对流层顶的空气 交换是通过天气尺度和中尺度过程完成的(Holton et al., 1995), 即该 PV 梯度高值区对应 STE 极大值 区。由各月 PV 和急流强度、位置的月变化可见,冬 季 PV 经向梯度大、高 PV 值高度低(如图中 2 PVU 等值线),急流强度大、位置略偏南。由高空急流的 月变化可见,由冬至夏,急流核位置由30°N向35°N 略北移动,位置变化不十分显著,但急流强度却明显 减弱,到7月大于30 m/s的急流核消失。由3-7 月 PV 的变化可见,对流层上部、平流层下部经向梯 度减小.2 PVU 高度抬升(2 PVU 等值线大致对应 热带外地区动力对流层顶高度),而秋季(10月)PV 经向分布和 2 PVU 高度又恢复到与初春 3 月类似, 反映了对流层顶高度经向分布的季节变化和 STE 高值发生区的季节变化特征。

以上急流位置、强度以及 PV 经向分布说明,冬季和初春是 STE 的高值期,而春末夏季 STE 在东亚西太平洋地区较弱。由图4 中经向一垂直风矢的纬度一高度分布可见,1—3 月在 35°N 附近、平流层下层到对流层大部(150~800 hPa)有一明显的下沉气流(垂直风速已扩大至1 000 倍),也说明冬季—初春 30~35°N 附近为 STE 高值区。

2.4 年际变化

由图1可知,各站臭氧季节变化的规律性很强, 但由于东亚冬夏季风存在年际变化,如季风的强弱 变化、夏季风爆发时间和推进的差异、冬季风开始和 盛行期的差异等季风特征量的年际差异,所以东亚 近地面臭氧受季风影响,也表现出了年际变化特征, 特别是在春季和秋季的冬夏季风转换过渡期间。由 图1还可知,处于非季风区的 Mondy 站的臭氧呈现 出春季达到峰值的特征,但无秋季峰值,而夏季则为 全年最低。根据 Wild and Akimoto(2001)的模拟研 究和 Pochanart et al. (2003)的观测分析,该近地层 臭氧季节变化主要由上游地区输送控制,春季最大 与北半球大部分地区类似,夏季最低则可能与夏季 植被最茂盛、臭氧干沉降量最大有关。Ohara et al. (2007)建立了 1980—2020 年东亚大气污染物排放 清单,表明东亚 NOx、VOCs、CO 等臭氧前体物排放 以增长趋势为主,而本文观测数据表明,各背景站臭 氧年际变化并非随着源的增长而增长,而是存在年 际波动。本节重点讨论臭氧年际变化与东亚季风的 关系。

图 5 给出了西北太平洋测站 2000—2008 年月 平均近地层臭氧体积分数距平随纬度的变化。可 见,月平均臭氧表现出一定的年际变化特征,一般中 低纬臭氧距平变化大于中纬和中高纬臭氧距平变 化。其中 2004 和 2005 年全年 25 ~ 30°N 附近臭氧 为负距平,特别在 2004 年春季达 - 10 × 10⁻⁹;而 2000、2001 和 2008 年春季臭氧距平略高,约为 3 ×10⁻⁹。

为了讨论季风年际变异对近地面臭氧的影响, 图 6 给出了 2000—2008 年的多年 5 月平均风场和 降水场以及 2004 和 2008 年 5 月风距平场和降水距 平场。西北太平洋及其沿岸的东亚地区受东亚副热 带季风影响显著,一般 5 月中旬前后东亚副热带夏 季风环流即已建立(陈隆勋等,1991),实际上春季 3、4 月副热带夏季风特征已有所表现。

由图 6a 可见,东亚冬季风环流特征已消失, 130°E 以东已为副热带高压控制,低纬度测站为偏 东风、中纬度测站为东南风、高纬度测站为偏南风, 降水中心在华南至日本南部及其附近海面上。对照



图 5 东亚太平洋测站 2000—2008 年月平均近地层臭氧体积分数距平随纬度的变化(图中由低纬至高纬的红色长虚 线分别表示 Hedo、Oki、Rishiri 和 Ryori 测站的纬度;单位:10⁻⁹)

Fig. 5 The latitude dependence of monthly surface ozone volume fraction anomaly over East Asia-Pacific region from 2000 to 2008 (the red long dash lines indicate of latitudes of Hedo, Oki, Rishiri and Ryori; units; 10^{-9})





