科学通报 2015 年 第 60 卷 第 27 期: 2659 ~ 2666
论 文 www.scichina.com csb.scichina.com
《中国科学》杂志社 SCIENCE CHINA PRESS

华北地区对流层臭氧长期变化趋势及影响因子分析

陈希[①②], 黄富祥[②*], 夏学齐[①], 曹静[③], 徐晓斌[④]

① 中国地质大学地球科学与资源学院, 北京 100083;
② 国家卫星气象中心, 北京 100081;
③ 广州气象卫星地面站, 广州 510000;
④ 中国气象科学研究院, 北京 100081
* 联系人, E-mail: huangfx@cma.gov.cn

2015-07-16 收稿, 2015-08-13 接受, 2015-08-27 网络版发表
国家自然科学基金(41275035)和公益性行业(气象)科研专项(GYHY201206015)资助

摘要 利用1979~2013年卫星对流层臭氧遥感数据序列, 分析华北地区对流层臭氧的长期变化趋势, 考察各主要影响因子和对流层顶高度变化对臭氧变化的影响作用. 过去30多年来, 华北地区对流层臭氧长期变化趋势在不同季节差异很大: 夏季对流层臭氧呈现快速增长趋势, 增长率为1.28 DU/10 a; 冬季表现出下降趋势, 下降率为1.46 DU/10 a; 在春季和秋季表现出波动性下降趋势. 对流层臭氧夏季含量最高, 一般在50 DU上下, 春季平均值大约40 DU, 秋季平均值35 DU左右, 冬季含量最小一般在26 DU左右. 对华北地区对流层臭氧分布变化产生显著影响的因子主要有太阳周期(Solar), 厄尔尼诺-南方涛动(ENSO)和准两年振荡(QBO). 其中, Solar的影响幅度可达到5~6 DU, ENSO影响作用1~2 DU, QBO影响一般小于1 DU. 对流层顶高度在年内不同季节存在显著周期变化, 与对流层臭氧变化紧密相关, 相关系数R=0.826, 表明对流层顶高度年周期变化对对流层臭氧产生重要影响. 从年代际时间尺度上, 对流层顶高度不存在显著性变化趋势, 对对流层臭氧变化趋势影响不大.

关键词
华北地区
对流层臭氧
太阳周期
厄尔尼诺-南方涛动
准两年振荡

对流层臭氧是一种重要的污染气体和温室气体, 其生成过程常常与人类活动排放的污染气体光化学反应紧密相连, 并对全球气候变化、人类健康、植物和农作物生长等都产生重要影响[1~3]. 近年来, 发表了大量研究论文考察从地点–地区–区域–全球不同尺度的对流层臭氧长期变化趋势[4~9], 表明对流层臭氧的季节、年际、年代际变化与臭氧光化学反应密切相关, 随着位置的不同而千差万别, 而且还与热力和动力学等其他作用因素有关[6~10]. 对流层臭氧变化趋势分析, 主要依赖于地基观测、臭氧探空、飞机观测、卫星遥感等各种探测手段获得的数据[7~10], 而缺乏长期有效的连续观测数据, 是对流层臭氧长期变化趋势分析面临的一个主要困难[10].

与地基等观测手段相比, 卫星遥感在空间覆盖能力和时间连续性上有着突出的优势. 1990年以来, NASA朗利研究中心(NASA Langley Research Center)基于臭氧总量和垂直廓线的卫星遥感资料, 开展了对流层臭氧遥感数据集建立方法的研究[11~18]. 利用卫星臭氧遥感数据计算生成对流层臭氧, 关键在于确定对流层顶的高度. NASA朗利研究中心提出两种生成对流层臭氧的方法, 主要差异在于对流层顶的确定方法. 第一种方法是对流层云差分方法CCD技术(Convective Cloud Differential Technique), 利用赤道地区对流云顶高度代表对流层顶所在高度, 生成的对流层臭氧数据主要局限于南北纬15°以内范围[14,15]; 第二种方法TOR技术(Tropospheric Ozone Residual method)是对流层臭氧残差方法, 利用卫星观测、臭氧探空等手段确定对流层顶高度, 生成的对

引用格式: 陈希, 黄富祥, 夏学齐, 等. 华北地区对流层臭氧长期变化趋势及影响因子分析. 科学通报, 2015, 60: 2659–2666
Chen X, Huang F X, Xia X Q, et al. Analysis of tropospheric ozone long-term changing trends and affecting factors over northern China (in Chinese). Chin Sci Bull, 2015, 60: 2659–2666, doi: 10.1360/N972015-00155

流层臭氧数据范围在南北纬50°以内[11~14]. CCD和TOR方法主要利用TOMS(Total Ozone Mapping Spectrometer)和SBUV(/2)(Solar Backscatter Ultraviolet Sounder)遥感数据生成对流层臭氧. 此后, TOR方法进一步应用到利用OMI(Aura Ozone Monitoring Instrument)和MLS(Aura Microwave Limb Sounder)遥感数据生成对流层臭氧数据, 使对流层臭氧数据集的时间覆盖得到延伸, 空间覆盖范围也进一步扩展到南北纬60°[16~18]. 这些工作, 为考察全球典型地区对流层臭氧长期变化趋势创造了条件.

