

夏季对流层臭氧辐射强迫对华北地区天气和空气质量的影响

杜楠¹, 陈磊^{1,2*}, 廖宏^{1*}, 朱佳¹, 李柯¹

(1. 南京信息工程大学环境科学与工程学院, 江苏省大气环境监测与污染控制高技术研究重点实验室, 江苏省大气环境与装备技术协同创新中心, 南京 210044; 2. 国家环境保护大气复合污染来源与控制重点实验室, 北京 100084)

摘要: 自2013年我国实施《大气污染防治行动计划》以来, 大气颗粒物浓度显著降低, 但臭氧(O₃)污染日益严峻, 同时对对流层O₃作为一种重要的温室气体, 其辐射强迫能够影响天气和空气质量. 利用双向耦合的区域空气质量模型WRF-Chem, 再现2017年6月发生在华北地区的一次O₃污染事件, 通过敏感性试验分析对流层臭氧辐射强迫(TORF)对当地气象场的影响, 以及改变的气象变量对O₃空气质量的反馈作用. 结果表明, WRF-Chem模式在气象要素的模拟上表现出较好的性能, 并且能够很好地捕捉到O₃浓度的时空演变特征. TORF使北京-天津-河北-山东地区的近地面气温平均升高0.23 K(最大增温可达0.8 K)、近地面相对湿度降低1.84%、边界层高度增加27.73 m. TORF对风速的影响较弱(-0.02 m·s⁻¹), 但产生的西南风异常容易将上游污染地区的O₃和其前体物输送至华北地区. 在臭氧辐射反馈的影响下, 研究区域内φ(O₃)平均增加1.7%(1.23 × 10⁻⁹), 而在污染严重的北京和天津地区, φ(O₃)增加量最高可达5 × 10⁻⁹. 进一步利用过程诊断分析法可以发现, 增强的气相化学反应是TORF恶化近地面O₃污染的主导原因.

关键词: 对流层臭氧(O₃); 辐射反馈; 空气质量; 数值模拟; 过程诊断分析法

中图分类号: X51 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2023)07-3705-10 DOI: 10.13227/j.hjks.202208098

Impact of Summer Tropospheric Ozone Radiative Forcing on Meteorology and Air Quality in North China

DU Nan¹, CHEN Lei^{1,2*}, LIAO Hong^{1*}, ZHU Jia¹, LI Ke¹

(1. Jiangsu Collaborative Innovation Center of Atmospheric Environment and Equipment Technology, Jiangsu Key Laboratory of Atmospheric Environment Monitoring and Pollution Control, School of Environmental Science and Engineering, Nanjing University of Information Science and Technology, Nanjing 210044, China; 2. State Environmental Protection Key Laboratory of Sources and Control of Air Pollution Complex, Beijing 100084, China)

Abstract: With the vigorous implementation of the Clean Air Action since 2013, the atmospheric particle pollution in China has been substantially reduced, but ozone concentrations have been increasing. Moreover, tropospheric ozone can make a difference in meteorology and air quality through its radiative forcing as an important greenhouse gas. A coupled regional meteorology-chemistry model (WRF-Chem) was used to reproduce an ozone pollution event that occurred in North China in June 2017. The impact of tropospheric ozone radiative forcing on local meteorological fields and its feedback effect on ozone air quality were analyzed through sensitivity experiments. The results revealed the excellent performance of the WRF-Chem model for meteorological parameters and ozone pollutant concentrations. Tropospheric ozone radiative forcing (TORF) increased the average near-surface temperature by 0.23 K in the Beijing-Tianjin-Hebei-Shandong Region (the maximum temperature increase could reach 0.8 K), reduced the relative humidity by 1.84%, and elevated the height of the boundary layer by 27.73 m. TORF had a weaker effect on wind speed (-0.02 m·s⁻¹), but the generated anomalous southwestern wind was more liable to transport ozone and its precursors from upstream polluted areas to North China. Under the impacts of ozone radiation feedback, the ozone volume fraction in the study area increased by an average of 1.7% (1.23 × 10⁻⁹), whereas in the heavily polluted Beijing and Tianjin areas, the increase reached up to 5 × 10⁻⁹. Furthermore, the enhanced gas phase chemical reactions were identified as the dominant cause worsening near-surface ozone pollution by progress diagnostic analysis.

Key words: tropospheric ozone (O₃); radiation feedback; air quality; numerical simulation; progress diagnostic analysis

对流层臭氧(O₃)是由氮氧化物(NO_x)和挥发性有机物(VOCs)通过光化学反应生成的一种二次气体污染物^[1,2]. O₃污染作为全球性的公共卫生问题已引起广泛的社会关注^[3]. 据估计, 全球每年因O₃污染导致的过早死亡人数平均超过70万人(其中38%发生在中国), 造成农作物减产14~60亿美元, 森林生物量减少7%^[4~8].

对流层O₃也是一种重要的温室气体, 可以吸收太阳短波辐射和地球长波辐射, 影响地气系统的辐射收支平衡^[9]. IPCC第五次评估报告指出, 自前工业化时代以来, 全球平均的对流层臭氧辐射强迫

(tropospheric ozone radiative forcing, TORF)估计值为0.40 W·m⁻², 是导致全球变暖的重要因素之一^[10]. Dentener等^[11]通过TM3和STOCHEM模型开展臭氧辐射强迫的长期模拟, 指出随着人为排放和气候的变化, 北半球2020~2030年O₃体积分数

收稿日期: 2022-08-11; 修订日期: 2022-09-21

基金项目: 国家重点研发计划全球变化及应对重点专项(2019YFA0606800); 国家自然科学基金项目(42007195); 江苏省高等学校自然科学基金项目(21KJB170004); 国家环境保护大气复合污染来源与控制重点实验室开放基金项目(SCAPC202114)

作者简介: 杜楠(1997~), 女, 硕士研究生, 主要研究方向为大气环境数值模拟. E-mail: nandu@nuist.edu.cn

* 通信作者 E-mail: chenlei@nuist.edu.cn; hongliao@nuist.edu.cn

要比 1990 ~ 2000 年增加 5.0×10^{-9} , 进而会使对流层臭氧辐射强迫增加 $0.2 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$. Pozzoli 等^[12] 利用气溶胶-化学-气候模式 ECHAM5-HAMMOZ 通过敏感性试验探究人为活动对臭氧辐射强迫影响, 模拟结果表明, 1981 ~ 2005 年, 增强的人为活动使对流层 O_3 的辐射强迫增加, 全球平均值为 $0.05 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$, 东亚地区为 $0.12 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$. Dang 等^[13] 运用 GEOS-Chem 模式分析我国 2012 ~ 2017 年清洁空气行动计划下对流层臭氧辐射强迫的变化情况, 模拟结果表明 2012 年我国东部对流层臭氧辐射强迫为 $0.72 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$, 2017 年臭氧辐射强迫进一步增强 $0.10 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$.

