

中国对流层臭氧的时空变化及影响因素研究

侯鑫, 张霄羽*, 张红, 郭淏淏, 荀楠楠, 王善婷

山西大学环境与资源学院, 山西 太原 030006

摘要: 近年来臭氧(O₃)浓度的升高给人类健康和气候变化带来了许多负面影响,因此迫切需要认识对流层O₃柱浓度的时空演变特征及影响因素。本研究基于OMI-MLS数据,分析了2005—2020年我国对流层O₃柱浓度的时空分布特征及变化趋势,采用随机森林模型量化了我国对流层O₃柱浓度影响因子的重要性。结果表明:①在月尺度上,我国OMI-MLS对流层O₃柱浓度与站点近地面O₃浓度显著相关,87.81%站点的近地面O₃浓度与OMI-MLS对流层O₃柱浓度的皮尔逊相关系数大于0.50($P<0.05$)。在季尺度上,我国OMI-MLS对流层O₃柱浓度与站点近地面O₃浓度在春、秋两季相关性较高,在夏、冬两季相关性较差。②我国对流层O₃柱浓度多年平均值为34.42 DU,整体呈东高西低的分布格局。2005—2020年我国对流层O₃柱浓度呈波动上升的趋势(0.228 DU/a),但各地区对流层O₃柱浓度的年际变化存在差异,华南地区的对流层O₃柱浓度增速(0.272 DU/a)最快,西南地区增速(0.209 DU/a)最慢。③我国对流层O₃柱浓度季节性变化明显,表现为夏季>春季>秋季>冬季,并且对流层O₃柱浓度的季节变化趋势存在差异,对流层O₃柱浓度在夏季增速(0.265 DU/a)最快,春季、秋季(均为0.217 DU/a)次之,冬季(0.213 DU/a)最慢。④对流层O₃柱浓度年际和季节变化的影响因子在重要性排序上存在差异,总体上,气象因子对我国对流层O₃柱浓度的影响程度最大,排放因子的影响程度较小。研究显示,我国对流层O₃柱浓度的时空分布存在显著差异,形成该时空分布格局的影响因子不同。

关键词: 对流层O₃柱浓度;时空分布;季节变化;影响因子;随机森林

中图分类号: X51

文章编号: 1001-6929(2024)09-1911-09

文献标志码: A

DOI: 10.13198/j.issn.1001-6929.2024.07.11

Spatiotemporal Dynamics and Driving Factors of Tropospheric Ozone in China

HOU Xin, ZHANG Xiaoyu*, ZHANG Hong, GUO Haohao, XUN Nannan, WANG Shanting

Department of Environment and Resources, Shanxi University, Taiyuan 030006, China

Abstract: In recent years, increased ozone concentrations had many negative impacts on human health and climate change. Therefore, there is an urgent need to understand the spatiotemporal changes in tropospheric ozone column concentration and its influencing factors. Based on OMI-MLS satellite data, this study analyzed the distribution characteristics and temporal trends of tropospheric ozone column concentration from 2005 to 2020. The random forest model was used to further identify the contributions of factors affecting tropospheric ozone column concentration in China. The results showed that there was a strong agreement between the OMI-MLS tropospheric O₃ column concentration and the surface ozone concentration from the sites in China at the monthly scale, with the Pearson correlation coefficient greater than 0.50 ($P<0.05$) for 87.81% of the sites. At a seasonal scale, the correlation between OMI-MLS data and ground-based data in China was higher in spring and autumn, but weaker in summer and winter. There were significant spatial changes in multi-year average ozone column concentration, showing a pattern of high in the east and low in the west. From 2005 to 2020, the ozone concentration in China showed a fluctuating upward trend, with a growth rate of 0.228 DU/a. However, the interannual variations of tropospheric O₃ column concentration exhibited the remarkable regional difference, with the fastest growth rate in South China (0.272 DU/a) and the slowest in Southwest China (0.209 DU/a). The seasonal variation in ozone column concentration was obvious, with the highest value in summer, followed by spring, autumn, and winter. In addition, the growth rate of ozone column concentration changed with seasons, with the fastest growth rate in summer (0.265 DU/a), followed by spring and autumn (both 0.217 DU/a), and the slowest growth rate in winter (0.213 DU/a). Factors influencing the interannual and seasonal variations of tropospheric O₃ column concentration varied in

收稿日期: 2024-03-10 修订日期: 2024-07-09

作者简介: 侯鑫(1999-),女,山西晋中人, hxx202223907006@163.com

* 责任作者: 张霄羽(1973-),女,山西临汾人,教授,博士,博导,主要从事地理信息系统应用研究, zhang_xyhz@sxu.edu.cn

基金项目: 国家自然科学基金项目(No.41871193)

Supported by National Natural Science Foundation of China(No.41871193)

their importance. Overall, meteorological factors had the greatest influence on tropospheric O₃ column concentration in China, while emission factors had a relatively smaller impact. The results show that there are significant differences in the spatiotemporal distribution characteristics of tropospheric ozone column concentration in China, and the influencing factors that cause these differences are different.

Keywords: tropospheric O₃ column concentration; spatial and temporal distribution; seasonal variation; influencing factors; random forest

臭氧 (O₃) 是大气中的微量气体, 绝大部分 O₃ 分布在平流层, 吸收太阳的紫外辐射, 使生物免受其伤害, 而对对流层 O₃ 占 10% 左右^[1-2]。对流层 O₃ 浓度的高低会影响人体健康, 如果长期暴露在高浓度 O₃ 环境中, 呼吸道感染的发病率将会上升^[3]; 对流层 O₃ 浓度的升高也会抑制植物的光合作用, 进一步影响生态系统, 导致农作物减产^[4]。对流层 O₃ 也是一种重要的温室气体, IPCC 第五次报告指出, 在 1750—2011 年对流层 O₃ 的全球平均辐射强迫为 (0.4±0.2)W/m^{2[5]}。影响对流层 O₃ 浓度的因素极其复杂, 大气中一氧化碳、挥发性有机化合物、氮氧化物及含氧有机物等前体物之间的光化学反应、平流层 O₃ 的垂直输送、不同区域污染物的水平输送以及经济发展过程中产生的排放物都会使对流层 O₃ 含量增加^[6-7]。因此, 及时准确地掌握大范围尺度的对流层 O₃ 时空分布及其演变特征, 对解决 O₃ 污染问题具有重要意义。

