郭凤霞, 穆奕君, 李扬, 等. 2018. 闪电产生氮氧化物对青藏高原臭氧低谷形成的影响 [J]. 大气科学, 43 (2): 266-276. Guo Fengxia, Mu Yijun, Li Yang, et al. 2019. Effects of nitrogen oxides produced from lightning on the formation of the ozone valley over the Tibetan Plateau [J]. Chinese Journal of Atmospheric Sciences (in Chinese), 43 (2): 266-276, doi:10.3878/j.issn.1006-9895.1804.17256.

## 闪电产生氮氧化物对青藏高原臭氧低谷形成的影响

郭凤霞1 穆奕君1,2 李扬1 王曼霏1 黄兆楚1 曾凡辉1 廉纯皓1

1 南京信息工程大学气象灾害教育部重点实验室/气候与环境变化国际合作联合实验室/气象灾害预报预警与评估协同创新中心/中国气象局气 溶胶与云降水重点开放实验室,南京 210044

2 广西壮族自治区环境保护科学研究院,南宁 530022

**摘 要**为了进一步了解青藏高原闪电的产生氮氧化物(LNO<sub>x</sub>)经由光化学反应对 O<sub>3</sub>浓度变化及夏季 O<sub>3</sub>低谷形成的可能影响,本文利用 2005~2013 年由 OMI 卫星得到的对流层 NO<sub>2</sub> 垂直浓度柱(NO<sub>2</sub> VCD)、O<sub>3</sub> 总浓度柱(TOC)和 O<sub>3</sub> 廓线以及星载光学瞬变探测器 OTD 和闪电成像仪 LIS 获取的总闪电数资料,对青藏高原和同纬度长江中下游地区的 TOC 和 NO<sub>2</sub> VCD 月均值时空分布特征、闪电与 NO<sub>2</sub> VCD 的相关性和 O<sub>3</sub> 的垂直分布特征及其与 LNO<sub>x</sub>的关系进行了对比分析。结果表明,青藏高原的 O<sub>3</sub> 低谷主要出现在夏季和秋季,其 TOC 值比同纬度长江中下游地区低约 10~15 DU (Dobson unit)。青藏高原 NO<sub>2</sub>VCD 总体较小,表现为夏高冬低的分布特征。青藏高原夏季 O<sub>3</sub>浓度受南亚高压的影响总体呈减小趋势,但因强雷暴天气导致对流层中上部 LNO<sub>x</sub>浓度升高,并随强上升气流向对流层顶输送,同时通过光化学反应使 O<sub>3</sub> 浓度增加,缩小了青藏高原和同纬度地区的 O<sub>3</sub> 浓度差,减缓了 O<sub>3</sub> 总浓度的下降,抑制了夏季 O<sub>3</sub> 低谷的进一步深化。

关键词 O3 NO2 青藏高原

文章编号 10063-9895(2019)02-0266-11 **doi:**10.3878/j.issn.1006-9895.1804.17256

中图分类号 P402

文献标识码 A

# Effects of Nitrogen Oxides Produced from Lightning on the Formation of the Ozone Valley over the Tibetan Plateau

GUO Fengxia<sup>1</sup>, MU Yijun<sup>1, 2</sup>, LI Yang<sup>1</sup>, WANG Manfei<sup>1</sup>, HUANG Zhaochu<sup>1</sup>, ZENG Fanhui<sup>1</sup>, and LIAN Chunhao<sup>1</sup>

1 Key Laboratory of Meteorological Disaster, Ministry of Education (KLME)/Joint International Research Laboratory of Climate and Environment Change (ILCEC)/Collaborative Innovation Center on Forecast and Evaluation of Meteorological Disaster (CIC-FEMD)/Key Laboratory for

Aerosol–Cloud–Precipitation of China Meteorological Administration, Nanjing University of Information Science & Technology, Nanjing 210044

2 Guangxi Research Institute of Environmental Protection, Nanning 530022

**Abstract** In order to further study possible influences of the photocatalytic reaction on the formation of  $O_3$  and  $O_3$  valley in the summer over the Tibetan Plateau, NO<sub>2</sub> VCD, O<sub>3</sub> total column and O<sub>3</sub> profiles from OMI and OTD (Optics Transient Detection)/LIS (Lightning Imaging Sensor) total lightning data are used to investigate the spatial and temporal distributions characteristics of TOC and NO<sub>2</sub> VCD, the correlation between lightning and NO<sub>2</sub> VCD, the vertical