对流层 O_3 浓度的变化在扰动地气辐射收支的同时也会影响气象条件^[14-16]. Xie 等^[17] 通过气溶胶-气候模式 BCC_AGCM2.0.1_CUACE/Aero 模拟 1850 ~ 2013 年对流层 O_3 的有效辐射强迫 (effective radiative forcing, ERF) 及其对全球气候的影响, 结果表明, 由于 1850 ~ 2013 年间的对流层 O_3 柱浓度变化 18.08 DU, 导致 ERF 平均增加 $0.46 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$, 全球年平均地表温度增加 0.36°C , 降水增加 $0.02 \text{ mm} \cdot \text{d}^{-1}$. Roy 等^[18] 利用气溶胶-化学-气候模式 ECHAM5-HAMMOZ 通过理想试验, 探究印度地区人为 NO_x 排放变化对 O_3 浓度及其辐射效应的影响, 模拟结果表明, 增加 38% 的 NO_x 排放会使对流层中低层的 O_3 浓度升高, 进而使臭氧辐射强迫增强 $16.3 \text{ mW} \cdot \text{m}^{-2}$, 促进青藏高原的升温和印度降水的增加 ($0.3 \text{ mm} \cdot \text{d}^{-1}$). 但当人为 NO_x 的排放量进一步增加时 (增加 78%), 更高的 O_3 浓度会转变 Hadley 环流而减弱印度地区的降水 ($-0.3 \sim -0.6 \text{ mm} \cdot \text{d}^{-1}$). Li 等^[19] 利用区域气候模式 RegCM4 调研中国地区夏季对流层 O_3 的空间分布、辐射强迫和气候影响, 并指出, 自工业革命以来, 对流层 O_3 浓度的增加使晴天净辐射通量增加 $0.89 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$, 进而增强海陆热力差异, 使东亚夏季风环流在中国南部增强, 带来更多的水汽.

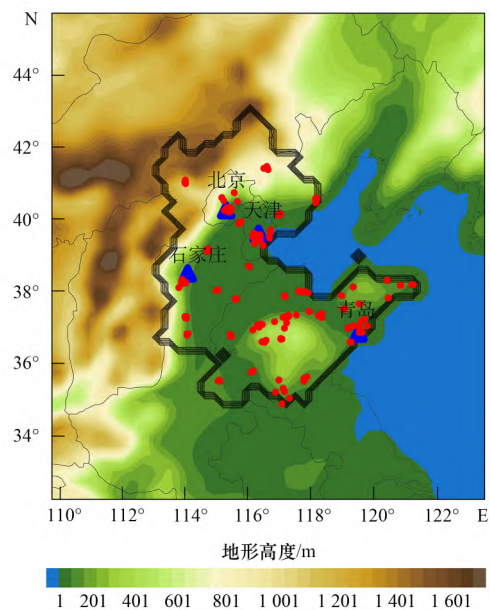
对流层 O_3 在大气热平衡中扮演非常重要的角色, 可以通过其与辐射和气象的相互作用而影响污染治理的成效. 然而, 目前国内外有关对流层 O_3 与辐射的相互作用, 更多的只是涉及对气象场的影响, 如对温度^[20-21]、风速^[19]和降水^[22-23]等气象因子的影响, 而改变的气象变量进一步对空气质量的反馈影响的研究几乎没有. 探究 O_3 的辐射强迫, 尤其是量化对流层 O_3 与辐射的相互作用对空气质量的反馈影响, 有利于更好地理解大气污染事件的形成和演变机制, 对未来制定更好的大气污染防控政策具有重要的指导意义.

2020 年我国人口加权平均的 O_3 日最大 8 h 浓度的第 90 百分位数为 $139.3 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$, 相比 2015 年上涨 13.8%^[24]. 中国 O_3 污染问题日益凸显, 已成为“十四五”期间的攻坚重点. 考虑到华北平原 ($36^\circ \sim 40.5^\circ\text{N}$, $114.5^\circ \sim 119.5^\circ\text{E}$) 是我国 O_3 污染最严重的地区之一, 也是 O_3 浓度逐年增长最快速的地区之一^[25-27]. 本文以 2017 年 6 月发生在华北地区的一次 O_3 污染事件为研究对象, 采用双向耦合的区域空气质量模型 WRF-Chem 来再现此次污染事件, 并通过敏感性试验分析对流层臭氧辐射强迫对地气系统的辐射收支扰动及其引起的气象场变化的基础上, 进一步定量探究对流层 O_3 的辐射反馈对空气质量的影响及其在污染物浓度演变中的作用.

1 材料与方法

1.1 模式设置

为探究对流层臭氧辐射强迫对气象变量的影响, 以及改变的气象变量对 O_3 浓度的反馈影响, 本研究使用由 NCAR 和 NOAA 等联合开发的在线 (online) 三维区域空气质量模式 WRF-Chem^[28-29] (weather research and forecasting model coupled to chemistry). 模式版本为 v3.7.1, 采用 Lambert 地图投影方式, 网格分辨率设为 27 km, 模拟区域着眼于我国华北平原地区 (图 1), 垂直方向上有 29 层. 模拟时段为 2017 年 5 月 27 ~ 30 日, 其中前 5 d 为 spin-up 时间.



蓝色三角表示气象观测站点, 红色圆点表示 O_3 浓度监测站点, 黑色加粗边界是本研究重点关注地区 (北京、天津、河北和山东)

图 1 WRF-Chem 模式的模拟区域和观测站点的空间分布

Fig. 1 WRF-Chem simulation domain and the spatial distribution of observation sites

驱动 WRF-Chem 模式的气象初边界数据来自欧洲中期天气预报中心(ECMWF) 提供的第 5 代全球再分析气象资料 ERA5 (<https://cds.climate.copernicus.eu/cdsapp#! /search? type = dataset>). 该再分析数据具有高空间分辨率($0.25^\circ \times 0.25^\circ$) 和高时间分辨率(1 h), 能很好地提高空气质量模式对大气污染物浓度及其时空演变特征的模拟能力. 化学物种的初边界条件来自全球化学模式 CAM-Chem 的模拟结果 (<https://www.acom.ucar.edu/cam-chem/camchem.shtml>), 其水平分辨率为 $1^\circ \times 1.25^\circ$, 时间分辨率为 6 h.

人为排放数据来自清华大学研发的 MEIC 排放清单^[30] (<http://meicmodel.org/>), 包括污染物二氧化硫(SO_2)、氮氧化物(NO_x)、一氧化碳(CO)、非甲烷挥发性有机物(NMVOC)、氨气(NH_3)、黑碳(BC)、有机碳(OC)、一次排放的细颗粒物($\text{PM}_{2.5}$) 和粗颗粒物(PM_{10}). 模式所使用的生物源排放来自 MEGANv2.04 的模型结果^[31]. 生物质燃烧排放源来自 FINNv2.0^[32]. 沙尘和海盐排放分别使用 Shao 等^[33] 和 Gong 等^[34] 提出的算法在线计算.