目前, 对 O₃ 的监测主要通过地面和卫星两种平台来进行。地面监测数据的时序性和稳定性好, 但空间分布不均匀, 卫星遥感弥补了地面观测站点空间代表性不足的问题, 具有大范围、全天候观测等优势^[8-9]。国内外学者基于臭氧检测仪 (OMI)、微波测深仪 (MLS)、臭氧垂直探测仪 (SBUS) 等遥感数据, 对大气 O₃ 浓度变化及影响因素开展了研究。Zhu 等^[10] 发现, 中国对流层 O₃ 浓度自东北向东南递减, 且西南地区对流层 O₃ 柱浓度与气温、风场、植被覆盖度呈显著正相关。庄立跃等^[11] 结合 MODIS 土地覆盖类型数据发现, 珠江三角洲的发达区主要为 VOCs 控制区, 较发达区主要为协同控制区, 欠发达区为 NO_x 控制区。Chen 等^[12] 发现, 华南地区对流层 O₃ 浓度呈显著上升趋势, 自然因素的贡献率为 44.4%。李洋等^[13] 基于 O₃ 探空资料和再分析产品研究发现, 2003—2013 年地表排放的污染物造成的对流层 O₃ 增加占北京市 O₃ 增加量的 60%。

我国国土面积广阔, 地形气候复杂, 区域发展不平衡, O₃ 污染具有不同的时空分布特征, 影响因素也不同。因此, 本研究基于 OMI-MLS 数据, 分析中国不同区域对流层 O₃ 柱浓度的时空变化, 采用随机森林模型探讨地形、气象、植被、经济、排放等因子对 O₃ 柱浓度的年际和季节变化的影响程度, 以期

制定有效的 O₃ 污染防治方案提供理论依据。

1 研究区域与方法

1.1 研究区概况

我国位于欧亚大陆东部, 面积广袤, 地形、气候、经济发展等存在明显的区域特征。为了更好地探讨我国不同区域对流层 O₃ 柱浓度的变化, 根据地理和经济特征, 把我国分为 7 个区域, 分别为华东地区、华北地区、华中地区、华南地区、西南地区、西北地区和东北地区^[14-15]。

1.2 数据来源与处理

1.2.1 对流层 O₃ 柱浓度数据

对流层 O₃ 柱浓度数据来自美国国家航空航天局戈达德太空飞行中心, 该数据集以搭载在 Aura 卫星上的臭氧监测仪 (OMI) 探测到的大气 O₃ 柱总量和微波临边探测器 (MLS) 探测到的平流层以上的 O₃ 廓线数据为基础, 通过残差法得到月平均对流层 O₃ 柱浓度^[16-18], 数据单位为 DU, 空间分辨率为 1.00°×1.25°, 目前更新到 2020 年 12 月, 本研究选用了 2005—2020 年的数据来研究对流层 O₃ 时空分布特征。

1.2.2 近地面 O₃ 监测数据

近地面 O₃ 监测数据来自中国环境监测总站提供的 O₃ 小时浓度 (不包括港澳台地区数据), 由于网站上可获得的数据时间尺度较短, 本文选取 2014 年 5 月 1 日—2020 年 12 月 31 日每小时站点 O₃ 监测浓度, 计算月均 O₃ 浓度, 对 OMI-MLS 对流层 O₃ 柱浓度数据进行验证。

1.2.3 影响因子数据

SRTM 高程数据由美国国家航空航天局 (NASA) 和国防部国家测绘局 (NIMA) 联合测量, 本研究使用的高程数据空间分辨率为 90 m×90 m。气象数据来自欧洲中期天气预报中心 (ECMWF) 发布的 ERA5 再分析月均数据集, 研究中对温度、降水、边界层高度、气压、云量和太阳辐射这 6 类数据进行下载, 时间范围均为 2005 年 1 月—2020 年 12 月, 空间分辨率为 0.25°×0.25°。植被数据来自美国 NASA 发布的 MOD13A3 数据集, 该数据集提供了逐月归一化植被指数 (NDVI), 本研究使用了 2005—2020 年数据, 空间分辨率为 1 km×1 km。夜间灯光数据来自 HARVARD Dataverse 发布的长时序夜间灯光数据^[19], 用来衡量

地区经济发展状况, 时间范围为 2005—2020 年, 空间分辨率为 500 m×500 m。污染物排放数据来自清华大学开发的中国多分辨率排放清单模型^[20-21], 研究中

对 NO_x、VOCs 以及 PM_{2.5} 的年度和月度排放数据进行下载, 时间范围为 2005—2020 年, 空间分辨率为 0.25°×0.25°。本研究采用的数据信息如表 1 所示。

表 1 数据来源

Table 1 Data sources

数据类型	数据名称	数据来源	空间分辨率	时间序列
卫星数据	对流层 O ₃ 柱浓度	https://acd-ext.gsfc.nasa.gov	1.00°×1.25°	2005—2020年
站点数据	近地面 O ₃ 浓度	https://www.resdc.cn		2014年5月—2020年12月
地形因子	高程	http://srtm.csi.cgiar.org/srtmdata	90 m×90 m	
气象因子	温度	https://cds.climate.copernicus.eu	0.25°×0.25°	2005—2020年
	降水	https://cds.climate.copernicus.eu	0.25°×0.25°	
	边界层高度	https://cds.climate.copernicus.eu	0.25°×0.25°	
	气压	https://cds.climate.copernicus.eu	0.25°×0.25°	
	云量	https://cds.climate.copernicus.eu	0.25°×0.25°	
	太阳辐射	https://cds.climate.copernicus.eu	0.25°×0.25°	
植被因子	归一化植被指数	https://search.earthdata.nasa.gov/search	1 km×1 km	2005—2020年
经济因子	夜间灯光	https://dataverse.harvard.edu	500 m×500 m	2005—2020年
排放因子	NO _x 排放量	http://meicmodel.org.cn	0.25°×0.25°	2005—2020年
	VOCs排放量	http://meicmodel.org.cn	0.25°×0.25°	
	PM _{2.5} 排放量	http://meicmodel.org.cn	0.25°×0.25°	

1.2.4 数据处理

首先利用 Matlab 软件将 OMI-MLS 对流层 O₃ 柱浓度数据、气象、植被以及排放数据统一转换为 TIF 格式, 便于后续的影响因子分析, 然后计算了这些数据的年均值及季均值, 最后将对流层 O₃ 柱浓度数据、气象、植被、地形、经济以及排放数据通过双线性内插法统一重采样为 0.25°×0.25°的空间分辨率。研究对流层 O₃ 柱浓度的影响因素时, 以对流层 O₃ 柱浓度位置及时间信息为参考, 提取了相同时间、相同位置的影响因子值, 如果某一影响因子数据缺失, 进行影响因子分析时, 该位置所有相应数据不参与计算。