收稿日期 2017-10-24; 网络预出版日期 2018-07-25

作者简介 郭凤霞,女,1977年出生,博士,教授,博士生导师,主要从事雷暴电学研究。E-mail: guofx@nuist.edu.cn

通讯作者 穆奕君, E-mail: 20151214351@nuist.edu.cn

资助项目 国家自然科学基金项目 91537209、91644224,国家重点研发计划项目 2017YFC1501503,中国气象科学研究院基本科研业务费专项 2016Z002

Funded by National Natural Science Foundation of China (Grants 91537209, 91644224), National Key Research and Development Program of China (Grant 2017YFC1501503), Basic Scientific Research Operating Expense of CAMS (Chinese Academy of Meteorological Sciences) (Grant 2016Z002)

distribution of  $O_3$  and its relationship with LNO<sub>x</sub> in the Tibetan Plateau and the Yangtze River Delta. Results in the two regions, which are located at the similar latitudes, are compared and analyzed. It is found that the  $O_3$  valley over the Tibetan Plateau mainly appears in the summer and autumn, and its TOC value is about 10–15 DU (Dobson unit) lower than that over the Yangtze River Delta. The NO<sub>2</sub> VCD over the Tibetan Plateau is relatively small, and exhibits a temporal distribution characteristic of low in the summer and high in the winter. The total concentration of  $O_3$  in the Tibetan Plateau generally decreases in the summer due to the effect of the South Asia high. However, due to the influence of strong thunderstorms, the concentration of LNO<sub>x</sub> in the upper troposphere increases and can be transported to the top of the troposphere by strong ascending flows, which subsequently increases the concentration of  $O_3$  by photochemical reaction. Thereby, the  $O_3$  concentration difference between the Tibetan Plateau and the same latitude region is reduced and the decrease of the total  $O_3$  concentration slows down, which inhibits further deepening of the  $O_3$  valley in the Tibetan Plateau in the summer.

Keywords O<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub>, Tibetan Plateau

#### 1 引言

臭氧(O<sub>3</sub>)是大气中的微量成分之一,是一种 重要的光化学氧化剂,它对于全球气候和环境有重 要影响。约90%的O<sub>3</sub>集中在平流层(10~30 km), 10%在对流层。平流层的O<sub>3</sub>通过吸收紫外线进行光 化学反应,进而在大气中发生热化学过程,从而维 持地球温度。O<sub>3</sub>的光解物中,电子激发态原子氧可 生成OH等重要自由基,从而活跃了大气中的化学 反应过程。对流层的O<sub>3</sub>是重要的温室气体,也是 强氧化剂,它会导致肺功能减弱和组织损伤,对人 的身体健康产生危害。

中国最大的高原青藏高原,因在全球高原中海 拔最高而被称为"世界屋脊"(叶笃正等,1979)。 作为世界大尺度山地之一,青藏高原地势高,大气 干洁,辐射强,被抬高的地表面通过吸收太阳辐射 并加热其上部的大气,在对流层中形成较周围温度 高的热源,易产生强烈的对流和涡旋,使物质向上 输送,因而对大气环流及区域性气候有重要影响。 (叶笃正等,1979)。

Zhou and Luo (1994)分析了搭载在 Nimbus-7 卫星上的 TOMS (Total Ozone Mapping Spectrometer)得到的数据,发现青藏高原存在一个 O<sub>3</sub> 低谷,并且呈不断加深的趋势。基于 TOMS 数 据,周秀骥等(1995)和 Luo et al. (1996)进一步 提出,6~9月,青藏高原 O<sub>3</sub> 比中国同纬度地区低 20~30 DU[多布森单位 (Dobson unit,简称 DU), 为了描述大气中臭氧的密度,规定在一个标准大气 压下,温度为 273 K 的条件下,10 μm 厚度的臭氧 层为一个多布森单位]。大气 O<sub>3</sub> 的变化涉及大气动 力学、辐射和光化学之间极其复杂的相互作用过