近30多年来, 随着中国经济快速发展, 大气污染问题逐渐成为突出的环境问题. 其中, 作为中国重要的工业、农业主产重要基地和政治文化中心的华北地区, 大气环境发生显著变化, 已经成为夏季全球对流层臭氧高浓度中心区域之一, 该地区区域性大气光化学污染及其引起的天气、气候、环境等问题引起了人们高度关注[19~25]. 然而, 这些研究主要依赖基于地表或飞机的臭氧观测手段和数据.

本文利用1979~2013年卫星对流层臭氧长时间序列遥感数据, 考察华北地区对流层臭氧的长期变化趋势, 定量考察各主要影响因子对臭氧变化的影响, 为区域大气环境质量监控提供参考依据.

1 研究区域及使用的数据

本文研究区域华北地区是中国七大地理分区之一, 位于32°~42°N, 110°~120°E之间. 具体范围为大兴安岭以西、青藏高原以东、内蒙古高原以南、秦岭淮河以北; 西邻青藏高原, 东临渤海和黄海, 北与东北地区、内蒙古地区相接. 华北地区集中分布着北京、天津等大型城市, 以及石家庄、唐山、秦皇岛等重要工业城市, 人口稠密, 资源丰富, 是中国重要的工业、农业生成基地, 又是政治、经济、文化中心, 大气环境污染已经成为制约经济社会进一步发展的突出问题.

本文使用的对流层臭氧数据有两种: 一是1979年1月~2005年12月数据来自NASA朗利研究中心Fishman等人[12]利用TOMS/SBUV遥感产品生成的TOR对流层臭氧月平均数据库, 空间分辨率为1°(纬度)×1.25°(经度), 其中1993年5月~1997年7月, 由于缺乏TOMS臭氧总量观测数据或气溶胶订正参数而缺失[26], 本文称之为TOR数据序列. 二是2004年10月~2013年12月数据来自NASA朗利研究中心Ziemke等人[16]利用OMI和MLS遥感产品生成的对流层臭氧月平均数据库, 数据空间分辨率也是1°(纬度)×1.25°(经度), 为了与前者区分, 本文称之为OTOR数据序列.

本文使用的区域对流层顶高度来自NCEP再分析资料月平均数据(http://www.esrl.noaa.gov/psd/data/gridded/data.ncep.reanalysis.html). 太阳辐射周期数据(Solar), 是经过日-地距离订正后的F10.7 cm太阳辐照度月平均值, 来自美国国家地理数据中心(www.ngdc.noaa.gov), 数据量纲为太阳辐射单位(solar flux units, SFU), 1 SFU=10~22 Wm^{-2} Hz^{-1}[27,28]. 厄尔尼诺-南方涛动(ENSO)指数有很多种, 本文使用Ziemke等人[29]和Oman等人[30,31]生成的臭氧ENSO指数(http://acdb-ext.gsfc.nasa.gov/Data_services/cloud_slice/index.html), 该指数专门用于考察对流层臭氧变化的影响, 数据为温度异常值, 单位为K. 准两年振荡(QBO)指数是利用新加坡(1°N, 140°E)带30 hPa高度风速EOF正交分量数据序列, 单位为$m\ s^{-1}$[4].

为了考察华北地区对流层臭氧长期变化趋势, 首先利用TOR和OTOR数据序列2004年10月~2005年12月交叉观测期数据, 考察两个数据序列像元数据的差异性, 并以TOR数据序列为基准, 建立OTOR对TOR的线性回归模型, 生成具有较好一致性的数据序列. 利用线性回归方法按季节分析华北地区对流层臭氧长期变化趋势, 给出各季节对流层臭氧变化趋势的估计值. 然后, 针对月平均对流层臭氧数据的年周期特点, 采用融合不同周期的调和函数的多元回归模型, 拟合月平均和夏季月份对流层臭氧数据序列, 定量考察不同影响因子对臭氧分布变化的影响.

2 华北地区对流层臭氧长期变化趋势分析

2.1 华北地区一致性对流层臭氧数据序列建立

由于遥感仪器、计算方法等方面的差异, 导致不同卫星平台数据之间的差异, 是利用卫星遥感数据进行长时间趋势分析中一个常见的难题[32]. 对流层臭氧相对稳定、生命史较长[10,33], TOMS, SBUV(/2), OMI以及MLS等仪器观测时间差异不会造成观测数据的显著变化, 华北地区TOR和OTOR两种数据在交叉观测期2004年10月~2005年12月的数据序列对比显示两种数据存在较大差异, 可以认为它们生成的TOR和OTOR数据差异主要来自于仪器观测值的不

同. 在仪器性能稳定的假设下, 可以利用TOR和OTOR交叉观测期的像元数据, 建立OTOR数据对TOR的逐月订正模型, 并利用该模型对2006年以后的OTOR数据进行订正, 从而建立具有较好一致性的对流层臭氧数据序列(图1).