1.3 研究方法

1.3.1 相关分析

采用皮尔逊相关系数计算站点近地面 O₃ 浓度与 OMI-MLS 对流层 O₃ 柱浓度之间的相关性, 计算公式:

$$r = \frac{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})(y_i - \bar{y})}{\sqrt{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2 \sum_{i=1}^n (y_i - \bar{y})^2}} \quad (1)$$

式中: r 为每个站点的近地面 O₃ 浓度与 OMI-MLS 对流层 O₃ 柱浓度的皮尔逊相关系数; x_i 为 i 时刻站点近地面 O₃ 浓度, $\mu\text{g}/\text{m}^3$; y_i 为 i 时刻 OMI-MLS 对流层 O₃ 柱浓度, DU; \bar{x} 为站点近地面 O₃ 浓度平均值, $\mu\text{g}/\text{m}^3$; \bar{y} 为 OMI-MLS 对流层 O₃ 柱浓度平均值, DU。 $r > 0$ 表

示正相关, $r < 0$ 表示负相关, r 绝对值越接近 1, 表明二者的相关性越强。

1.3.2 趋势分析

采用对流层 O₃ 柱浓度随时间变化的回归系数来描述对流层 O₃ 柱浓度的变化趋势, 计算公式:

$$y = at + \beta \quad (2)$$

式中: y 为对流层 O₃ 柱浓度, DU; t 为年份 (2005—2020 年); a 为回归系数, 表示对流层 O₃ 柱浓度的增速; β 为截距。如果 $a > 0$, 表明对流层 O₃ 柱浓度呈增长趋势, 反之呈下降趋势。

1.3.3 随机森林模型

随机森林是由 Breiman^[22] 提出的一种集成机器学习算法, 利用多棵决策树对样本进行训练并用于解决分类或回归预测问题, 目前常用来进行聚类与回归分析, 同时也可以进行影响因素重要性评估。本研究将地形、气象、植被、经济及排放因子作为解释变量, 对流层 O₃ 柱浓度作为因变量, 采用随机森林模型对影响因子进行重要性排序, 从而揭示影响对流层 O₃ 柱浓度的主导因子。

2 结果与讨论

2.1 OMI-MLS 对流层 O₃ 柱浓度与站点近地面 O₃ 浓度的验证

为了探讨 OMI-MLS 对流层 O₃ 柱浓度数据能否说明近地面 O₃ 浓度的变化, 本研究基于站点近地面

O₃ 浓度对 OMI-MLS 对流层 O₃ 柱浓度进行了准确性验证。在研究过程中,基于全国 1 528 个监测站点的地理坐标提取了 2014 年 5 月—2020 年 12 月各站点对应位置的 OMI-MLS 对流层 O₃ 柱浓度,分别从月尺度与季节尺度的角度,对 1 528 个站点近地面 O₃ 浓度与 OMI-MLS 对流层 O₃ 柱浓度进行了皮尔逊相关分析。在月尺度的验证中,2014—2020 年我国 OMI-MLS 对流层 O₃ 柱浓度与站点近地面 O₃ 浓度显著相关,87.81% 的站点近地面 O₃ 浓度与 OMI-MLS 对流层 O₃ 柱浓度的皮尔逊相关系数大于 0.50 ($P < 0.05$),说明 OMI-MLS 对流层 O₃ 柱浓度的变化趋势可以近似代表近地面 O₃ 浓度的变化趋势。不同季节 OMI-MLS 对流层 O₃ 柱浓度与站点近地面 O₃ 浓度的相关性验证如图 1 所示。由图 1 可见:春、秋两季我国 OMI-MLS 对流层 O₃ 柱浓度与站点近地面 O₃ 浓度的相关性较高,皮尔逊相关系数大于 0.5 的站点分别占 61.06% ($P < 0.05$)、65.62% ($P < 0.05$);而夏、冬两季我国 OMI-MLS 对流层 O₃ 柱浓度与站点近地面 O₃ 浓度相关性较差,夏季皮尔逊相关系数大于 0.5 的站点占 19.76% ($P < 0.05$),冬季仅占 6.00% ($P < 0.05$)。因此,用 OMI-MLS 对流层 O₃ 柱浓度变化趋势可以近似代表春、秋两季的近地面 O₃ 浓度变化,而用 OMI-MLS 对流层 O₃ 柱浓度来推测夏、冬两季的近地面 O₃ 浓度变化可能存在误差。

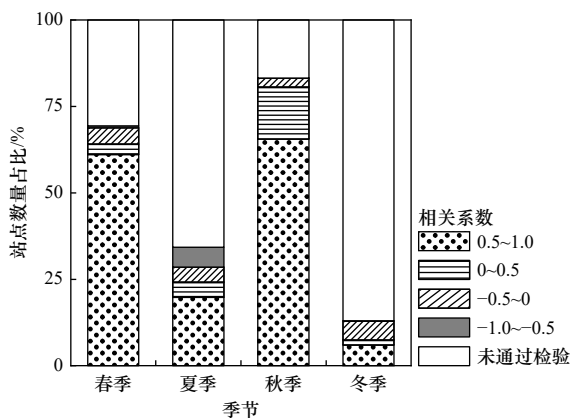


图 1 OMI-MLS 对流层 O₃ 柱浓度与站点近地面 O₃ 浓度的相关性验证

Fig.1 Validation of the correlation between OMI-MLS tropospheric O₃ column concentration and surface O₃ concentration from sites

2.2 我国对流层 O₃ 柱浓度的时空变化特征

2.2.1 对流层 O₃ 柱浓度空间分布特征

2005—2020 年我国对流层 O₃ 柱浓度年均值如图 2 所示,对流层 O₃ 柱浓度年均值为 34.42 DU,其

中,东北地区 (39.60 DU)、华东地区 (38.59 DU)、华中地区 (38.52 DU)、华北地区 (37.27 DU) 和华南地区 (35.81 DU) 的对流层 O₃ 柱浓度高于全国平均水平,西北地区 (32.98 DU)、西南地区 (29.37 DU) 低于全国水平。我国对流层 O₃ 柱浓度整体呈东高西低的分布格局,形成这种分布格局的影响因素主要包括气象和地形等方面^[23]。东北地区受西北和东南气流的输入影响,其对流层 O₃ 柱浓度最高^[10]。西南地区的对流层 O₃ 柱浓度最低,主要与地形有关,青藏高原地势较高,对流层空气柱厚度小,同时该地区多低涡切变,物质抬升的过程也会使 O₃ 浓度出现亏损^[24-25]。