程。基于 TOMS 数据以及二维和三维化学传输模 式, Liu et al. (2001, 2003) 推测, 青藏高原 O3 低 谷与南亚高压有关。即夏季,在青藏高原热源导致 的强烈的上升气流和南亚高压导致的对流层下部 的大气辐合以及平流层大气辐散的共同作用下,青 藏高原周围数百公里范围上,包括 O3 在内的污染 物在对流层下部汇聚,经由强烈的上升气流输送至 平流层,稀释了平流层 O3 的浓度;同时,平流层 含有高浓度 O3 的空气在南亚高压的影响下向四周 幅散,从而造成了青藏高原 O3 低谷的形成。基于 相同的卫星资料, 邹捍和郜永琪(1997)发现全球 三个大尺度山地(青藏高原、落基山脉和安第斯山 脉)上空均存在 O3 总量的亏损,各月 O3 总量均低 于同纬度其他地区,其中,青藏高原上空 O3 亏损 最为明显。因此提出,大尺度山地由于太阳辐射导 致的热源抬高对青藏高原 O3 低谷的形成具有重要 影响。杨景梅和邱金桓(2009)研究表明,青藏高 原 O3 低值区的产生是由动力输送过程和光化学反 应共同作用的结果,其中动力输送过程为主要因 素。周秀骥等(2004)提出,青藏高原大气 O3的 变化是在特殊的背景条件下大气动力、物理和化学 作用的综合结果,要完全弄清楚还需进一步深入研 究,形成青藏高原 O3 低值区可能还另有原因,比 如大气化学非均相反应和青藏高原云的特征都有 着某种的关联。迄今为止,研究结果表明青藏高原 O3低谷的成因主要有三个:大气的动力传输、高原 的大尺度山地作用和大气化学反应,其中大气的动 力传输起主要作用。但目前,对于大气化学反应对 青藏高原 O3 低谷的成因之间的关系研究较少。

光化学反应在很大程度上影响着 O<sub>3</sub> 的浓度。 而在 O<sub>3</sub> 参与的众多大气化学反应中,氮氧化物 (NO<sub>x</sub>,包括 NO 和 NO<sub>2</sub>)对 O<sub>3</sub>浓度的影响十分重要。NO<sub>x</sub>是判断大气污染程度的重要指标之一,对人类健康以及大气环境有着重要影响。Crutzen (1970)研究发现,NO<sub>x</sub>在 O<sub>3</sub>的形成和氮氢化合物的光化学反应中起着关键作用。在对流层,作为O<sub>3</sub>的重要前体物,NO<sub>x</sub>是影响 O<sub>3</sub>浓度变化的重要因子之一。O<sub>3</sub>的浓度变化与其前体物 NO<sub>x</sub>和挥发性有机物 (VOCs)有密切联系,常采用 VOCs 与 NO<sub>x</sub>的浓度比值来判断O<sub>3</sub>生成受VOCs 控制还是受NO<sub>x</sub>控制。一般而言,城市等污染较严重地区的 O<sub>3</sub> 生成主要受 VOCs 控制,而乡村等较清洁地区的 O<sub>3</sub> 生成主要受 NO<sub>x</sub>控制(唐孝炎等,2006)。因而在青藏高原地区,NO<sub>x</sub>对 O<sub>3</sub>的浓度变化有重要影响。

NO<sub>x</sub>的排放源多种多样,且有很强的地域特色。 Delmas et al.(1997)列出了全球 NO<sub>x</sub>源的排放清单, 主要有生物质燃烧、化石燃料燃烧、土壤微生物分 解以及闪电放电;全球约有 70%的 NO<sub>x</sub>来源于人为 排放源, 其中 50%的 NO<sub>x</sub> 来自于化石燃烧, 约 20% 来自于生物燃烧; 30%来源于自然源, 主要是闪电 产生和土壤排放。闪电对对流层上部 NO<sub>x</sub> 的贡献大 于 50% (Seinfeld and Pandis, 1998)。闪电是高电压 大电流的快速放电过程,其放电通道的高温、高压 可迅速引起氮氧分子被完全电离,产生的氧离子和 氮离子先生成一氧化氮(NO),之后 NO 与氧离子 生成 NO<sub>x</sub> (Borucki and Chameides, 1984)。由于对 流层上层 NO<sub>x</sub>的生命周期较长,所以能长时间地参 与一系列光化学反应,对对流层 O3 以及 OH 自由基 的浓度有着重要影响。青藏高原闪电和对流层 NO<sub>x</sub> 在时空分布上有良好的一致性,闪电活动是青藏高原 对流层 NO<sub>x</sub> 的主要来源,闪电产生的氮氧化物 (LNO<sub>x</sub>)占当地总 NO<sub>x</sub>的比例年均达 50%,尤其是 春、夏季, 高达 65%~80% (Guo et al., 2016, 2017)。 这表明 LNO<sub>x</sub> 和青藏高原 O<sub>3</sub> 低值区的成因之间可能 有一定的联系。因此,本文使用卫星资料,分析对比 了青藏高原和长江中下游地区 O3 和二氧化氮 (NO2) 的分布特征以及闪电和 NO<sub>2</sub> 的相关性, 讨论了 LNO<sub>x</sub> 对青藏高原 O3 低谷区的影响,这对于进一步认识青 藏高原O3低谷的成因和维持有一定的意义。