从图1中可见, 经过订正计算后建立的华北地区对流层臭氧月平均数据序列具有较好的一致性, 这是进行长期变化趋势分析的基础.

2.2 华北地区对流层臭氧长期变化趋势分析

为了考察华北地区对流层臭氧长期变化趋势, 利用滑动平均、线性拟合等方法进行了各季节的变化趋势分析(图2).

从图中可见, 1979年以来华北地区对流层臭氧的变化在不同季节表现出不同的特征. 其中, 夏季对流层臭氧表现出增长趋势, 增长率为1.28 DU/10 a, 冬季表现出下降趋势, 下降率为1.46 DU/10 a, 其他两个季节尽管也表现出一定程度的下降趋势, 但是主要表现出波动性特征、波动中下降趋势. 分析结果表明, 华北地区夏季对流层臭氧在过去30多年呈现出显著增长趋势, 这可能与人们活动排放的NO_x和挥发性有机物增加有关[34,35]. 人为排放NO_x, VOC的增加, 结合高温、少风等有利气象条件, 强化了对流层臭氧光化学反应, 可能是导致华北地区夏季对流层臭氧迅速增加的重要原因[34,35]. 冬季对流层臭氧表现出明显下降趋势、春季和秋季对流层臭氧表现出波动性下降趋势, 可能与该区域能源结构变化等因素使大气污染状况有所改善有关.

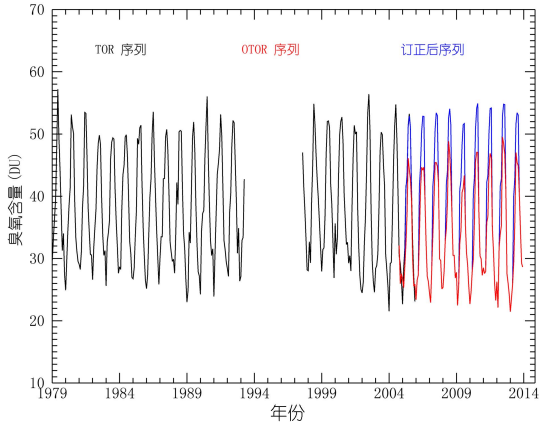


图 1 华北地区 1979~2013 年具有一致性的对流层臭氧数据序列

Figure 1 Construction of consistent monthly mean tropospheric ozone time series during 1979–2013 over northern China

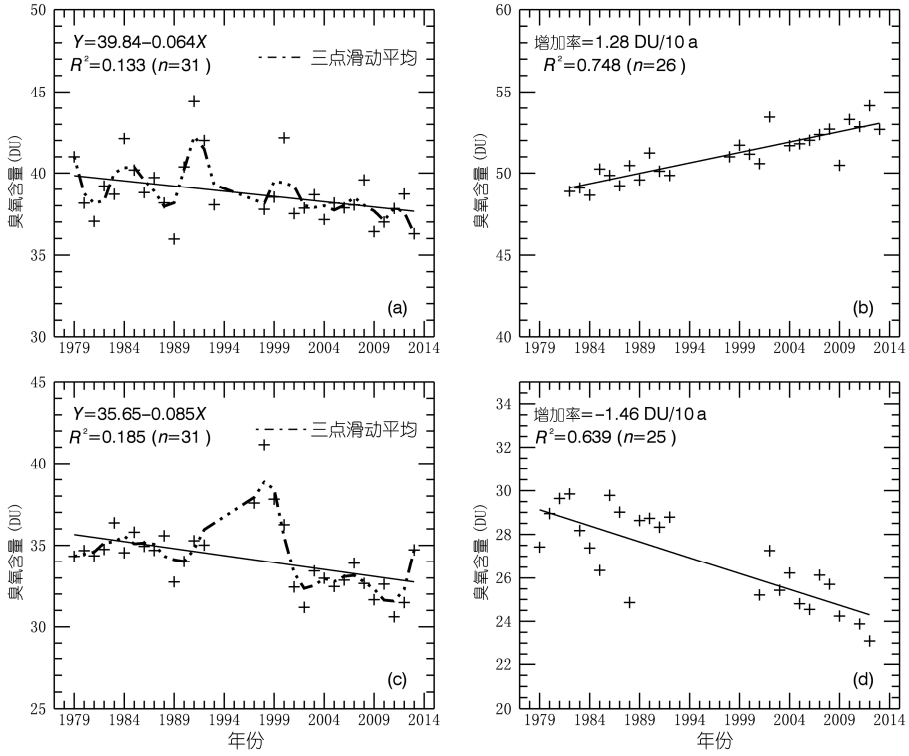


图 2 华北地区对流层臭氧不同季节变化趋势分析. (a) 春季, (b) 夏季, (c) 秋季, (d) 冬季

Figure 2 Analysis of tropospheric ozone seasonal trends over northern China. (a) Spring, (b) summer, (c) autumn, (d) winter