气相化学方案为 CBM-Z (carbon bond mechanism, version Z) 机制^[35], 该方案在 CBM-IV 的基础上更新了无机化学和异戊二烯化学等反应参数, 共包含 67 个物种和 164 个反应. 光解反应速率来自 Fast-J 方案^[36], 并进一步考虑了气溶胶对光解速率的影响. 气溶胶模块选用的是 8 个粒径段的 MOSAIC(model for simulating aerosol interactions and chemistry) 机制^[37], 该机制包含硫酸盐、硝酸盐、铵盐、黑碳、有机质、液态水和其他无机物质等, 涉及的主要气溶胶过程包括热力学平衡、二元成核、凝聚和凝结等. 同时本研究还添加了气溶胶表面的非均相化学反应过程. 气溶胶光学属性(包括消光系数、单次散射反照率和不对称因子) 可以通过波长与粒子的三维位置的函数计算得到. 在 WRF-Chem 模式中, 每一个气溶胶化学成分在各个粒径段内都被赋予一个体积平均的复折射指数, 进而可以通过 Mie 理论来计算气溶胶粒子的消光效率和散射效率^[38]. 长短波辐射方案均选用 RRTMG (rapid radiative transfer model for GCMs) 方案^[39], 该方案引入实时计算的气溶胶光学属性, 用来表征气溶胶直接辐射强迫的影响. 与此同时, 本研究还将模式实时计算的 O_3 浓度替换辐射方案中的气候态平均值, 以期探究对流层 O_3 的直接辐射强迫影响. 此外, RRTMG 模型中默认设定的其他温室气体浓度, 如 CO_2 、 CH_4 和 N_2O 等, 也根据全球化学模式 CAM-Chem 模拟结果进行更新. 详细的物理和化学参数化

方案可见表 1.

表 1 模式模拟所用主要参数化方案

选项	参数化方案
微物理方案	Purdue Lin scheme
长波辐射方案	RRTMG scheme
短波辐射方案	RRTMG scheme
陆面过程方案	Revised MM5 Monin-Obukhov scheme
城市冠层模型	Unified Noah land-surface model
边界层方案	YSU scheme
积云对流方案	Grell 3-D ensemble scheme
光解方案	Fast-J
沙尘方案	Shao_2004
气相化学方案	CBMZ
气溶胶方案	MOSAIC

1.2 过程诊断分析法

参照 Chen 等^[40] 的做法, 本研究将气体和气溶胶的过程诊断模块耦合到 WRF-Chem 模式中. 该方法能直接量化各物理和化学过程在污染物浓度演变过程中的贡献. 在本文中, 考虑了 8 个主要的物理化学过程, 包括区域输送、排放、垂直混合、次网格对流、气相化学、云化学、湿沉降和气溶胶化学.

1.3 敏感性试验设置

本研究着眼于对流层 O_3 的辐射效应, 即对流层 O_3 的辐射强迫对气象场的扰动, 以及改变的气象要素对近地面 O_3 浓度的反馈影响. 基于此, 本文开展了两个试验(表 2), 分别是控制试验(CTL) 和不考虑对流层臭氧辐射强迫影响的敏感性试验(NoTORF). 其中 CTL 试验表示真实情景, 其模拟结果是用来验证 WRF-Chem 模式的模拟能力. NoTORF 试验是在 CTL 试验的基础上不考虑对流层臭氧辐射强迫的影响, 即在 RRTMG 长短波辐射方案中将对流层 O_3 的混合比设为 0, 也就是不考虑对流层内 O_3 气体光学属性对辐射通量的影响. 因此, 比较 CTL 控制试验和 NoTORF 试验, 可量化对流层臭氧辐射强迫所产生的影响.

表 2 敏感性试验设置¹⁾

试验名称	对流层 O_3 对长波辐射的影响	对流层 O_3 对短波辐射的影响
CTL	开启	开启
NoTORF	关闭	关闭

1) 开启表示将实时计算的 O_3 浓度(体积混合比) 替换辐射方案中预设的气候态平均浓度, 关闭表示将对流层内 O_3 的浓度(体积混合比) 设为 0

1.4 观测数据

为验证 WRF-Chem 模式对 2017 年 6 月华北地区气象场和污染物浓度的模拟能力, 本研究分别从怀俄明大学 (<http://weather.uwyo.edu/surface/>

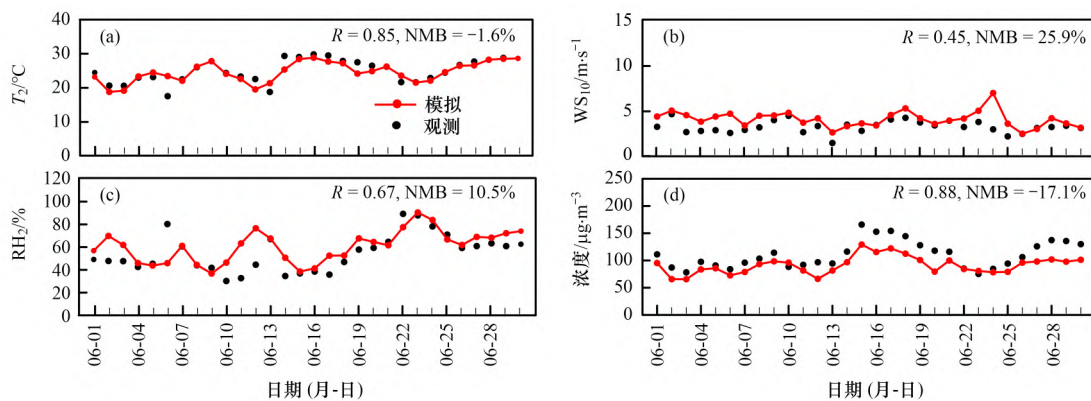
meteorogram/seasia. shtml) 下载北京 (ZBAA, 39.93°N, 116.28°E)、天津 (ZBTJ, 39.18°N, 117.35°E)、石家庄 (ZBSJ, 38.28°N, 114.70°E) 和青岛 (ZSQD, 36.07°N, 120.33°E) 的小时近地面 2 m 气温 (T_2)、2 m 相对湿度 (RH_2) 和 10 m 风速 (WS_{10}) 数据, 以及从中国环境监测总站 (<https://air.cnemc.cn:18007>) 获取北京、天津、河北和山东这 4 个省市共 197 个站点的逐小时 O_3 浓度观测数据. 气象观测站点和 O_3 浓度观测站点的空间分布详见图 1.

2 模式评估

模式对气象要素和大气污染物浓度的可靠模拟是进一步开展研究工作的基础. 为评估 WRF-Chem 模式的模拟性能, 本研究将 2017 年 6 月研究区域内 (北京、天津、河北和山东) 的 CTL 试验模拟数据与观测数据均进行 24 h 平均, 选用日均值进行详细对比. 分别计算气象因子 (T_2 、 RH_2 和 WS_{10}) 和 O_3 浓度模拟值与观测值之间的标准平均偏差 (NMB) 和相关系数 (R), 它们的定义为:

$$NMB = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \frac{SIM_i - OBS_i}{OBS_i} \times 100\%$$

$$R = \frac{\sum_{i=1}^n |(OBS_i - \overline{OBS}) \times (SIM_i - \overline{SIM})|}{\sqrt{\sum_{i=1}^n (OBS_i - \overline{OBS})^2 + \sum_{i=1}^n (SIM_i - \overline{SIM})^2}}$$



R 为相关系数; NMB 为标准平均偏差

图 2 分析区域内 2017 年 6 月观测和模拟的结果的时间序列

Fig. 2 Time series of observed and simulated results over the study area in June 2017

表 3 分析区域内各省市 2017 年 6 月气象要素和 O_3 浓度的模拟效果评估

Table 3 Statistical metrics between observations and simulations for meteorological elements and ozone concentrations over cities of the study area in June 2017

变量	北京		天津		河北		山东	
	R	NMB/%	R	NMB/%	R	NMB/%	R	NMB/%
T_2	0.79	0.2	0.88	1.7	0.75	2.2	0.66	-11.2
RH_2	0.58	-1.2	0.69	10.6	0.57	-6.2	0.63	35.9
WS_{10}	0.16	19.5	0.49	6.5	0.21	68.8	0.30	21.7
O_3 浓度	0.76	-5.5	0.82	-9.6	0.83	-19.1	0.81	-19.0

$$\overline{SIM} = \frac{1}{n} \times \sum_{i=1}^n SIM_i, \quad \overline{OBS} = \frac{1}{n} \times \sum_{i=1}^n OBS_i$$

式中, n 为样本总数; SIM_i 为观测值; OBS_i 为模拟值; \overline{OBS} 和 \overline{SIM} 分别为平均观测值和模拟.