#### 2 资料介绍

本文采用的闪电资料是美国全球水资源和气候中心(GHRC)提供的 2.3 版本低分辨率的月均 值(LRMTS)格点资料,由星载光学瞬变探测器 (Optics Transient Detection, 简称 OTD)和闪电成 像仪(Lightning Imaging Sensor, 简称 LIS)观测获 取,探测总闪,分辨率为  $2.5^{\circ} \times 2.5^{\circ}$ 。LIS 安置在热 带降水监测卫星(Tropical Rainfall Measuring Mission, 简称 TRMM)上,它是于 1997 年 11 月 28 日发射的非太阳同步圆形轨道卫星,轨道倾角 35°,高度 350 km。LIS 一天绕地球约 16 圈,空间 分辨率为 5 km,采用  $128 \times 128$  像素点的 CCD (Charge Coupled Device)阵列,获取图像的时间刷 新率为 2 ms,探测时间每次 80 s,视野为 580 km× 580 km,采用多种特殊的滤波技术将闪电信号从白天 很强的背景光中检测出来,能够观测到全球热带区域 的闪电活动情况。LIS 在夜晚和白昼的探测效率为 93%±4%和 73%±11%(Boccippio et al., 1999)。

文中采用的 NO<sub>2</sub> 资料是由荷兰皇家气象研究 所(TEMIS)提供的NO2气体垂直柱浓度(Vertical Column Density,简称 VCD) 二级月均值产品,O<sub>3</sub> 资料是由 TEMIS 提供的 O3 总柱浓度同化资料 (Assimilated Total Ozone) 二级月均值产品, 二者 均通过全球 O3 监测实验仪 (OMI) 观测得出, OMI 是美国国家航空航天局(NASA)于 2004 年 7 月 15 日发射的 Aura 地球探测系统卫星上携带的四个 传感器之一。该探测仪由荷兰、芬兰与 NASA 合作制 造,是GOME(Global Ozone Monitoring Experiment) 和 SCIAMACHY (Scanning Imaging Absorption Spectrometer for Atmospheric Cartography)的继承仪 器,有三个通道,波长范围 270~500 nm,轨道扫 描幅是 2600 km, 平均光谱分辨率 0.5 nm, 空间分 辨率是13 km×24 km, 一天覆盖全球一次, 主要监 测大气中的 O3 柱浓度、气溶胶、云、表面紫外线 辐射及其他痕量气体。本文选取的 OMI 卫星产品 为 NO<sub>2</sub> VCD 月均值数据(单位: 10<sup>13</sup> molecular cm<sup>-2</sup>,以下简写为 10<sup>13</sup> molec cm<sup>-2</sup>)和 TOC (Total Ozone Column)同化资料月均值(单位: DU)和 廓线数据,均是利用 OMI 卫星观测到的数据资料 经过化学模式 TM5 再分析订正后的格点化资料。