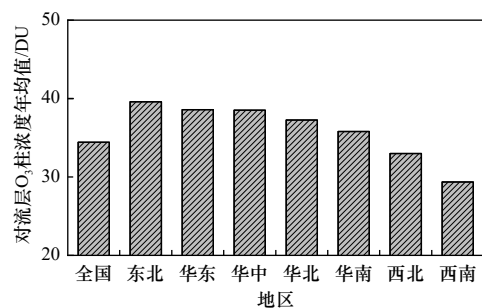


图 2 2005—2020 年我国对流层 O₃ 柱浓度年均值

Fig.2 Multi-year average of tropospheric O₃ column concentration in China from 2005 to 2020

2.2.2 对流层 O₃ 柱浓度年际变化特征

2005—2020 年我国对流层 O₃ 柱浓度总体呈波动增长的趋势(见图 3),年均增速为 0.228 DU/a,与 Ziemke 等^[26] 研究结果基本一致。2005—2020 年我国各地区对流层 O₃ 柱浓度的年际变化存在差异,华南地区的对流层 O₃ 柱浓度增速 (0.272 DU/a) 最快,其次为华中地区 (0.262 DU/a)、华东地区 (0.261 DU/a)、华北地区 (0.238 DU/a)、西北地区 (0.218 DU/a)、东北地区 (0.216 DU/a),西南地区的对流层 O₃ 柱浓度增速 (0.209 DU/a) 最慢。华南地区对流层 O₃ 柱浓度增速最快,可能与该地区 BVOCs 排放量以及当地的气象环流条件有关^[27-28]。青藏高原受南亚高压的控制,当地多反气旋, O₃ 不易积累,因此西南地区对流层 O₃ 柱浓度增速最慢^[24]。从图 3 也可看出,我国不同地区对流层 O₃ 柱浓度在 2018—2019 年达峰值,在 2020 年均有所下降,主要因 2020 年新型冠状病毒感染疫情管控导致人为源前体物排放量减少所致^[29]。

2.2.3 对流层 O₃ 柱浓度季节性变化特征

2005—2020 年我国对流层 O₃ 柱浓度的季节性变化趋势如图 4 所示,对流层 O₃ 柱浓度在夏季最高,

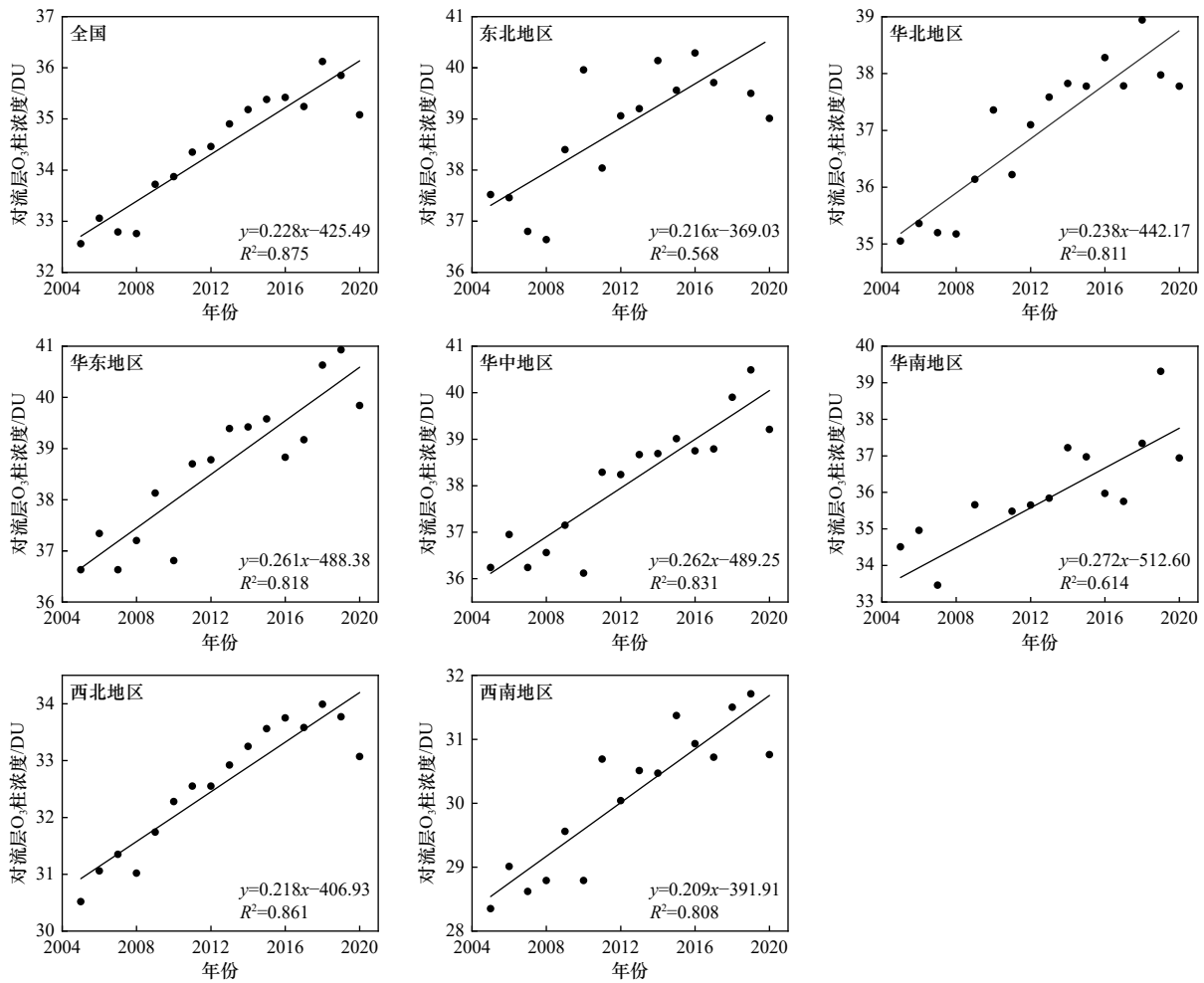


图3 2005—2020年我国对流层 O₃ 柱浓度随时间的变化情况

Fig.3 The variation in tropospheric O₃ column concentration in China from 2005 to 2020 over time