图 2 给出的是 2017 年 6 月华北地区模式模拟与站点观测的气象要素和 O_3 浓度的时间变化曲线. 如图 2(a) 和 2(c) 显示, WRF-Chem 模式模拟的大气温度和相对湿度与观测数据吻合良好, R 分别为 0.85 和 0.67, NMB 分别为 -1.6% 和 10.5%. 不同的地表层和边界层参数化方案可能会影响模拟的近地表水分通量. 这些方案的设置可以部分解释观测和模拟之间的 RH_2 偏差^[41]. 但模式对近地面风场的模拟能力较差 [图 2(b)], 主要表现为高估的风速 (NMB = 25.9%), 可能原因是较粗的网格分辨率 (27 km) 无法真实地刻画地形和下垫面数据的影响^[42-43]. 风速的高估也同样出现在其他的 WRF-Chem 模式研究工作中^[44-48]. 模式模拟的 O_3 浓度与观测值具有很好的一致性, R 可达到 0.88 [图 2(d)], 但模式对于观测值大于 $120 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 的 O_3 浓度存在持续的低估现象, 可能原因与 WRF-Chem 模式模拟气象条件的偏差有关, 如对温度的低估和对风速的高估^[49, 50]. 不完整的 VOCs 排放清单很大程度上也会导致模型对 O_3 浓度的低估^[51].

表 3 详细验证了 WRF-Chem 模式对 4 个省市 (北京、天津、河北和山东) 气象场和 O_3 浓度的模拟能力. 模式模拟的 T_2 、 RH_2 、 WS_{10} 和 O_3 浓度的 R

分别为 0.66 ~ 0.88、0.57 ~ 0.69、0.16 ~ 0.49 和 0.76 ~ 0.83, NMB 分别为 -11.2% ~ 2.2%、-6.2% ~ 35.9%、6.5% ~ 68.8% 和 -19.1% ~ -5.5%。总之, WRF-Chem 能够较好地再现华北地区 2017 年 6 月气象要素和 O_3 浓度的逐日变化特征。

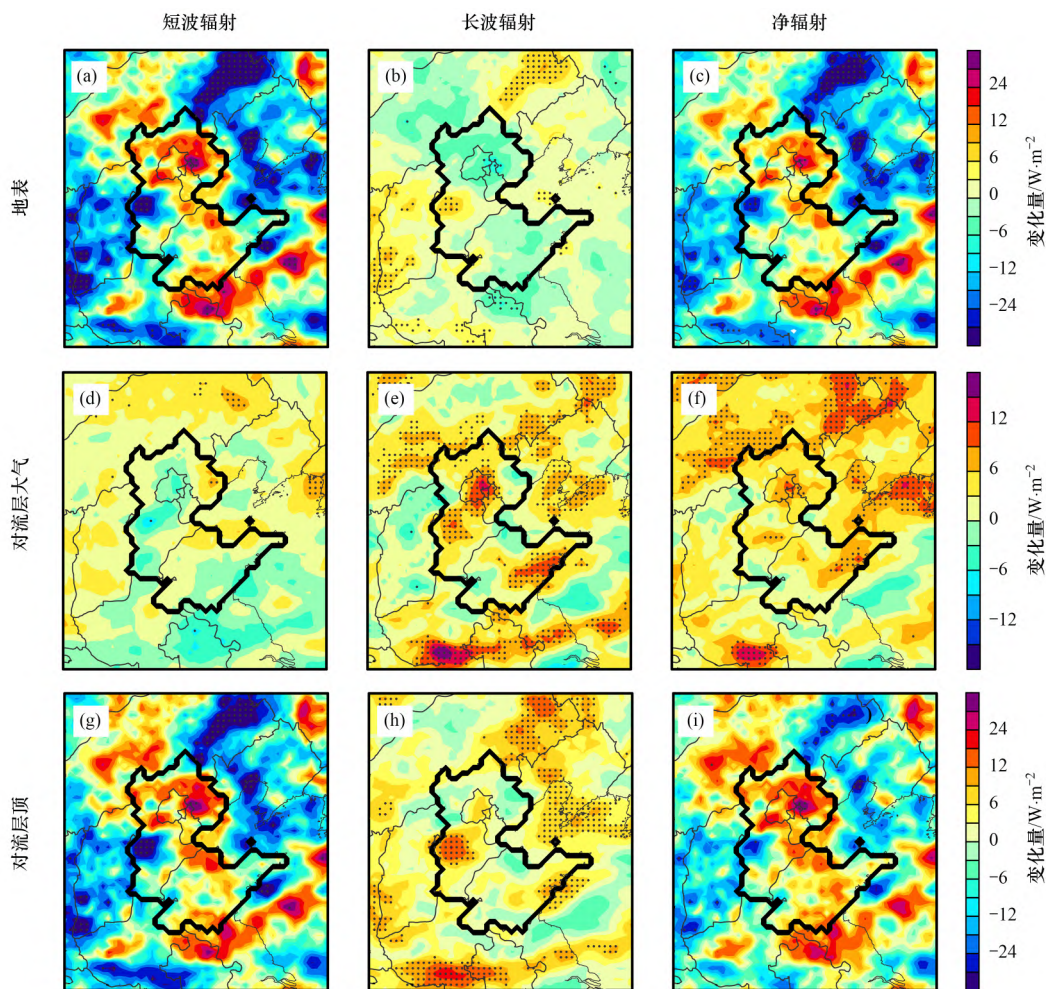
本研究主要探讨对流层 O_3 的辐射效应, 尤其是针对白天高 O_3 浓度和强太阳辐射情况下的对流层 O_3 的辐射强迫影响。因此, 进一步验证了 WRF-Chem 模式对白天(10:00 ~ 18:00)气象条件和 O_3 浓度的模拟能力, 以及对比量化了考虑 TORF 后模式模拟性能的改善情况。表 4 详细总结了 CTL 试验和 NoTORF 试验对全天和白天观测结果的验证情况。可以发现, 相较于全天的模拟结果, 模式略微低估(高估)了白天的气温(相对湿度), 但显著提高了对 O_3 的模拟能力(全天的 NMB 为 -17.1%, 白天的 NMB 为 1.1%)。与此同时, 对比于 NoTORF 试验的模拟结果, 考虑 TORF 后, 无论是气象要素还是 O_3 浓度的模拟偏差都有较好改善。

综上所述, WRF-Chem 模式能较好再现 2017 年 6 月华北地区气象要素和 O_3 浓度的时空演变特征, 尤其是当考虑 TORF 的影响后, 模式的模拟性能进一步得到提升。