本文选取三种资料的时间范围是 2005 年 1 月 至 2013 年 12 月,廓线数据的时间范围是 2008 年 1~ 12 月。

### 3 青藏高原及同纬度地区 O<sub>3</sub> 时空分 布特征

由图 1 可见,中国 O3浓度空间分布存在自北

向南逐渐递减的明显的纬向差异,其中,东北地区 为高值区,其O3浓度最高时可达400 DU以上,南 部沿海地区及中国青藏高原南部为低值区,其 O3 浓度最低时在 250 DU 左右, 这与前期一些研究相 吻合(Zhou and Luo, 1994; 韦惠红和郑有飞, 2006; 王跃启等, 2009; 杜君平等, 2014)。春季和冬季 (本文定义 3~5 月为春季, 6~8 月为夏季, 9~11 月为秋季,12、1、2月为冬季)高纬度的浓度较大, 而冬季低纬度的浓度最小,这导致春季和冬季,尤 其是冬季的纬向差异最明显。夏秋纬向差异略小, 其中夏季最小。杨景梅和邱金桓(2009)研究表明, 中国 O3 浓度的纬向差异与太阳辐射的纬度差异、 季节变化和光化作用变化有关,中国东北地区 O, 浓度高值区的产生是平流层准定长行星波作用的 结果。为了更明确地了解青藏高原的 O3 时空分布, 本文选取与青藏高原纬度相同的长江中下游地区 进行对比分析。对比图 1 中 A 区和 B 区浓度分布可 知, 青藏高原的 TOC 总体明显低于长江中下游地区, 特别是在夏季和秋季,与同纬度地区相比较,形成 了一个明显的 O<sub>3</sub>低谷区,最低可至 250 DU 以下, 比同纬度周边地区低约 15 DU。春季也存在一个较 弱的 O3 低值区域。而同纬度长江中下游地区的 TOC

呈东北高,西南低的分布特征,且季节分布与青藏 高原相似,同样为冬、春季较高,夏、秋季较低的 分布趋势,与 Chen et al. (2014)的结论一致。

结合图 2 和图 3 可以看出, 青藏高原和长江中 下游地区的 TOC 月均值分布趋势基本相似,均表 现为春、夏季较高,秋、冬季较低的特征。不同的 是,长江中下游地区秋、冬季平均值相当,而青藏 高原秋季平均值低于冬季。此外,青藏高原和长江 中下游地区 TOC 的峰值均出现在 4 月, 分别为约 285 DU 和约 300 DU。自4 月以后,青藏高原和长 江中下游地区 TOC 均开始下降,青藏高原的一直 要下降到12月,达到谷值,约为255 DU,而长江 中下游地区的下降较缓慢,一直降到 10 月份,达 到谷值,约为 265 DU。青藏高原的在夏季时的下 降趋势(约为每月15DU)比长江中下游地区(约 为每月7DU)略快,而在秋季时二者 TOC 的下降 趋势均为约10DU。青藏高原TOC值在1月份略大 于长江中下游地区,2月份基本和长江中下游地区 相当,其他月份均低于同纬度的长江中下游地区, O3浓度差值在 6~8 月达到了最高峰(11~15 DU; 图 4)。从季节来看,两个地区的 O3浓度差最大值 出现在夏季(6~8月),其次是春季(3~5月)和



图 1 2005~2013 年中国大部地区 (3°~54°N, 73°~137°E) O<sub>3</sub>浓度 (单位: DU) 季节平均分布: (a) 春季; (b) 夏季; (c) 秋季; (d) 冬季。图 中 A 为青藏高原地区 (26°~35°N, 78°~100°E), B 为长江中下游地区 (26°~35°N, 117°~112°E)

Fig. 1 Seasonal mean variations of ozone concentration (units: DU) in China  $(3^{\circ}-54^{\circ}N, 73^{\circ}-137^{\circ}E)$  during 2005–2013: (a) Spring, (b) summer, (c) autumn, and (d) winter. A and B in Fig. 1 show the Tibetan Plateau region  $(26^{\circ}-35^{\circ}N, 78^{\circ}-100^{\circ}E)$  and the middle and lower reaches of Yangtze River  $(26^{\circ}-35^{\circ}N, 112^{\circ}-117^{\circ}E)$ , respectively



Fig. 2 Monthly mean TOC (Total Ozone Column; units: DU) distributions over (a) the Tibetan Plateau region and (b) the middle and lower reaches of Yangtze River during 2005–2013



图 3 2005~2013 年(a) 青藏高原和(b) 长江中下游地区不同季节 TOC 的年分布(单位: DU)

Fig. 3 TOC seasonal distribution (units: DU) of (a) Tibetan Plateau region and (b) the middle and lower reaches of Yangtze River during 2005–2013

秋季 (9~11月), 冬季的 O3 浓度差值最小 (图 4)。

### 4 青藏高原及同纬度地区氮氧化物 时空分布特征

由图 5 可见,中国的 NO<sub>2</sub> VCD 分布有很大的 地域差异,华北地区以及华东沿海地区的 NO<sub>2</sub> VCD 较高,而东北地区和西部地区的 NO<sub>2</sub> VCD 较低。 青藏高原的 NO<sub>2</sub> VCD 分布十分均匀,属于低值区, 比同纬度地区的长江中下游地区低 1~2 个量级。