3 华北地区对流层臭氧影响因子分析

为了进一步定量考察各种影响因子在华北地区对流层臭氧长期变化中的作用，借鉴前人常用的多元线性回归分析方法，主要考虑Solar，QBO，ENSO等影响因子[16,17,29]. 其中，太阳紫外辐射强度变化通过对氧分子光解和臭氧分子形成、臭氧光化学反应等多种作用途径影响平流层和对流层臭氧[4,26,36,37]. QBO指数主要代表赤道对流层动力输送作用过程对臭氧的影响，动力过程还通过影响平流层臭氧输送改变进入对流层的UV辐射而间接影响对流层臭氧变化[4]. 赤道太平洋ENSO表征着行星尺度海洋表面温度与洋流、表面气压、大气温度、风、云、降水，以及对流层痕量气体等的年际波动，本文使用的ENSO参数是Ziemke等人[29]和Oman等人[30,31]利用卫星臭氧数据生成的专门用于考察对流层臭氧变化的ENSO指数. 下文将在建立多元回归模型的基础上，定量考察各种因子对华北地区对流层臭氧影响作用.

华北地区对流层臭氧影响因子分析采用如下模型[4,35]:

$$\mathrm{TOZ}(t)=\alpha(t)+\chi(t)\mathrm{QBO}(t)+\gamma(t)\mathrm{Solar}(t)+\delta(t)\mathrm{ENSO}(t)+\varepsilon, \quad (1)$$

$$\alpha=c_0+\sum_{j=1}^{3}[c_j\cos(2\pi jt/12)+s_j\sin(2\pi jt/12)], \quad (2)$$

$$\chi(t)=c_0+\sum_{j=1}^{2}[c_j\cos(2\pi jt/12)+s_j\sin(2\pi jt/12)], \quad (3)$$

其中，t为月份数(t=1,2,⋯,420对应1979年1月~2013年12月)，α，χ，γ和δ是时间变量的回归系数. 鉴于对流层臭氧周期性变化特征，综合采用周期分别为12，6，4个月的调和函数形式来模拟臭氧的周期性变化. 其中，常数项代表华北地区对流层臭氧基本的年周期变化特征，α采用形如式(2)的调和函数来拟合，其中，c_0，c_j，s_j均为常数；回归系数$\chi(t)$，$\gamma(t)$，$\delta(t)$分别采用形如式(3)的调和函数来拟合，ε为观测数据与模拟计算的残差项.

Ziemke等人[29]和Oman等人[30,31]采用随时间的线性增加项表示对流层臭氧的年际增长趋势. 但是，本文季节趋势分析表明华北地区对流层臭氧并不存在固定的增长或下降趋势，而是表现为震荡性波动. 在回归计算结果表明Solar，QBO和ENSO的影响作用存在6个月的时间滞后效应. 这与热带地区3个月时滞也有所不同[4]，表明因子的影响作用时间滞后效应与区域纬度位置有关，赤道地区时间滞后3个月，而北半球中纬度华北地区时间滞后6个月.

图3给出利用华北地区对流层臭氧时间序列与多元回归模型计算结果的对比. 对多元回归分析模型各因子和常数项的显著性检验表明，常数项、Solar和ENSO均通过显著性检验，只有QBO显著性水平稍低.

3.1 华北地区对流层臭氧年变化周期

$\alpha(t)$是具有12个月周期的常数项，代表了华北地区对流层臭氧年周期的平均态(图4)，显示华北地区对流层臭氧的年周期变化的基本特征. 从图中可见，华北地区对流层臭氧1月最小，一般在24 DU左右，从1月开始逐月增大，7月达到最大值，超过50 DU左

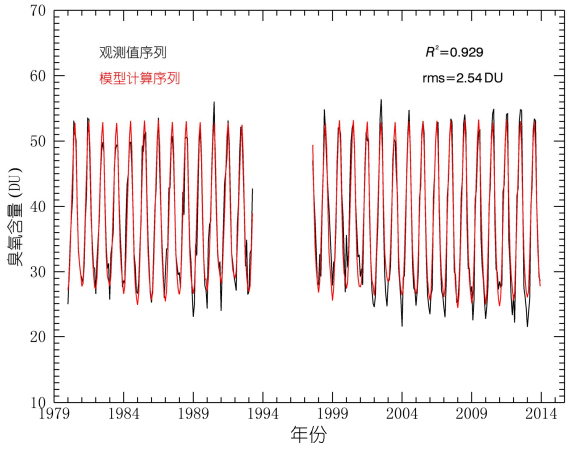


图 3 华北地区对流层臭氧月平均值数据序列及模拟计算结果

Figure 3 Monthly mean tropospheric ozone time series and model calculation over northern China