3 结果与讨论

3.1 对流层臭氧辐射强迫对辐射通量的影响

O_3 作为辐射活性气体, 既可以吸收太阳短波辐射, 也可以吸收地面长波辐射, 从而改变地气的辐射通量平衡。图 3 为 2017 年 6 月白天时段(10:00 ~ 18:00)对流层臭氧辐射强迫对地表、对流层大气和对流层顶短波辐射、长波辐射和净辐射影响的空间分布。可以发现, TORF 能够使研究区域内的地表短波辐射通量和地表净辐射通量平均增加 $2.05 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$ 和 $1.25 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$, 但减少地表长波辐射 $0.80 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$ 。地表短波辐射通量的增加主要是因为降水量的减少。TORF 能够显著增加对流层大气的净辐射通量 ($3.99 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$), 其中变化的长波辐射贡献



黑色点阵表示超过 90% 显著性区域; 目标分析区域(北京、天津、河北和山东)的辐射通量变化量平均值 ($\text{W}\cdot\text{m}^{-2}$) 分别为 2.05 (a)、-0.80 (b)、1.25 (c)、0.26 (d)、3.73 (e)、3.99 (f)、2.31 (g)、2.93 (h) 和 5.24 (i)

图 3 2017 年 6 月白天时段(10:00 ~ 18:00) 对流层臭氧辐射强迫对辐射通量的影响

Fig. 3 Impacts of tropospheric ozone radiative forcing on radiative flux during daytime (10:00-18:00) in June 2017

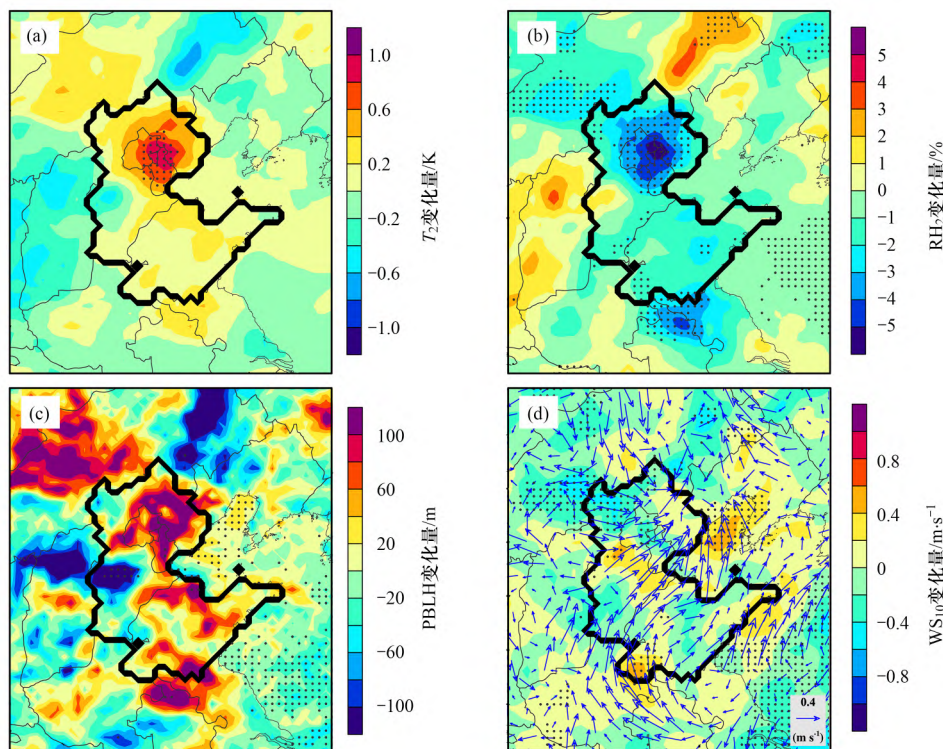
93.5%。对流层 O_3 作为温室气体,吸收热量后能够释放长波辐射.因此,当考虑 TORF 后,对流层大气的长波辐射明显增加[图 3(e)].对流层顶辐射通量的变化情况和地表层一致,其中短波辐射的增加主要出现在华北平原的北部,长波辐射的增加主要集中在河北的南部.对流层顶平均净辐射通量增加

表 4 考虑 TORF 和不考虑 TORF 对气象要素和 O_3 浓度模拟效果的评估¹⁾ /%

Table 4 Evaluation of simulation effects on meteorological elements and ozone concentrations between considering TORF and not considering TORF /%

项目	全天(00:00~23:00)		白天(10:00~18:00)	
	CTL	NoTORF	CTL	NoTORF
T_2	-1.6	-2.4	-7.3	-8.2
RH ₂	10.5	13.5	26.2	31.2
WS ₁₀	25.9	27.8	15.3	15.9
O_3 浓度	-17.1	-18.8	1.1	-1.5

1) 数值为 NMB



黑色点阵表示超过 90% 显著性区域; 目标分析区域(北京、天津、河北和山东)的对应指标变化量平均值分别为: 0.23 K (a)、-1.84% (b)、27.73 m (c) 和 $-0.02 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ (d)

图 4 2017 年 6 月白天时段(10:00~18:00) 对流层臭氧辐射强迫对气象场的影响

Fig. 4 Impacts of tropospheric ozone radiative forcing on meteorological fields during the daytime (10:00-18:00) in June 2017

3.3 对流层臭氧辐射强迫对近地面 O_3 浓度的反馈影响

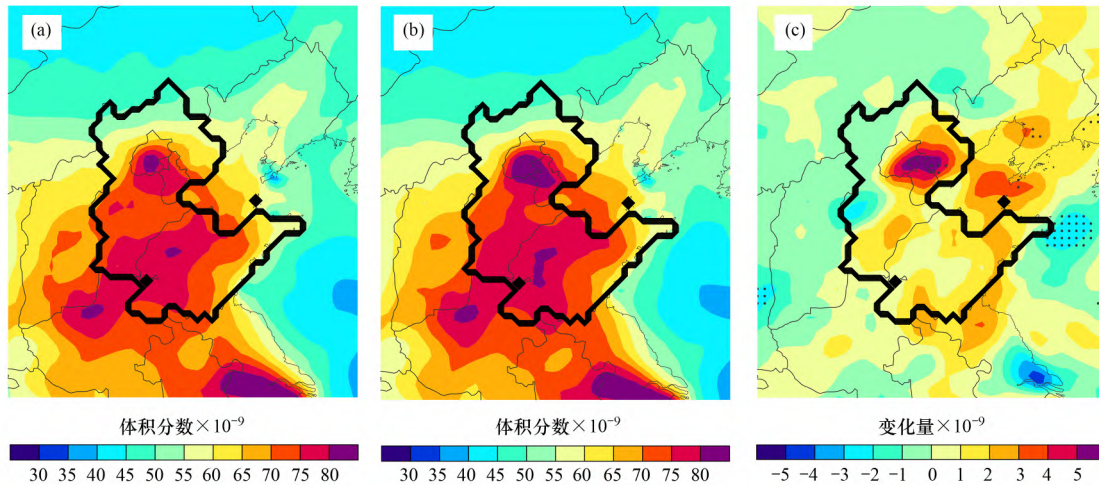
WRF-Chem 模式是双向耦合的大气化学模式,当模式考虑对流层臭氧辐射强迫对近地面气象场的影响后,改变的气象变量也会对 O_3 浓度产生反馈影响.图 5 展示了华北地区 2017 年 6 月白天时

为 $5.24 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$.