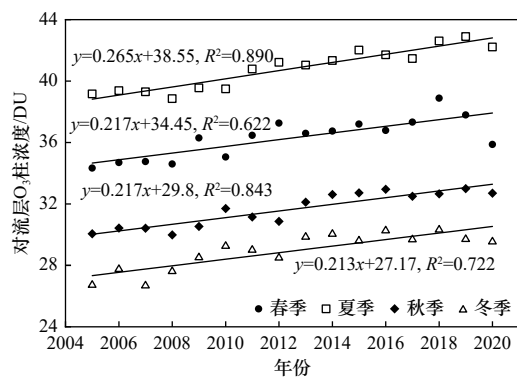


图4 2005—2020年我国对流层 O₃ 柱浓度季节性变化趋势

Fig.4 Seasonal variation trend of tropospheric O₃ column concentration in China from 2005 to 2020

其次为春季、秋季,在冬季最低。2005—2018年4个季节的对流层 O₃ 柱浓度均呈波动上升趋势,与对流层 O₃ 柱浓度年际变化趋势一致。夏季对流层 O₃ 柱

浓度的增速(0.265 DU/a)最快,春季、秋季(均为0.217 DU/a)次之,冬季(0.213 DU/a)最慢,主要原因是夏季的高温及强辐射造成了对流层内部光化学反应速率的上升, O₃ 生成速度加快^[30]。春季和冬季的对流层 O₃ 柱浓度最大值均出现在2018年,分别为37.79和30.31 DU。夏季和秋季的对流层 O₃ 柱浓度最大值均出现在2019年,分别为42.89和32.99 DU。受新冠疫情影响,2020年4个季节的对流层 O₃ 柱浓度均降低。

2005—2020年我国对流层 O₃ 柱浓度的季节性分布如图5所示。由图5可见:春、秋、冬三季,东北地区、华东地区、华南地区的对流层 O₃ 柱浓度处于较高水平,西北地区、西南地区的对流层 O₃ 柱浓度处于较低水平,我国对流层 O₃ 柱浓度整体呈现东高西低的分布格局;夏季,东北地区、华北地区、华东地区、西北地区的对流层 O₃ 柱浓度较华南、西南地区高,整体呈现北高南低的分布格局,与全球中高纬度地区对流层 O₃ 柱浓度在夏季最高,中低纬度地区在春季最高的规律^[31-34]较为一致。春、秋、冬三季,我

国对流层 O₃ 柱浓度的分布基本一致, 而春季对流层 O₃ 柱浓度要高于秋、冬两季, 主要由于春季中纬度地区频繁的平流层—对流层 O₃ 交换所致^[35]。夏季, 对流层 O₃ 及其前体物被东亚夏季风由纬度较低的华南、华东地区向纬度较高的华北地区、东北地区不

断输送, O₃ 在华北地区和东北地区累积^[36-37], 导致该地区的对流层 O₃ 柱浓度升高。西南地区的对流层 O₃ 柱浓度并未在夏季达到最大值, 主要是青藏高原上空的对流层 O₃ 柱浓度受来自低纬度的气流稀释所致^[38-39]。

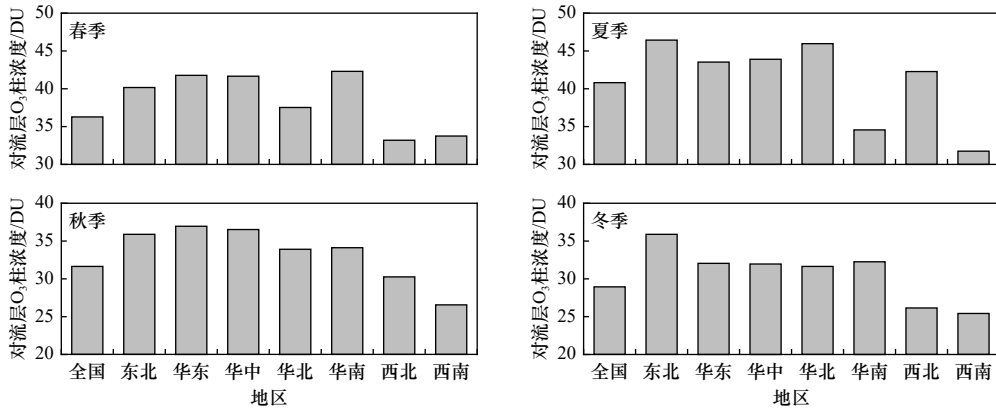


图 5 2005—2020 年我国对流层 O₃ 柱浓度的季节性分布情况

Fig.5 Seasonal distribution of tropospheric O₃ column concentration in China from 2005 to 2020

2.3 对流层 O₃ 柱浓度影响因素

本研究采用随机森林模型探讨了气象、植被、排放、地形以及经济因子对对流层 O₃ 柱浓度年际变化的影响程度, 并进行了重要性排序。由图 6 可见, 气象因子在对流层 O₃ 柱浓度的年际变化方面发挥主导作用。气象因子直接影响着对流层 O₃ 的光化学反应与输送^[40], 边界层高度、温度和气压对对流层 O₃ 柱浓度的影响程度较其他气象因子大。其次为植被因子, 植被通过干沉降和生物源 VOCs 排放间接影响对流层 O₃ 的汇^[41]。排放、地形和经济因子对对流层 O₃ 柱浓度的影响程度相对较小。

由于对流层 O₃ 柱浓度时空分布特征存在季节性差异, 进一步探讨了不同季节下对流层 O₃ 柱浓度影响因素的重要性排序 (见图 7)。由图 7 可见: 气象因子在对流层 O₃ 柱浓度的季节变化方面占主导作用, 云量在春、冬两季对对流层 O₃ 柱浓度的影响程度最大, 主要通过影响太阳辐射进而影响对流层内部 O₃ 的光化学反应进程; 在夏季, 温度对对流层 O₃ 柱浓度的影响程度最大, 气温升高一方面导致过氧酰基硝酸酯浓度降低, 另一方面也伴随着辐射的增强和异戊二烯自然排放的增加, 有利于光化学反应的进行^[42]; 秋季则是边界层高度对对流层 O₃ 柱浓度的影响程度最