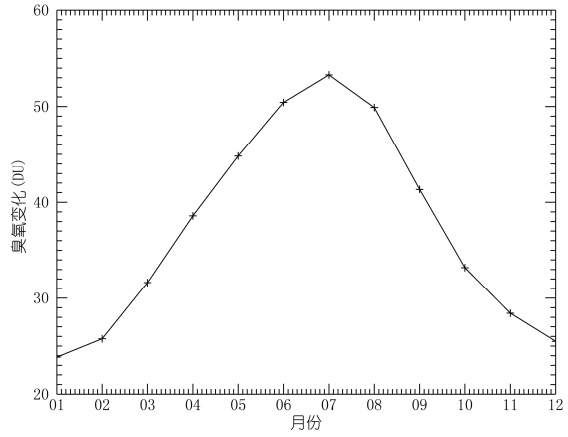


图 4 华北地区对流层臭氧的年周期平均态的基本特征

Figure 4 Characteristics of tropospheric ozone annual cycle over northern China

右, 然后逐渐下降到12月降到25 DU左右. 按季节来看, 对流层最大值是夏季, 一般都在50 DU上下, 其次是春季平均值在40 DU左右, 然后是秋季平均值在35 DU左右, 冬季最小平均值在26 DU左右. 华北地区对流层臭氧数据的年变化, 正是在此平均态上叠加各种因子的影响作用共同决定.

3.2 各因子对华北地区对流层臭氧的影响

图5给出模型计算的各种影响因子对华北地区对流层臭氧的影响. 从图中可见, 1979~2013年太阳辐射变化经历第21, 22, 23太阳周期. 在此期间, 太阳辐射对华北地区对流层臭氧产生的影响随着辐射强度变化而改变, 在太阳辐射峰值期, 强烈的太阳辐射导致臭氧增加, 而在太阳辐射低谷期, 太阳辐射减弱导致臭氧减少. 太阳辐射从低谷到峰值的变化, 导致华北地区对流层臭氧5~6 DU的变化. 在3个因子中, 太阳辐射变化对华北地区对流层臭氧动态的影响作用最大.

ENSO强度变化对华北地区对流层臭氧月平均值产生1~2 DU的影响, 在ENSO为正数的月份大多产生臭氧增加的正效应, 在ENSO为负数的月份产生臭氧减少的负效应, 而且产生的效应与ENSO变化的幅度正相关. ENSO对大气动力、热力和化学作用都产生影响, 而大气平流层环流变化可以对对流层臭氧尤其是下平流层臭氧变化产生重要影响[38,39].

QBO的变化对华北地区对流层臭氧的影响最小, 一般在1 DU以内. 在QBO的作用效应方面, 平流层东风导致臭氧减少, 西风导致臭氧增加.

4 对流层顶高度变化趋势分析及其对对流层臭氧含量的影响

利用NCEP再分析的对流层顶高度数据, 对华北地区进行区域平均, 得到对流层顶月平均数据序列. 采用类似于前文的多元回归模型分析表明, 华北地区对流层顶高度存在着显著的年周期变化特征, 这种年周期变化与对流层臭氧值的年周期特征紧密相关(图6).

从图中可见, 在华北地区对流层顶高度与对流层臭氧的年周期变化紧密相关, R=0.826, 表明该地区对流层高度的年周期变化是导致对流层臭氧含量

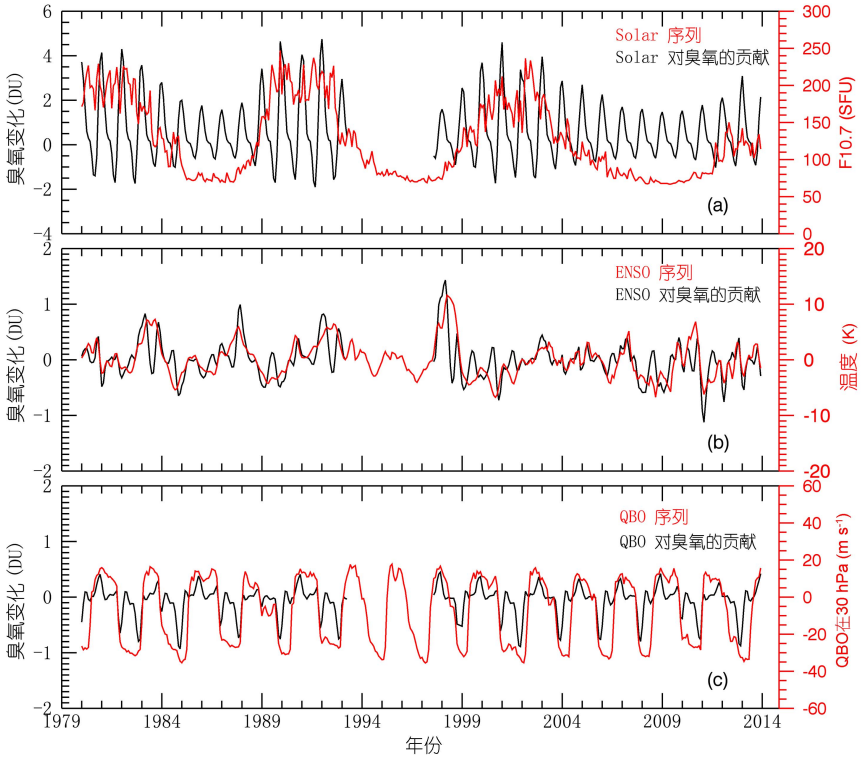


图 5 各种因子对华北地区对流层臭氧变化的影响作用. (a) Solar 的贡献, (b) ENSO 的贡献, (c) QBO 的贡献

Figure 5 Contributions of affecting factors on tropospheric ozone over northern China. (a) Contribution of solar flux, (b) contribution of ENSO, (c) contribution of QBO