3.2 对流层臭氧辐射强迫对气象场的影响

对流层臭氧辐射强迫改变地气辐射通量平衡后会进一步影响近地面气象场.图 4 为 TORF 对 T_2 、RH₂、边界层高度(PBLH)和 WS₁₀影响的空间分布.观察图 4(a) 可以发现,近地面气温升高的区域与地表净辐射通量增加的地区基本吻合,高值主要出现在北京和天津,最大增温达 0.8 K,研究区域内的平均增温 0.23 K. TORF 增加近地面气温的同时,使近地面相对湿度降低,区域平均变化值为 -1.84% [图 4(b)]. 温度增加促进垂直方向的湍流运动,因此边界层高度升高[图 4(c)],平均增加 2% 左右 (27.73 m). TORF 对风速的影响不明显,区域平均的变化值为 $-0.02 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$,但在温度显著升高的地区存在气流的辐合[图 4(d)],有利于将周边的大气污染物传输至北京和天津等地区.

段近地面 O_3 的空间分布情况,并量化了 TORF 对 O_3 浓度的反馈影响.分析 NoTORF 试验的模拟结果可知[图 5(a)],华北地区的 O_3 污染较为严重,区域平均 $\varphi(O_3)$ 为 69.21×10^{-9} ,污染最高的北京地区可超过 80×10^{-9} .当进一步考虑 TORF 影响后,分析区域内的 $\varphi(O_3)$ 进一步升高[图 5(b)],



(a) NoTORF 试验 (b) CTL 试验 (c) CTL 试验减去 NoTORF 试验; 黑色点阵表示超过 90% 显著性区域; 目标分析区域 (北京、天津、河北和山东) 的体积分数平均值分别为: 69.21×10^{-9} (a)、 70.44×10^{-9} (b) 和 1.23×10^{-9} (c)

图 5 2017 年 6 月白天时段 (10:00 ~ 18:00) 近地面 O₃ 体积分数的空间分布

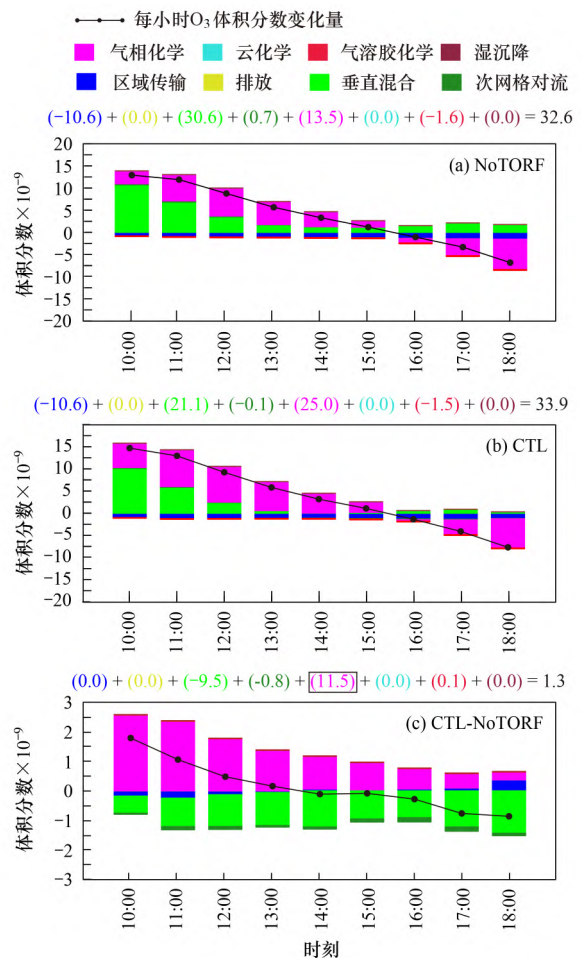
Fig. 5 Spatial distributions of near-ground ozone volume fraction during daytime (10:00-18:00) in June 2017

平均增加 1.7% (1.23×10^{-9}), 尤其是在污染严重的北京和天津地区, $\varphi(O_3)$ 的增加量最高可达 5×10^{-9} [图 5(c)], 可能原因是 TORF 增加大气温度进而促进了 O₃ 的化学生成, 以及 TORF 引起的西南风异常将华北平原南部的 O₃ 污染输送至北京和天津地区 [图 4(d)], 最终进一步加剧此处 O₃ 污染.

3.4 过程诊断分析对流层臭氧辐射强迫的影响机制

对流层臭氧辐射强迫对近地面 O₃ 浓度存在正的反馈影响, 尤其体现在 O₃ 浓度升高的 6 月 25 ~ 30 日. 故此, 本文以 2017 年 6 月 25 ~ 30 日的白天作为研究时段, 通过 WRF-Chem 模式耦合的过程诊断分析方法, 定量诊断 NoTORF 试验和 CTL 试验模拟的华北地区 10:00 ~ 18:00 的小时 O₃ 浓度演变过程中各个物理化学过程的贡献, 并进一步确定考虑 TORF 后, 主导近地面 O₃ 浓度升高的主要物理化学过程.

从图 6(a) 可以发现, NoTORF 试验下白天 $\varphi(O_3)$ 变化量为 32.6×10^{-9} [即 $\varphi(O_3)$ 从 10:00 ~ 18:00 增加了 32.6×10^{-9}], 主要贡献来自于垂直混合 (30.6×10^{-9}) 和气相化学反应 (13.5×10^{-9}) 使 O₃ 体积分数增加. 当考虑对流层 O₃ 的辐射反馈影响后, 白天 $\varphi(O_3)$ 的变化量升高至 33.9×10^{-9} [图 6(b)], 相较于 NoTORF 试验, 进一步增加了 1.3×10^{-9} [图 6(c)]. 从过程分析的角度来讲, 更多的气相化学反应生成 (NoTORF 试验下为 13.5×10^{-9} , CTL 试验下为 25.0×10^{-9}) 是 TORF 对近地面 O₃ 体积分数存在正反馈影响的主导过程 [图 6(c)].



彩色数字表示对应颜色的物理/化学过程所引起的白天时段 O₃ 体积分数总变化量 $\times 10^{-9}$; 黑色方框表示最主要正贡献

图 6 2017 年 6 月白天时段 (10:00 ~ 18:00) 过程诊断分析法所得各物理/化学过程对每小时 O₃ 体积分数变化量的贡献

Fig. 6 Contribution of each physical/chemical process to the hourly variation in ozone volume fraction obtained using process diagnostic analysis during daytime (10:00-18:00) in June 2017

3.5 讨论

Li 等^[19]利用区域气候模型 RegCM4 发现夏季中国对流层 O₃ 浓度增加会导致夏季风增强和降水增加. 而在未来气候变暖的情景下, 我国东部对流层 O₃ 浓度将进一步升高^[52]. 定量预估气候变化下, 增加的对流层 O₃ 浓度所改变的辐射强迫对降水和环流场的影响, 有助于进一步探究在未来情景下对流层臭氧辐射强迫对气候的反馈影响, 这也是笔者在本文基础之上开展的下一步研究.