- 图 6 2000—2008 年的多年 5 月平均近地层风场和降水分布(a)、以及 2004 年(b)和 2008 年(c)5 月近 地层风距平场和降水距平场(风矢量单位:m/s;降水单位:mm/d;图 6a 中黑色等值线为总云覆盖 比,单位:%)
- Fig. 6 (a) The 9-yr averaged wind(m/s) and precipitation(mm/d) fields in May from 2000 to 2008, and the wind anomaly(m/s) and precipitation anomaly(mm/d) fields in May of (b)2004 and (c)2008 (the black isoline is total cloud cover ratio with the unit of % in Fig. 6a)

各测站臭氧的季节变化可知,5月臭氧体积分数显 著减小,这是由于偏东偏南的清洁海洋性气流带来 的低臭氧含量气团所致。由图 6b 可见,在 120°E 以 东、40°N 以南地区为一距平反气旋,说明 2004 年5 月副热带夏季风爆发较早且在5月较强,雨带位置 异常偏北,向中国长江中下游至日本中南部一线移 动。对照图 5 可知,2004 年春季爆发较早和较强的 副热带夏季风,将低臭氧的海洋性气团输送至测站, 导致该年春季臭氧体积分数出现极低值。由图 6c 可见,在120°E以东、40°N以南地区为一距平气旋, 说明 2008 年 5 月副热带夏季风爆发较晚日在 5 月 较弱,东亚大部地区降水明显偏少。对照图5可知, 由于2008年春季副热带夏季风爆发较晚和较弱,低 臭氧的海洋性气团输送较弱,测站周边还受冬春季 大陆污染气团影响较大,因而导致该年春季臭氧体 积分数较高。

除了 2004 和 2008 年,其他年春季也有类似特征,但也并非每个月的臭氧年际变化都可以用上述规律进行解释,说明臭氧作为二次气体,其变异特征还受其他因子影响。季风环流输送的年际变化对臭氧体积分数的影响,在中低纬表现得非常明显。中高纬度臭氧距平也表现出了年际变化特征,但与中低纬度海洋测站相比,季风环流输送年际变化以及光化学和前体物源变化的综合影响更加复杂,讨论中低纬度海洋测站得到的结论并不总是适用,有待高时间分辨率的观测数据和化学输送模式作进一步研究。不可否认,臭氧前体物源的变化(Tanimoto, 2009)以及第2.3节讨论的平流层输入的年际差异也是导致臭氧年际变化的因子之一,有待进一步评估。

3 结论

本文利用东亚清洁背景站近地面臭氧观测资

料,结合风场和降水资料,给出了东亚各地区臭氧多 年的季节变化特征,重点讨论了东亚太平洋地区臭 氧季节和年际变化与季风的关系,得到如下结论:

1)东亚近地层臭氧的月平均最大值可出现在 不同季节,东亚大部分地区与北半球背景点观测结 果一致,近地层臭氧季节变化表现为春季最高、夏季 最低、秋季次高的特征。在东亚中纬度 33~43°N, 夏季有一臭氧高值带,此高值带可延伸至亚洲内陆 腹地和中东地区,该带状区域臭氧表现为初夏(6 月)最高;在东亚 20°N 以南地区臭氧则表现为冬 末、春初最高;中国江南、华南地区有些年份的臭氧 体积分数表现为秋季最高的特征。

2)东亚太平洋地区沿岸近地面臭氧季节变化 主要受东亚冬夏季风环流季节变化的影响,春季是 冬季风向夏季风的过渡期,亚洲大陆污染物向西北 太平洋输送明显,同时由于太阳辐射加强,导致该地 区春季臭氧出现峰值。该地区不同纬度上春季峰值 出现时间的差异可用亚洲大陆春季不同时期污染物 输送路径存在差异来解释。

3)分析东亚太平洋沿岸对流层顶附近位势涡 度、高空急流和垂直环流的季节变化可知,位涡大于 2 PVU 的高值区在冬季和初春高度最低、经向梯度 最大,且高空急流最强、位置偏南,冬季和2—4 月中 上对流层有下沉气流,说明冬春季可能是平流层向 对流层输送的最强期,对近地层臭氧的贡献最大。 初夏—秋季(5—11月)高空急流、位涡明显减弱,垂 直环流不利于平流层向对流层输送,对近地层臭氧 的贡献较小。