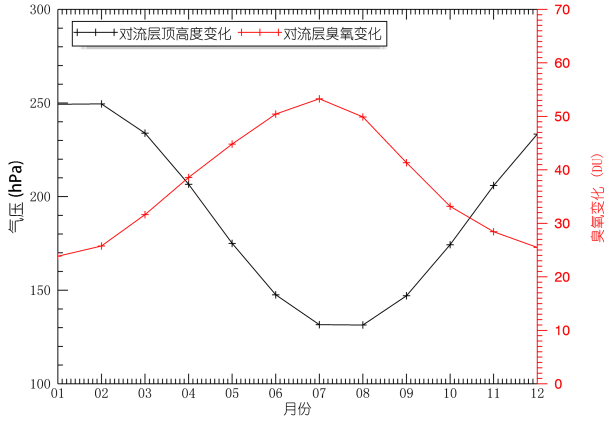


图 6 华北地区对流层顶高度和对流层臭氧的年周期变化特征

Figure 6 Annual cycle of tropopause height and tropospheric ozone over northern China

季节变化的一个重要因素.

对流层顶高度长期变化趋势分析表明, 华北地区对流层顶高度不存在显著的年代际变化趋势, 对流层顶高度变化对该区域对流层臭氧年代际变化的影响可以忽略不计.

5 结论

本文利用1979~2013年卫星对流层臭氧遥感数据, 考察了华北地区对流层臭氧长期变化趋势, 利用多元回归分析、调和函数拟合等方法, 定量模拟计算了多种因子对臭氧变化的影响作用. 主要结论如下.

(1) NASA朗利研究中心生成的TOR(利用TOMS和SBUV(/2)数据生成)和OTOR(利用OMI和MLS数据生成)对流层臭氧月平均数据在华北地区交叉观测期间存在较大差异, 特别是在4~8月差异可达到5~9 DU. 本文基于像元数据, 建立的OTRO数据对TOR的订正模型, 建立统一的长时间序列具有较好的一致性, 可用于区域长期变化趋势和因子影响作用定量分析.

(2) 趋势分析表明, 过去的30多年来, 华北地区对流层臭氧夏季呈现快速增长趋势, 增长率为1.28 DU/10 a, 冬季表现出下降趋势, 下降率为1.46 DU/10 a, 其他两个季节尽管也表现出一定程度的下降趋势, 但是主要表现出波动性特征、波动中呈下降趋势. 华北地区夏季月份对流层臭氧含量的快速增长, 可能与该区域经济快速发展导致的污染物质大量增加, 以及区域对流层温度升高, 导致对流层臭氧光化学反应增强有关.

(3) 采用多元回归分析和调和函数拟合方法, 建立的多元回归模型可以很好地拟合华北地区对流层臭氧变化过程, R^2=0.929, rms=2.54 DU, 显著性分析表明回归模型常数项、Solar和ENSO项都是显著的, 只有QBO项显著性稍差些.

(4) 回归分析结果表明, 华北地区对流层臭氧的年变化周期基本特征是: 1月最小, 一般在24 DU左右, 逐月增大到7月达到最大值, 超过50 DU, 然后逐渐下降到12月25 DU左右. 华北地区对流层臭氧的季节变化特征是: 最大值在夏季, 一般在50 DU上下, 其次是春季平均值在40 DU左右, 然后是秋季平均值在35 DU左右, 冬季最小平均值在26 DU左右.

(5) 华北地区对流层臭氧影响因子主要有Solar, ENSO和QBO, 其中太阳辐射周期Solar的影响从低谷到峰值一般可达到5~6 DU, ENSO的影响作用在1~2 DU, 而QBO的影响一般小于1 DU.

(6) 华北地区对流层顶高度与对流层臭氧有明显的正相关性, 相关系数为0.826. 对流层顶高度不同季节的周期变化会严重影响对流层臭氧的年内周期变化. 同时, 华北地区对流层顶高度不存在显著的年代际变化, 对对流层臭氧值年代际变化影响不大.

致谢 作者衷心感谢NOAA/NESDIS Lawrence E Flynn博士对本文数据处理方法的指导和帮助.