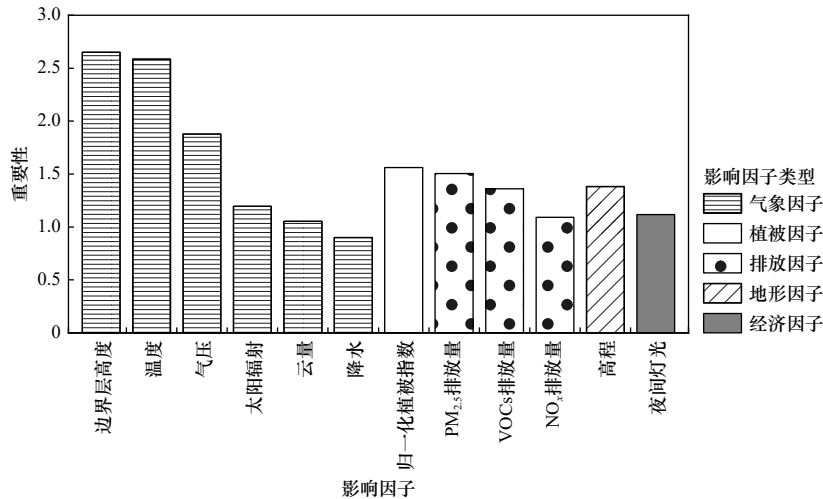


图 6 对流层 O₃ 柱浓度影响因素的重要性

Fig.6 The importance of factors influencing tropospheric O₃ column concentration

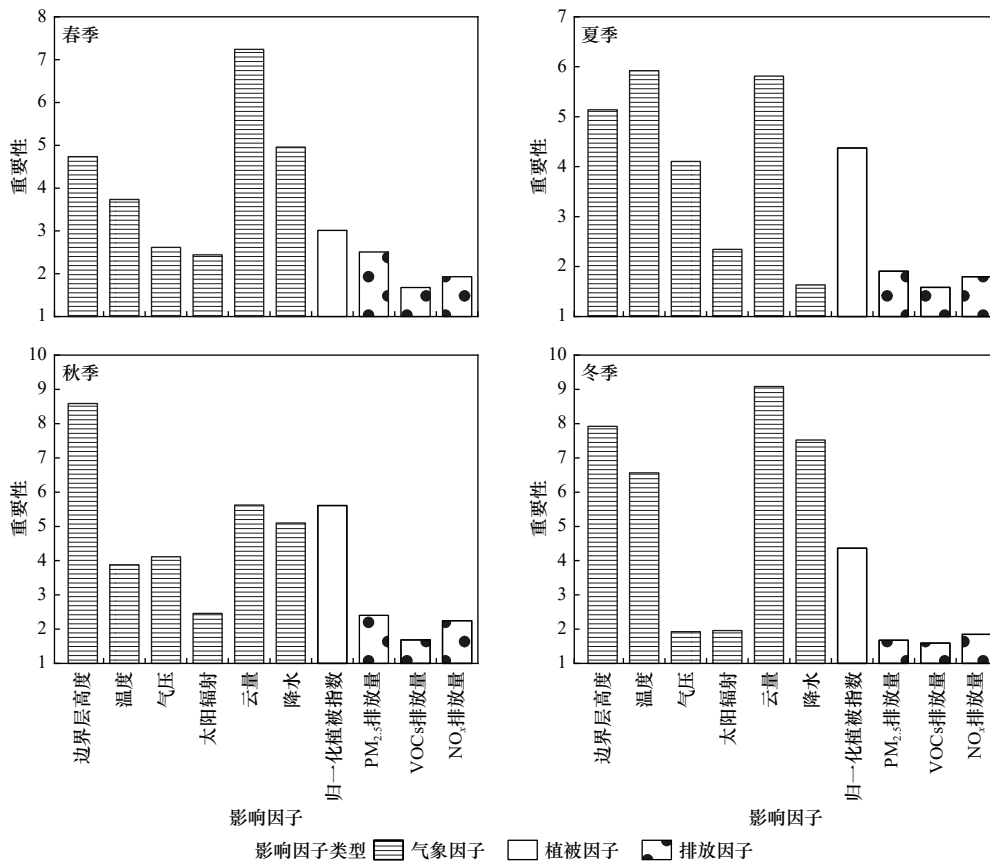


图 7 对流层 O₃ 柱浓度的季节影响因子重要性

Fig.7 The importance of seasonal factors influencing tropospheric O₃ column concentration

大, 边界层高度较低时, 有利于 O₃ 及其前体物存在, 反之则会加速 O₃ 的扩散^[43-44]。植被因子对对流层 O₃ 柱浓度季节性分布的影响程度低于气象因子, 且在夏、秋两季的影响程度较大, 与植物释放的 BVOCs 有关^[45-46]。一方面, BVOCs 氧化生成的 HO₂·、RO₂· 等自由基会引起 NO 向 NO₂ 转化; 另一方面, BVOCs 也会破坏 NO₂、NO、O₃ 的光解循环, 促进 O₃ 的累积。综上, 排放因子较气象因子和植被因子对对流层 O₃ 柱浓度的季节变化影响程度小。

3 结论

a) 2014—2020 年我国 OMI-MLS 对流层 O₃ 柱浓度与站点近地面 O₃ 浓度在月尺度上显著相关, 87.81% 站点的近地面 O₃ 浓度与 OMI-MLS 对流层 O₃ 柱浓度的皮尔逊相关系数大于 0.50(P<0.05)。在季尺度上, 我国 OMI-MLS 对流层 O₃ 柱浓度与站点近地面 O₃ 浓度在春、秋两季相关性较高, 在夏、冬两季二者的相关性较差, 春季、夏季、秋季、冬季皮尔逊相关系数大于 0.50(P<0.05) 的站点分别占 61.06%、19.76%、65.62% 和 6.00%。

b) 2005—2020 年我国对流层 O₃ 柱浓度多年平均值为 34.42 DU, 空间异质性强, 整体呈东高西低的

分布格局。2005—2020 年, 我国对流层 O₃ 柱浓度呈波动上升的趋势 (0.228 DU/a), 其中, 华南地区的对流层 O₃ 柱浓度增速 (0.272 DU/a) 最快, 其次是华中地区 (0.262 DU/a)、华东地区 (0.261 DU/a)、华北地区 (0.238 DU/a)、西北地区 (0.218 DU/a)、东北地区 (0.216 DU/a), 西南地区增速 (0.209 DU/a) 最慢。

c) 我国对流层 O₃ 柱浓度在不同季节呈现的特征不同, 对流层 O₃ 柱浓度呈夏季>春季>秋季>冬季的特征。对流层 O₃ 柱浓度各季节的变化趋势有所差异, 对流层 O₃ 柱浓度在夏季增速 (0.265 DU/a) 最快, 在春季、秋季 (均为 0.217 DU/a) 次之, 冬季 (0.213 DU/a) 最慢。

d) 在对流层 O₃ 柱浓度的年际变化方面, 气象因子对我国对流层 O₃ 柱浓度的影响程度最大, 其次为植被因子和排放因子, 地形以及经济因子的影响程度较小。在对流层 O₃ 柱浓度的季节性变化方面, 气象因子对我国对流层 O₃ 柱浓度的影响程度最大, 而植被因子在夏、秋两季的影响作用较大, 排放因子对 O₃ 柱浓度的影响程度较小。