4 结论

(1) 对流层臭氧辐射强迫 (TORF) 使北京、天津、河北和山东区域内地表的短波辐射通量和净辐射通量平均增加 $2.05 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$ 和 $1.25 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$, 地表长波辐射减少 $0.80 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$. TORF 显著增加对流层大气的净辐射通量 ($3.99 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$), 其中短波辐射通量增加 $0.26 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$, 长波辐射通量增加 $3.73 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$. 对流层顶的辐射通量变化情况和地表层一致, 对流层顶平均净辐射通量增加为 $5.24 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}$.

(2) 考虑 TORF 影响后, 近地面气温在研究区域内平均增温 0.23 K , 最大增温达 0.8 K , 主要出现在北京和天津地区. TORF 使近地面相对湿度平均降低 1.84% 、边界层高度平均增加 27.73 m . TORF 对风速影响不明显 ($-0.02 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$), 但使风向改变. 异常的西南风可能会将华北平原南部的 O₃ 及其前体物输送至北京和天津地区, 加剧华北地区的 O₃ 污染.

(3) 考虑 TORF 影响后, 研究区域内的 $\varphi(\text{O}_3)$ 进一步升高, 平均增加约 1.7% (1.23×10^{-9}), 尤其是在污染严重的北京和天津地区, $\varphi(\text{O}_3)$ 的增加量最高可达 5×10^{-9} .

(4) 进一步利用过程诊断分析方法探究 TORF 恶化近地面 O₃ 污染的主要物理化学过程, 并发现在 O₃ 浓度升高的 6 月 25 ~ 30 日期间, 更强的气相化学反应是引入对流层臭氧辐射强迫后研究区域内近地面 O₃ 浓度升高的主导原因.

参考文献:

- [1] Sillman S. The relation between ozone, NO_x and hydrocarbons in urban and polluted rural environments [J]. *Atmospheric Environment*, 1999, **33**(12): 1821-1845.
- [2] Kleinman L I, Daum P H, Lee Y N, *et al.* Ozone production efficiency in an urban area [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2002, **107** (D23), doi: 10.1029/2002JD002529.
- [3] Feng Z Z, De Marco A, Anav A, *et al.* Economic losses due to ozone impacts on human health, forest productivity and crop yield across China [J]. *Environment International*, 2019, **131**, doi: 10.1016/j.envint.2019.104966.
- [4] Anenberg S C, Horowitz L W, Tong D Q, *et al.* An estimate of

the global burden of anthropogenic ozone and fine particulate matter on premature human mortality using atmospheric modeling [J]. *Environmental Health Perspectives*, 2010, **118**(9): 1189-1195.

- [5] Van Dingenen R, Dentener F J, Raes F, *et al.* The global impact of ozone on agricultural crop yields under current and future air quality legislation [J]. *Atmospheric Environment*, 2009, **43**(3): 604-618.
- [6] Wittig V E, Ainsworth E A, Naidu S L, *et al.* Quantifying the impact of current and future tropospheric ozone on tree biomass, growth, physiology and biochemistry: a quantitative meta-analysis [J]. *Global Change Biology*, 2009, **15**(2): 396-424.
- [7] Li P, Feng Z Z, Catalayud V, *et al.* A meta-analysis on growth, physiological, and biochemical responses of woody species to ground-level ozone highlights the role of plant functional types [J]. *Plant, Cell & Environment*, 2017, **40**(10): 2369-2380.
- [8] Tai A P K, Martin M V, Heald C L. Threat to future global food security from climate change and ozone air pollution [J]. *Nature Climate Change*, 2014, **4**(9): 817-821.
- [9] 张华, 王菲, 赵树云, 等. IPCC AR6 报告解读: 地球能量收支、气候反馈和气候敏感度 [J]. *气候变化研究进展*, 2021, **17**(6): 691-698.
- Zhang H, Wang F, Zhao S Y, *et al.* Earth's energy budget, climate feedbacks, and climate sensitivity [J]. *Climate Change Research*, 2021, **17**(6): 691-698.
- [10] Myhre G, Shindell D, Bréon F M, *et al.* Anthropogenic and natural radiative forcing [A]. In: Stocker T F, Qin D, Plattner G K, *et al.* (Eds.). *Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change* [M]. Cambridge: Cambridge University Press, 2013.
- [11] Dentener F, Stevenson D, Ellingsen K, *et al.* The global atmospheric environment for the next generation [J]. *Environmental Science & Technology*, 2006, **40**(11): 3586-3594.
- [12] Pozzoli L, Janssens-Maenhout G, Diehl T, *et al.* Re-analysis of tropospheric sulfate aerosol and ozone for the period 1980-2005 using the aerosol-chemistry-climate model ECHAM5-HAMMOZ [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2011, **11**(18): 9563-9594.
- [13] Dang R J, Liao H. Radiative forcing and health impact of aerosols and ozone in China as the consequence of Clean Air Actions over 2012-2017 [J]. *Geophysical Research Letters*, 2019, **46**(21): 12511-12519.
- [14] 吴润, 蒋维楣, 刘红年, 等. 我国对流层臭氧增加对气温的影响 [J]. *高原气象*, 2003, **22**(2): 132-142.
- Wu J, Jiang W M, Liu H N, *et al.* The effect of increased tropospheric ozone on temperature in China [J]. *Plateau Meteorology*, 2003, **22**(2): 132-142.
- [15] 王卫国, 吴润, 刘红年, 等. 中国及邻近地区污染排放对对流层臭氧变化与辐射影响的研究 [J]. *大气科学*, 2005, **29**(5): 734-746.
- Wang W G, Wu J, Liu H N, *et al.* Researches on the influence of pollution emission on tropospheric ozone variation and radiation over China and its adjacent area [J]. *Chinese Journal of Atmospheric Sciences*, 2005, **29**(5): 734-746.
- [16] Fu Y, Liao H, Yang Y. Interannual and decadal changes in tropospheric ozone in China and the associated chemistry-climate interactions: a review [J]. *Advances in Atmospheric Sciences*, 2019, **36**(9): 975-993.
- [17] Xie B, Zhang H, Wang Z L, *et al.* A modeling study of effective