结合图 5、图 6 和图 7 可以看出, 青藏高原与 长江中下游地区的 NO<sub>2</sub> VCD 逐月分布和季节分布 有很大差异。青藏高原的 NO<sub>2</sub>VCD 基本表现为夏高 冬低的变化趋势,峰值出现在 6 月,约为  $1.15 \times 10^{15}$ molec cm<sup>-2</sup>,谷值出现在 2 月,约为  $5.8 \times 10^{14}$  molec cm<sup>-2</sup>,夏季约是冬季的 2 倍。而长江中下游地区的



图 4 2005~2013 年青藏高原和长江中下游地区月均 O<sub>3</sub>浓度差值分布 (单位: DU)

Fig. 4 Distribution of monthly mean ozone concentration differences (units: DU) between the Tibetan Plateau and the the middle and lower reaches of Yangtze River during 2005–2013



图 5 同图 1, 但为对流层 NO<sub>2</sub>浓度(NO<sub>2</sub> VCD;单位:  $10^{14}$  molec cm<sup>-2</sup>)季节平均分布

Fig. 5 Same as Fig. 1, but for seasonal mean distributions of NO<sub>2</sub> VCD (Vertical Column Density; units: 10<sup>14</sup> molec cm<sup>-2</sup>)



Fig. 6 Same as Fig. 2, but for monthly mean NO<sub>2</sub>VCD distributions (units: 10<sup>14</sup> molec cm<sup>-2</sup>)

NO<sub>2</sub> VCD 季节波动较大,表现为冬高夏低的分布特征,峰值出现在1月,约为 $2.5 \times 10^{16}$  molec cm<sup>-2</sup>,谷值出现在7月,约为 $5 \times 10^{15}$  molec cm<sup>-2</sup>,冬季约是夏季的5倍。其峰值比青藏高原峰值大一个量级,其谷值也是青藏高原峰值的几倍。

张兴赢等(2007)和 Guo et al. (2016, 2017) 分析表明,这主要是由于我国人口分布以及经济交 通发展不平衡导致的。人为活动对对流层 NO<sub>2</sub> 排放 有着很大的影响,尤其是省会、直辖市等更为发达 的城市,例如长江中下游地区,这些地区的工农业 以及经济较发达,且人口密集,交通发达,汽车、 火车以及飞机等交通设备的尾气以及工农业废气 排放较多,所以人为造成的氮氧化物排放较多。夏 季对流和湍流活动活跃,利于 NO<sub>2</sub> VCD 扩散和输 送,而冬季温度较低,对流和湍流活动最弱,不利 于大气扩散,所以冬季为峰值,夏季为谷值。而同 纬度青藏高原由于工业以及经济发展较为落后,人 口分布较为稀疏,工农业以及交通运输业等的尾气 及废气污染较少,因而人为的氮氧化物排量很少。 而在拉萨、西宁等地,人口较多,交通运输业和工 农业的发展程度与青藏高原其他地区相比要高一些,人为活动排放的 NO<sub>2</sub>产量所占比重较多,因此 是青藏高原对流层 NO<sub>2</sub>排放量的高值区,但整体而 言,青藏高原 NO<sub>2</sub>排量很少,基本来源于自然排放, 自然源主要是闪电和土壤排放,而其中闪电居多, 且这两者随季节变化都是夏高冬低 (Lin, 2012),因 而青藏高原 NO<sub>2</sub> 在夏季达到峰值,在冬季达到谷 值。由此可以认为,青藏高原的 NO<sub>x</sub>月变化可近似 代表 LNO<sub>x</sub>的月变化趋势。