4)东亚西北太平洋地区夏季风爆发时间和强 度以及季风环流型的年际差异,是导致春、夏季该地 区臭氧年际变化的主要原因。季风降水和云带位 置、臭氧及其前体物的输送和辐散辐合、平流层一对 流层交换是造成臭氧年际变化的其他原因。

致谢:谨以此文献给我的父亲朱乾根教授。本文是 结合我大气化学研究与父亲专长的天气学和季风研 究的一次初步尝试。父亲离我愈远,形象愈显高大, 思想愈显深邃。东亚酸沉降网(EANET)、世界温室 气体数据中心(WDCGG)、日本 Frontier 全球变化 研究中心 H. Akimoto 先生和 P. Pochanart 博士、中 国大气本底基准观象台得力格尔研究员、南京信息 工程大学樊曙先教授提供了臭氧观测数据;NECP/ NCAR 提供了气象场资料;全球降水气候计划 (GPCP)提供了降水资料。谨致谢忱!

参考文献:

- 陈隆勋,朱乾根,罗会邦,等.1991.东亚季风[M].北京:气象出版社.
- 得力格尔,赵玉成.2007.青海省瓦里关地区近十年来大气本底化学 组分的变化特征[J].环境化学,26(2):241-244.
- 杨关盈,樊曙先,汤洁,等.2008.临安近地面臭氧变化特征分析[J]. 环境科学研究,21(3):31-35.
- 周秀骥.2004.长江三角洲低层大气与生态系统相互作用研究[M]. 北京:气象出版社.
- 朱乾根,林锦瑞,寿绍文,等.1992.天气学原理和方法[M].北京:气象出版社.
- Akimoto H. 2003. Global air quality and pollution [J]. Science, 302: 1716-1719. doi:10.1126/science.1092666.
- Grewe V. 2006. The origin of ozone [J]. Atmos Chem Phys, 6: 1495-1511.
- 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 West Pacific region [J]. Atmos Chem Phys, 8:7543-7555.
- Holton J R, Haynes P H, McIntyre M E, et al. 1995. Stratosphere troposphere exchange[J]. Rev Geophys, 33:403-439.
- IPCC. 2007. Climate Change 2007: The Physical Science Basis [C]// Solomon S, Qin D, Manning M, et al. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. New York: Cambridge University Press.
- Kajii Y, Someno K, Tanimoto H, et al. 1998. Evidence for the seasonal variation of photochemical activity of tropospheric ozone; Continuous observation of ozone and CO at Happo, Japan [J]. Geophys Res Lett, 25(18):3505-3508. doi:10.1029/98GL02602.
- Kurokawa J, Ohara T, Uno I, et al. 2009. Influence of meteorological variability on interannual variations of springtime boundary layer ozone over Japan during 1981—2005 [J]. Atmos Chem Phys, 9: 6287-6304.
- Langford A O. 1999. Stratosphere-troposphere exchange at the subtropical jet: Contribution to the tropospheric ozone budget at midlatitudes [J]. Geophys Res Lett, 26 (16): 2449-2452. doi: 10.1029/1999GL900556.
- Lelieveld J, Dentener F J. 2000. What controls tropospheric ozone? [J]. J Geophys Res, 105 (D3): 3531-3551. doi: 10.1029/1999JD901011.
- Levy H, Mahlman J, Moxim W J, et al. 1985. Tropospheric ozone: The role of transport[J]. J Geophys Res, 90:3753-3772.
- Li J, Wang Z, Akimoto H, et al. 2007. Modeling study of ozone seasonal cycle in lower troposphere over east Asia[J]. J Geophys Res, 112, D22S25. doi:10.1029/2006JD008209.
- Liang Q, Jaeglé L, Wallace J M. 2005. Meteorological indices for Asian outflow and transpacific transport on daily to interannual timescales [J]. J Geophys Res, 110, D18308. doi:10.1029/2005JD005788.
- Liu H, 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. doi:

10. 1029/2001 JD002005.