- radiative forcing and climate response due to tropospheric ozone [J]. *Advances in Atmospheric Sciences*, 2016, **33**(7): 819–828.
- [18] Roy C, Fadnavis S, Müller R, *et al.* Influence of enhanced Asian NO_x emissions on ozone in the upper troposphere and lower stratosphere in chemistry-climate model simulations [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2017, **17**(2): 1297–1311.
- [19] Li S, Wang T J, Zanis P, *et al.* Impact of tropospheric ozone on summer climate in China [J]. *Journal of Meteorological Research*, 2018, **32**(2): 279–287.
- [20] 蒲茜. 长三角高温热浪期间臭氧的形成机理及辐射效应研究 [D]. 南京: 南京大学, 2017.
Pu X. Analysis of elevated ozone formation mechanism and radiative effect during heat waves in Yangtze River Delta [D]. Nanjing: Nanjing University, 2017.
- [21] 周彦丽. 东亚对流层 O₃ 对夏季气温影响的数值模拟研究 [D]. 南京: 南京信息工程大学, 2010.
- [22] Chang W Y, Liao H, Wang H J. Climate responses to direct radiative forcing of anthropogenic aerosols, tropospheric ozone, and long-lived greenhouse gases in Eastern China over 1951–2000 [J]. *Advances in Atmospheric Sciences*, 2009, **26**(4): 748–762.
- [23] 石广玉. 大气微量气体的辐射强迫与温室气候效应 [J]. *中国科学 B 辑*, 1991, **21**(7): 776–784.
- [24] 中国清洁空气政策伙伴. 中国碳中和与清洁空气协同路径 [R]. 北京: 能源基金会, 2021.
- [25] Ma X D, Huang J P, Zhao T L, *et al.* Rapid increase in summer surface ozone over the North China Plain during 2013–2019: a side effect of particulate matter reduction control? [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2021, **21**(1): 1–16.
- [26] 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.
- [27] Gong C, Liao H, Yue X, *et al.* Impacts of ozone-vegetation interactions on ozone pollution episodes in North China and the Yangtze River Delta [J]. *Geophysical Research Letters*, 2021, **48**(12), doi: 10.1029/2021GL093814.
- [28] Grell G A, Peckham S E, Schmitz R, *et al.* Fully coupled “online” chemistry within the WRF model [J]. *Atmospheric Environment*, 2005, **39**(37): 6957–6975.
- [29] Chapman E G, Gustafson W I J, Easter R C, *et al.* Coupling aerosol-cloud-radiative processes in the WRF-Chem model: investigating the radiative impact of elevated point sources [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2009, **9**(3): 945–964.
- [30] Li M, Zhang Q, Kurokawa J I, *et al.* MIX: a mosaic Asian anthropogenic emission inventory under the international collaboration framework of the MICS-Asia and HTAP [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2017, **17**(2): 935–963.
- [31] Guenther A, Karl T, Harley P, *et al.* Estimates of global terrestrial isoprene emissions using MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature) [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2006, **6**(11): 3181–3210.
- [32] Wiedinmyer C, Akagi S K, Yokelson R J, *et al.* The Fire INventory from NCAR (FINN): a high resolution global model to estimate the emissions from open burning [J]. *Geoscientific Model Development*, 2011, **4**(3): 625–641.
- [33] Shao Y P. Simplification of a dust emission scheme and comparison with data [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2004, **109**(D10), doi: 10.1029/2003JD004372.
- [34] Gong S L, Barrie L A, Blanchet J P. Modeling sea-salt aerosols in the atmosphere: 1. Model development [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 1997, **102**(D3): 3805–3818.
- [35] Zaveri R A, Peters L K. A new lumped structure photochemical mechanism for large-scale applications [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 1999, **104**(D23): 30387–30415.
- [36] Wild O, Zhu X, Prather M J. Fast-J: accurate simulation of in- and below-cloud photolysis in tropospheric chemical models [J]. *Journal of Atmospheric Chemistry*, 2000, **37**(3): 245–282.
- [37] Zaveri R A, Easter R C, Fast J D, *et al.* Model for simulating aerosol interactions and chemistry (MOSAIC) [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2008, **113**(D13), doi: 10.1029/2007JD008782.
- [38] Barnard J C, Fast J D, Paredes-Miranda G, *et al.* Technical note: evaluation of the WRF-Chem “aerosol chemical to aerosol optical properties” module using data from the MILAGRO campaign [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2010, **10**(15): 7325–7340.
- [39] Zhao C, Liu X, Leung L R, *et al.* Radiative impact of mineral dust on monsoon precipitation variability over West Africa [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2011, **11**(5): 1879–1893.
- [40] Chen L, Zhu J, Liao H, *et al.* Assessing the formation and evolution mechanisms of severe haze pollution in the Beijing-Tianjin-Hebei region using process analysis [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2019, **19**(16): 10845–10864.
- [41] Qian Y, Yan H P, Berg L K, *et al.* Assessing impacts of PBL and surface layer schemes in simulating the surface-atmosphere interactions and precipitation over the tropical ocean using observations from AMIE/DYNAMO [J]. *Journal of Climate*, 2016, **29**(22): 8191–8210.
- [42] Zheng G J, Duan F K, Su H, *et al.* Exploring the severe winter haze in Beijing: the impact of synoptic weather, regional transport and heterogeneous reactions [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2015, **15**(6): 2969–2983.
- [43] Yahya K, Wang K, Gudoshava M, *et al.* Application of WRF/Chem over North America under the AQMEII phase 2: part I. Comprehensive evaluation of 2006 simulation [J]. *Atmospheric Environment*, 2015, **115**(40): 733–755.
- [44] Zhang Y, Wen X Y, Jang C J. Simulating chemistry-aerosol-cloud-radiation-climate feedbacks over the continental U. S. using the online-coupled Weather Research Forecasting Model with Chemistry (WRF/Chem) [J]. *Atmospheric Environment*, 2010, **44**(29): 3568–3582.
- [45] Gao Y, Zhang M, Liu Z, *et al.* Modeling the feedback between aerosol and meteorological variables in the atmospheric boundary layer during a severe fog-haze event over the North China Plain [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2015, **15**(8): 4279–4295.
- [46] 廖礼, 漏嗣佳, 符瑜, 等. 中国东部气溶胶在天气尺度上的辐射强迫和对地面气温的影响 [J]. *大气科学*, 2015, **39**(1): 68–82.
Liao L, Lou S J, Fu Y, *et al.* Radiative forcing of aerosols and its impact on surface air temperature on synoptic scale in Eastern China [J]. *Chinese Journal of Atmospheric Sciences*, 2015, **39**(1): 68–82.
- [47] Qiu Y L, Liao H, Zhang R J, *et al.* Simulated impacts of direct radiative effects of scattering and absorbing aerosols on surface layer aerosol concentrations in China during a heavily polluted event in February 2014 [J]. *Journal of Geophysical Research:*

- Atmospheres ,2017 ,**122**(11) : 5955-5975.
- [48] Yang H , Chen L , Liao H , *et al.* Impacts of aerosol-photolysis interaction and aerosol-radiation feedback on surface-layer ozone in North China during multi-pollutant air pollution episodes [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics* ,2022 ,**22**(6) : 4101-4116.
- [49] Hu J L , Chen J J , Ying Q , *et al.* One-year simulation of ozone and particulate matter in China using WRF/CMAQ modeling system [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics* , 2016 , **16** (16) : 10333-10350.
- [50] Wang P F , Qiao X , Zhang H L. Modeling PM_{2.5} and O₃ with aerosol feedbacks using WRF/Chem over the Sichuan Basin , southwestern China [J]. *Chemosphere* , 2020 , **254** , doi: 10.1016/j.chemosphere.2020.126735.
- [51] Zhang Y X , Dubey M K. Comparisons of WRF/Chem simulated O₃ concentrations in Mexico City with ground-based RAMA measurements during the MILAGRO period [J]. *Atmospheric Environment* , 2009 ,**43**(30) : 4622-4631.
- [52] Zhu J , Liao H. Future ozone air quality and radiative forcing over China owing to future changes in emissions under the Representative Concentration Pathways (RCPs) [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* , 2016 , **121** (4) : 1978-2001.

《环境科学》多项引证指标名列前茅

2022年12月29日,中国科学技术信息研究所在中国科技论文统计结果发布会上发布了2021年度中国科技论文统计结果。统计结果显示《环境科学》2021年度总被引频次13 744,影响因子3.317,多项引证指标位居环境科学技术及资源科学技术类科技期刊前列。