参考文献 (References):

[1] ZENG Y S,ZHANG J Q,LI D,et al.Vertical distribution of tropospheric ozone and its sources of precursors over Beijing:

- results from ~20 years of ozonesonde measurements based on clustering analysis[J]. *Atmospheric Research*,2023,284:106610.
- [2] 郭云飞,包云轩,刘端阳.基于卫星和地面观测的中国典型城市群对流层内臭氧时空变化特征 [J]. *环境科学研究*,2022,35(3):719-730.
- GUO Y F,BAO Y X,LIU D Y.Spatial-temporal variations of tropospheric ozone over typical urban agglomerations in China based on satellite and surface observations[J]. *Research of Environmental Sciences*,2022,35(3):719-730.
- [3] COHEN A J,BRAUER M,BURNETT R,et al.Estimates and 25-year trends of the global burden of disease attributable to ambient air pollution:an analysis of data from the Global Burden of Diseases Study 2015 [J]. *Lancet*,2017,389(10082):1907-1918.
- [4] 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.
- [5] SIMS R.Climate change 2014:synthesis report[R].Geneva:IPCC, 2015.
- [6] SUN H T,SHIN Y M,XIA M T,et al.Spatial resolved surface ozone with urban and rural differentiation during 1990-2019:a space-time Bayesian neural network downscaler[J]. *Environmental Science & Technology*,2022,56(11):7337-7349.
- [7] 刘跃辉,刘禹含,龚元均,等.基于观测的我国典型地区臭氧局地化学生成及其关键前体物来源 [J]. *环境科学研究*,2023,36(12):2235-2244.
- LIU Y H,LIU Y H,GONG Y J,et al.Observation-based study of local ozone chemical generation and precursor sources in typical regions of China [J]. *Research of Environmental Sciences*,2023, 36(12):2235-2244.
- [8] 赵少华,杨晓钰,李正强,等.臭氧卫星遥感六十年进展 [J]. *遥感学报*,2022,26(5):817-833.
- ZHAO S H,YANG X Y,LI Z Q,et al.Advances of ozone satellite remote sensing in 60 years [J]. *National Remote Sensing Bulletin*, 2022,26(5):817-833.
- [9] 王跃启,江洪,张秀英,等.基于 OMI 卫星遥感数据的中国对流层 NO₂ 时空分布 [J]. *环境科学研究*,2009,22(8):932-937.
- WANG Y Q,JIANG H,ZHANG X Y,et al.Temporal-spatial distribution of tropospheric NO₂ in China using OMI satellite remote sensing data [J]. *Research of Environmental Sciences*,2009, 22(8):932-937.
- [10] ZHU L,LIU M X,SONG J Y.Spatiotemporal variations and influent factors of tropospheric ozone concentration over China based on OMI data [J]. *Atmosphere*,2022,13(2):253.
- [11] 庄立跃,陈瑜萍,范丽雅,等.基于 OMI 卫星数据和 MODIS 土地覆盖类型数据研究珠江三角洲臭氧敏感性 [J]. *环境科学学报*, 2019,39(11):3581-3592.
- ZHUANG L Y,CHEN Y P,FAN L Y,et al.Study on the ozone formation sensitivity in the Pearl River Delta based on OMI satellite data and MODIS land cover type products [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*,2019,39(11):3581-3592.
- [12] CHEN X,ZHONG B Q,HUANG F X,et al.The role of natural factors in constraining long-term tropospheric ozone trends over Southern China [J]. *Atmospheric Environment*,2020,220:117060.
- [13] 李洋,张健恺,田文寿,等.动力传输和地表排放对北京地区对流层臭氧长期变化的影响 [J]. *干旱气象*,2018,36(2):157-166.
- LI Y,ZHANG J K,TIAN W S,et al.Impact of dynamic transmission and surface emission on ozone change in troposphere over Beijing [J]. *Journal of Arid Meteorology*,2018,36(2):157-166.
- [14] 赵楠,卢毅敏.基于 XGBoost 算法的近地面臭氧浓度遥感估算 [J]. *环境科学学报*,2022,42(5):95-108.
- ZHAO N,LU Y M.Remote-sensing estimation of near-surface ozone concentration based on XGBoost [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*,2022,42(5):95-108.
- [15] 牛笑笑,钟艳梅,杨璐,等.2015—2020 年中国城市 PM_{2.5}-O₃ 复合污染时空演变特征 [J]. *环境科学*,2023,44(4):1830-1840.
- NIU X X,ZHONG Y M,YANG L,et al.Spatiotemporal evolution characteristics of PM_{2.5}-O₃ compound pollution in Chinese cities from 2015 to 2020 [J]. *Environmental Science*,2023,44(4):1830-1840.
- [16] ZIEMKE J R,CHANDRA S,DUNCAN B N,et al.Tropospheric ozone determined from Aura OMI and MLS:evaluation of measurements and comparison with the Global Modeling Initiative's Chemical Transport Model [J]. *Journal of Geophysical Research:Atmospheres*,2006,111(D19):e2006jd007089.
- [17] ZIEMKE J R,CHANDRA S,DUNCAN B N,et al.Recent biomass burning in the tropics and related changes in tropospheric ozone [J]. *Geophysical Research Letters*,2009,36(15):e2009gl039303.
- [18] ZIEMKE J R,CHANDRA S,LABOW G J,et al.A global climatology of tropospheric and stratospheric ozone derived from Aura OMI and MLS measurements [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*,2011,11(17):9237-9251.
- [19] CHEN Z Q,YU B L,YANG C S,et al.An extended time series (2000-2018) of global NPP-VIIRS-like nighttime light data from a cross-sensor calibration [J]. *Earth System Science Data*,2021, 13(3):889-906.
- [20] CHENG J,TONG D,LIU Y,et al.Air quality and health benefits of China's current and upcoming clean air policies [J]. *Faraday Discussions*,2021,226:584-606.
- [21] SI Y D,WANG H M,CAI K,et al.Long-term (2006-2015) variations and relations of multiple atmospheric pollutants based on multi-remote sensing data over the North China Plain [J]. *Environmental Pollution*,2019,255:113323.
- [22] BREIMAN L.Random forests [J]. *Machine Learning*,2001,45:5-32.
- [23] 徐军,卢毅敏.一种基于 OMI 数据的中国区域对流层 O₃ 的反演方法 [J]. *南京信息工程大学学报(自然科学版)*,2021,13(6):707-719.
- XU J,LU Y M.Inversion of tropospheric ozone over China based on OMI data [J]. *Journal of Nanjing University of Information Science & Technology (Natural Science Edition)*,2021,13(6):707-719.
- [24] 曹晓云,祁栋林,肖建设,等.基于卫星观测的青海高原对流层臭