- Liu H, Crawford J H, Considine D B, et al. 2009. Sensitivity of photolysis frequencies and key tropospheric oxidants in a global model to cloud vertical distributions and optical properties [J]. J Geophys Res, 114, D10305. doi:10.1029/2008JD011503.
- Logan J A. 1985. Tropospheric ozone: Seasonal behavior, trends and anthropogenic influence [J]. J Geophys Res, 90(10): 463-482.
- Mauzerall D L, Sultan B, Kim N, et al. 2005. NOx emissions from large point sources: Variability in ozone production, resulting health damages and economic costs[J]. Atmos Environ, 39:2851-2866.
- Monks P S. 2000. A review of the observations and origins of the spring ozone maximum [J]. Atmos Environ, 34:3545-3561.
- Ohara T, Akimoto H, Kurokawa J, et al. 2007. An Asian emission inventory of anthropogenic emission sources for the period 1980—2020 [J]. Atmos Chem Phys, 7:4419-4444.
- Pochanart P, Akimoto H, Kinjo Y, et al. 2002. Surface ozone at four remote island sites and the preliminary assessment of the exceedances of its critical level in Japan [J]. Atmos Environ, 36;4235-4250.
- Pochanart P, Akimoto H, Kajii Y, et al. 2003. Regional background o-zone and carbon monoxide variations in remote Siberia/East Asia
 [J]. J Geophys Res, 108 (D1), 4028. doi: 10.1029/2001JD001412.
- Stevenson D S, Dentener F J, Schultz M G, et al. ,2006. Multimodel ensemble simulations of present-day and near-future tropospheric ozone [J]. J Geophys Res, 111, D08301. doi: 10.1029/2005JD006338.
- Sudo K, Akimoto H. 2007. Global source attribution of tropospheric ozone:Long-range transport from various source regions[J]. J Geophys Res, 112, D12302. doi:10.1029/2006JD007992.
- Tanimoto H. 2009. Increase in springtime tropospheric ozone at a mountainous site in Japan for the period 1998—2006 [J]. Atmos Environ,43:1358-1363. doi:10. 1016/j. atmosenv. 2008. 12. 006.
- Tanimoto H, Sawa Y, Matsueda H, et al. 2005. Significant latitudinal gradient in the surface ozone spring maximum over East Asia[J]. Geophys Res Lett, 32, L21805. doi:10.1029/2005GL023514.

- Thompson A M. 1992. The oxidizing capacity of the earth's atmosphere: Probable past and future changes [J]. Science, 256: 1157-1165.
- Vingarzan R. 2004. A review of surface ozone background levels and trends[J]. Atmospheric Environment, 38:3431-3442.
- Wang T, Vincent T F, Cheung M A, et al. 2001. Ozone and related gaseous pollutants in the boundary layer of eastern China: Overview of the recent measurements at a rural site[J]. Geophys Res Lett, 28: 2373-2376.
- Wild O. 2007. Modelling the global tropospheric ozone budget: Exploring the variability in current models [J]. Atmos Chem Phys, 7: 2643-2660.
- Wild O, Akimoto H. 2001. Intercontinental transport of ozone and its precursors in a three-dimensional global CTM [J]. J Geophys Res, 106;27729-27744. doi:10.1029/2000JD000123.
- Yamaji K, Ohara T, Uno I, et al. 2006. Analysis of the seasonal variation of ozone in the boundary layer in East Asia using the Community Multi-scale Air Quality model: What controls surface ozone levels over Japan? [J]. Atmos Environ, 40:1856-1868.
- Zhang M, Uno I, Sugata S, et al. 2002. Numerical study of boundary layer ozone transport and photochemical production in East Asia in the wintertime [J]. Geophys Res Lett, 29 (11), 1545. doi: 10.1029/2001GL014368.
- Zhu B, Xiao H, Huang M, et al. 2001. Numerical study of cloud effects on tropospheric ozone [J]. Water, Air and Soil Pollution, 129:199-216.
- Zhu B, Akimoto H, Wang Z, et al. 2004. Why does surface ozone peak in summertime at Waliguan? [J]. Geophys Res Lett, 31, L17104. doi:10.1029/2004GL020609.
- Zhu Qiangen, He Jinhai, Wang Panxing. 1986. A study of circulation differences between East-Asian and Indian summer monsoons with their interaction [J]. Adv Atmos Sci, 3(4):466-477.

(责任编辑:倪东鸿)