参考文献

1 Mohnen V A, Goldstein W, Wang W C. Tropospheric ozone and climate change. Air Waste, 1993, 43: 1332–1334

2 Kristie L E, Glenn M. Climate change: Tropospheric ozone and particulate matter, and health impacts. Environ Health Perspect, 2008, 116: 1449–1455

3 Ren W, Tian H Q, Tao B, et al. Impacts of tropospheric ozone and climate change on net primary productivity and net carbon exchange of China's forest ecosystems. Glob Ecol Biogeogr, 2011, 20: 391–406

4 Ziemke J R, Chandra S. Seasonal and interannual variabilities in tropical tropospheric ozone. J Geophys Res, 1999, 104: 21425–21442
5 Ziemke J R, Chandra S, Bhartia P K. A new NASA data product: Tropospheric and stratospheric column ozone in the tropics derived from TOMS measurements. Bull Amer Meteorol Soc, 2000, 81: 580–583
6 Cooper O R, Parrish D D, Ziemke J R, et al. Global distribution and trends of tropospheric ozone: An observation-based review. Elem Sci Anth, 2014, 2: 1–28
7 Oltmans S J, Lefohn A S, Harris J M, et al. Long-term changes in tropospheric ozone. Atmos Environ, 2006, 40: 3156–3173
8 Nassar R, Logan J A, Megretskaia I A, et al. Analysis of tropical tropospheric ozone, carbon monoxide, and water vapor during the 2006 El Nino using TES observations and the GEOS-Chem model. J Geophys Res, 2009, 114, doi: 10.1029/2009JD011760
9 Oltmans S J, Lefohn A S, Shadwick D, et al. Recent tropospheric ozone changes: A pattern dominated by slow or no growth. Atmos Environ, 2013, 67: 331–351
10 Lin M, Horowitz L W, Oltmans S J, et al. Tropospheric ozone trends at Mauna Loa observatory tied to decadal climate variability. Nat Geosci, 2014, 7: 136–143
11 Fishman J, Watson C E, Larsen J C, et al. Distribution of tropospheric ozone determined from satellite data. J Geophys Res, 1990, 95: 3599–3617
12 Fishman J, Wozniak A E, Creilson J K. Global distribution of tropospheric ozone from satellite measurements using the empirically corrected tropospheric ozone residual technique: identification of the regional aspects of air pollution. Atmos Chem Phys, 2003, 3: 893–907
13 Fishman J, Creilson J K, Wozniak A E, et al. Interannual variability of stratospheric and tropospheric ozone determined from satellite measurements. J Geophys Res, 2005, 110: D20306
14 Chandra S, Ziemke J R, Martin R V. Tropospheric ozone at tropical and middle latitudes derived from TOMS/MLS residual: Comparison with a global model. J Geophys Res, 2003, 108, doi: 10.1029/2002JD002912
15 Ziemke J R, Chandra S, Bhartia P K. Two new methods for deriving tropospheric column ozone from TOMS measurements: Assimilated UARS MLS/HALOE and convective-cloud differential techniques. J Geophys Res, 1998, 103: 22115–22127
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 Geophys Res, 2006, 111, doi: 10.1029/2006JD007089
17 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. Atmos Chem Phys, 2011, 11: 9237–9251
18 Kulkarni P S, Ghude S D, Bortoli D. Tropospheric ozone trend over three major inland Indian cities: Delhi, Hyderabad and Bangalore. Ann Geophys, 2010, 28: 1879–1885
19 Tang G, Wang Y, Li X, et al. Spatial-temporal variations in surface ozone in Northern China as observed during 2009–2010 and possible implications for future air quality control strategies. Atmos Chem Phys, 2012, 12: 2757–2776
20 Tang G, Li X, Wang Y, et al. Surface ozone trend details and interpretations in Beijing, 2001–2006. Atmos Chem Phys, 2009, 9: 8813–8823
21 Wang Y, Zhang Y, Hao J, et al. Seasonal and spatial variability of surface ozone over China: Contributions from background and domestic pollution. Atmos Chem Phys, 2011, 11: 3511–3525
22 Wang Y, Hao J, McElroy M B, et al. Year round measurements of O_3 and CO at a rural site near Beijing: Variations in their correlations. Tellus, 2010, 62: 228–241
23 Ding A J, Wang T, Thouret V, et al. Tropospheric ozone climatology over Beijing: Analysis of aircraft data from the MOZAIC program. Atmos Chem Phys, 2008, 8: 1–13
24 Wang T, Ding A J, Gao J, et al. Strong ozone production in urban plumes from Beijing China. Geophys Res Lett, 2006, 33, doi: 10.1029/2006GL027689
25 Shen L L, Wang Y X. Changes in tropospheric ozone levels over the three representative regions of China observed from space by the Tropospheric Emission Spectrometer (TES), 2005–2010. Chin Sci Bull, 2012, 57: 2865–2871 [沈路路, 王聿绚. 基于TES观测的2005~2010年间中国3个代表性区域对流层臭氧浓度变化分析. 科学通报, 2012, 57: 1454–1461]
26 Huang F X, Liu N Q, Zhao M X. Solar cycle signal of tropospheric ozone over Tibetan Plateau. Chin J Geophys, 2009, 52: 2201–2209 [黄富祥, 刘年庆, 赵明现. 青藏高原对流层臭氧含量变化的太阳周期活动信号分析. 地球物理学报, 2009, 52: 2201–2209]
27 Deland M T, Cebula R P. Creation of a composite solar ultraviolet irradiance data set. J Geophys Res, 2008, 113: A11103, doi: 10.1029/2008JA013401
28 Huang F X, Jiang Y, Huang G D, et al. Construction of long-time series of solar extreme ultraviolet radiation with F10.7 and Mg II. Chin J Geophys, 2013, 56: 2912–2917 [黄富祥, 江月, 黄光东, 等. 利用F10.7和Mg II构建太阳极紫外辐射长时间序列. 地球物理学报, 2013, 56: 2912–2917]
29 Ziemke J R, Chandra S, Oman L E, et al. A new ENSO index derived from satellite measurements of column ozone. Atmos Chem Phys, 2010, 10: 3711–3721