- 氧时空分布特征研究[J].环境科学学报,2021,41(5):1640-1648.
- CAO X Y, QI D L, XIAO J S, et al. Temporal and spatial distribution characteristics of tropospheric ozone in Qinghai Plateau based on satellite observations[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2021, 41(5): 1640-1648.
- [25] 周秀骥, 李维亮, 陈隆勋, 等. 青藏高原地区大气臭氧变化的研究[J]. *气象学报*, 2004, 62(5): 513-527.
- ZHOU X J, LI W L, CHEN L X, et al. Study of ozone change over Tibetan Plateau[J]. *Acta Meteorologica Sinica*, 2004, 62(5): 513-527.
- [26] ZIEMKE J R, OMAN L D, STRODE S A, et al. Trends in global tropospheric ozone inferred from a composite record of TOMS/OMI/MLS/OMPS satellite measurements and the MERRA-2 GMI simulation[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2019, 19(5): 3257-3269.
- [27] WU K, YANG X Y, CHEN D A, et al. Estimation of biogenic VOC emissions and their corresponding impact on ozone and secondary organic aerosol formation in China[J]. *Atmospheric Research*, 2020, 231: 104656.
- [28] 周德荣. 大气环流对华南沿海对流层臭氧影响研究[D]. 南京: 南京大学, 2014.
- [29] STEINBRECHT W, KUBISTIN D, PLASS-DÜLMER C, et al. COVID-19 crisis reduces free tropospheric ozone across the Northern Hemisphere[J]. *Geophysical Research Letters*, 2021, 48(5): e2020GL091987.
- [30] 柯碧钦, 何超, 杨璐, 等. 华北地区地表臭氧时空分布特征及驱动因子[J]. *中国环境科学*, 2022, 42(4): 1562-1574.
- KE B Y, HE C, YANG L, et al. The spatiotemporal variation of surface ozone and the main driving factors in North China[J]. *China Environmental Science*, 2022, 42(4): 1562-1574.
- [31] OSTERMAN G B, KULAWIK S S, WORDEN H M, et al. Validation of Tropospheric Emission Spectrometer (TES) measurements of the total, stratospheric, and tropospheric column abundance of ozone[J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2008, 113(D15): e2007jd008801.
- [32] CHAN C Y, CHAN L Y, CUI H, et al. Origin of the springtime tropospheric ozone maximum over East China at Linan in 2001[J]. *Tellus B: Chemical and Physical Meteorology*, 2003, 55(5): 982.
- [33] LU X, ZHANG L, SHEN L. Meteorology and climate influences on tropospheric ozone: a review of natural sources, chemistry, and transport patterns[J]. *Current Pollution Reports*, 2019, 5(4): 238-260.
- [34] COOPER O R, PARRISH D D, ZIEMKE J, et al. Global distribution and trends of tropospheric ozone: an observation-based review[J]. *Elementa: Science of the Anthropocene*, 2014, 2: 000029.
- [35] WANG F, LIU Y, CHEN Z N, et al. Tropospheric ozone products retrieved from GOME-2[J]. *Remote Sensing Technology and Application*, 2016, 31(2): 316-323.
- [36] LIU N W, LIN W L, MA J Z, et al. Seasonal variation in surface ozone and its regional characteristics at global atmosphere watch stations in China[J]. *Journal of Environmental Sciences (China)*, 2019, 77: 291-302.
- [37] LI S, WANG T J, HUANG X, et al. Impact of East Asian summer monsoon on surface ozone pattern in China[J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2018, 123(2): 1401-1411.
- [38] 胡玥明. 中国地区对流层臭氧总量的卫星反演与验证研究[D]. 北京: 中国气象科学研究院, 2019.
- [39] LIU Z Y, VAUGHAN M, WINKER D, et al. The CALIPSO lidar cloud and aerosol discrimination: version 2 algorithm and initial assessment of performance[J]. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 2009, 26(7): 1198-1213.
- [40] 张新. 中国三大城市群对流层臭氧时空变化特征及影响因素研究[D]. 北京: 中国气象科学研究院, 2023.
- [41] SADIQ M, TAI A P K, LOMBARDOZZI D, et al. Effects of ozone-vegetation coupling on surface ozone air quality via biogeochemical and meteorological feedbacks[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2017, 17(4): 3055-3066.
- [42] JACOB D J, WINNER D A. Effect of climate change on air quality[J]. *Atmospheric Environment*, 2009, 43(1): 51-63.
- [43] TANG G Q, LIU Y T, HUANG X, et al. Aggravated ozone pollution in the strong free convection boundary layer[J]. *Science of the Total Environment*, 2021, 788: 147740.
- [44] 王耀庭, 李威, 张小玲, 等. 北京城区夏季静稳天气下大气边界层与大气污染的关系[J]. *环境科学研究*, 2012, 25(10): 1092-1098.
- WANG Y T, LI W, ZHANG X L, et al. Relationship between atmospheric boundary layer and air pollution in summer stable weather in the Beijing urban area[J]. *Research of Environmental Sciences*, 2012, 25(10): 1092-1098.
- [45] 张红星, 韩立建, 任玉芬, 等. 北京城市与西北远郊地表臭氧浓度梯度移动监测研究[J]. *生态学报*, 2019, 39(18): 6803-6815.
- ZHANG H X, HAN L J, REN Y F, et al. Monitoring ozone concentrations along an urban to rural gradient of Beijing with a mobile vehicle[J]. *Acta Ecologica Sinica*, 2019, 39(18): 6803-6815.
- [46] JUSTINO F, BROMWICH D H, SCHUMACHER V, et al. Arctic Oscillation and Pacific-North American pattern dominated modulation of fire danger and wildfire occurrence[J]. *NPJ Climate and Atmospheric Science*, 2022, 5: 52.

(责任编辑: 刘 方)