30 Oman L D, Ziemke J R, Douglass A R, et al. The response of tropical tropospheric ozone to ENSO. Geophys Res Lett, 2011, 38: L13706, doi: 10.1029 /2011GL047865
31 Oman L D, Douglass A R, Ziemke J R, et al. The ozone response to ENSO in Aura satellite measurements and a chemistry-climate simulation. J Geophys Res, 2013, 118: 965976, doi: 10.1029/2012JD018546
32 Sofieva V F, Rahpoe N, Tamminen J, et al. Harmonized dataset of ozone profiles from satellite limb and occultation measurements. Earch Syst Sci Data, 2013, 5: 349–363
33 Stevenson D S, Dentener F J, Schultz M G, et al. Multimodel ensemble simulations of present-day and near-future tropospheric ozone. J Geophys Res, 2006, 111: D08301, doi: 10.1029/2005JD006338
34 Chandra S, Ziemke J R, Tie X, et al. Elevated ozone in the troposphere over the Atlantic and Pacific oceans in the Northern Hemisphere. Geophys Res Lett, 2004, 31: L23102, doi: 10.1029/2004GL020821
35 Richter A, Burrows J P, NüB H, et al. Increase in tropospheric nitrogen dioxide over China observed from space. Nature, 2005, 437: 129–132
36 Randel W J, Cobb J B. Coherent variations of monthly mean total ozone and lower stratospheric temperature. J Geophys Res, 1994, 99: 5433–5447
37 Chandra S, Ziemke J R, Stewart R W. An 11-year solar cycle in tropospheric ozone from TOMS measurements. Geophys Res Lett, 1999, 26: 185–188
38 Sassi F, Innison D K, Boville B A, et al. Effects of El Niño-Southern Oscillation on the dynamical, thermal, and chemical structure of the middle atmosphere. J Geophys Res, 2004, 109, doi: 10.1029/2003JD004434
39 Neu J L, Lury T F, Manney G L, et al. Tropospheric ozone variations governed by changes in stratospheric circulation. Nat Geosci, 2014, doi: 10.1038/NGEO20138

Analysis of tropospheric ozone long-term changing trends and affecting factors over northern China

CHEN Xi[1,2], HUANG FuXiang[2], XIA XueQi[1], CAO Jing[3] & XU XiaoBing[4]

[1] *School of Earth Sciences and Resources, China University of Geosciences, Beijing 100083, China;*
[2] *National Satellite Meteorological Center, Beijing 100081, China;*
[3] *Guangzhou Meteorological Satellite Ground Station, Guangzhou 510000, China;*
[4] *Chinese Academy of Meteorological Sciences, Beijing 100081, China*

The tropospheric ozone is an important pollutant composition and greenhouse gas, of which the generation process is often closely related to the photochemical reaction of pollutant gases discharged by human activities, thereby leading to great influences on global climate change, human health, plant and crop growth, and so on. In this paper, long-time series of tropospheric ozone datasets for the period of 1979–2013 are used to investigate the long-term trends of the tropospheric ozone in northern China, and quantitatively assess the influences of major impact factors on ozone changes, while combining the effects analysis of tropopause height change on the column of the tropospheric ozone during the same period. From the decadal scale, it can be seen that the tropospheric ozone long-term trends in northern China over 30 years showed significant differences in the different seasons. Among them, the summer tropospheric ozone presented a growth trend with the growth rate of 1.28 DU/10 a, while the winter data showed a downward trend with the decline rate of 1.46 DU/10 a, and spring and autumn showed volatility characteristics and downward trend in their fluctuations. From the distribution of the different months of the year, it can be seen that the maximum occurred in the summer, commonly at 50 DU, followed by the mean of the spring at around 40 DU, then the mean of the autumn at about 35 DU. The winter minimum mean is around 26 DU. In northern China the major impact factors of tropospheric ozone include solar, ENSO and QBO. The influence of the solar cycle from trough to peak can generally reach 5–6 DU, the effect of precipitation is 5–6 DU, and the effect of ENSO is 1–2 DU, while that of QBO in most cases is less than 2 DU. The NCEP tropopause height data are used to analyze the northern China tropopause height variation, and the results show that there is no significant change in the northern China tropopause height from the decadal time scale, only a significant variation in the different seasons of the year. It is shown that the changes in tropopause height and tropospheric ozone are closely related, and the correlation coefficient R=0.826. The analysis showed that the tropopause height annual cycle changes had a significant impact on the annual cycle of the tropospheric ozone; however, the tropopause height did not exhibit significant decadal trends, thus having little effect on the tropospheric ozone changing trends at decadal time scale.

northern China, tropospheric ozone, solar, ENSO, QBO

doi: 10.1360/N972015-00155