从图 7 可见, 青藏高原和长江中下游地区闪电 密度都呈现夏高冬低的趋势,这是因为闪电主要发 生在暖而湿的季节,夏季时气温高,对流活动强烈, 闪电活动多,冬季由于气温低,几乎没有强烈的对 流活动发生,因而几乎没有闪电。Guo et al. (2016) 分析指出,青藏高原春季 LNOx 占总 NOx 排放量最 大(约80%),夏季次之(约65%),而长江中下游 地区夏季 LNO<sub>x</sub> 占总 NO<sub>x</sub> 排放量最大 (约 10%), 春秋较小 (约 2%~3%)。图 7 中, 青藏高原的 NO2 VCD季节变化特征和闪电活动一致,而且峰值的年 际变化也有很好的吻合;长江中下游地区的 NO<sub>2</sub> VCD 的季节变化特征和闪电活动刚好相反,为冬高 夏低。这更进一步表明了,青藏高原人为活动导致 的 NO<sub>x</sub>产量较小, 对流层 NO<sub>x</sub>总排放量主要受自然 排放源影响,而在自然排放源中,大部分 NO<sub>x</sub>来源 于闪电放电,闪电可以作为氮氧化物变化的敏感指 示剂,而长江中下游地区的变化主要与人为活动排 放以及大气传输有关,闪电活动产生的氮氧化物所 占比重较小。这与张兴赢等(2007)的研究结果也 相一致。

#### 5 青藏高原臭氧低谷与闪电产生氮 氧化物的关系

由图 8 可知,青藏高原的 NO<sub>2</sub> VCD 在夏季 6 月左右达到峰值,而谷值则在 12 月和次年 1~2 月 时间范围内波动,并且逐年缓慢升高;O<sub>3</sub>在春季 4 月左右达到峰值,并在冬季 12 月左右达到谷值, O<sub>3</sub>的峰谷值提前于 NO<sub>2</sub> VCD 的约两个月。O<sub>3</sub>峰值 波动较大,其中 2005~2008 年以及 2011~2013 年 呈下降趋势,2008~2010 年呈上升趋势,而 2010 和 2011 年基本持平。由图 9a 和 b 可知,青藏高原 和长江中下游地区的 O<sub>3</sub>浓度季节垂直分布相似,9 km 左右以下,春夏季 O<sub>3</sub> 值高于秋冬季,其中春季 高于夏季,秋季高于冬季;9~20 km 左右,夏秋季 O3值低于冬春季,其中夏季低于秋季,春季低于冬 季。不同的是,对流层中下部(约9km以下)青 藏高原 O3 浓度的季节变化比长江中下游地区的小; 对流层上部(约 10~14 km)青藏高原夏秋季与冬 春季的 O<sub>3</sub>差值相较于平流层下部(约 14~20 km) 要小,而长江中下游地区所对应的 O<sub>3</sub> 差值基本不 变。根据图 4 可知, 5~9 月青藏高原与同纬度长江 中下游地区的 TOC 差值持续为负, 其中 6~8 月的 负值达到最大,因而本文在图 9c 中选取 5~9 月和 6~8月的臭氧廓线进行对比分析。由图9c可见,5~ 9月份, 青藏高原和长江中下游地区间的 O3 差值垂 直分布差异在不同高度各不相同。6~7.5 km, O<sub>3</sub> 差值为负,且逐渐减小; 7.5~9.5 km, O3 差值为正, 并在 8 km 左右达到极值; 9.5~20 km 左右, O3 差 值为负,并在10km和17km处达到极大值,在13 km 左右达到极小值; 20 km 以上, O3 差值为正。 此外,在14~20 km 处,6~8月O3 差值明显大于 5~9月,说明夏季青藏高原和同纬度长江中下游地 区间的 O3 差值最大, O3 低谷最深, 与图 4 相符。

青藏高原 6~16 km 为南亚高压控制范围,在 垂直方向上,在青藏高原夏季有强烈上升气流将对 流层 O3 及其前体物向平流层输送;在水平方向上, 气流在对流层中下部从周边地区向青藏高原辐合, 同时在平流层下部从青藏高原向四周幅散(周秀骥 等,2004)。在 6~7.5 km,此高度范围位于对流层 下部,春夏季长江中下游地区人为活动造成 O3 的 前体物大量排放,导致长江中下游地区比青藏高原 的 O<sub>3</sub>浓度高很多。在 7.5~9.5 km, 青藏高原的 O<sub>3</sub> 浓度比长江中下游地区大,而青藏高原 NO<sub>x</sub>浓度较 低且主要受自然排放源即闪电的影响,此高度为青 藏高原云闪高度范围(约350hPa; 郭凤霞和陈聪, 2012),闪电放电瞬间能产生大量的 NO<sub>x</sub>,根据漏 嗣佳等(2010)的研究,青藏高原 VOCs 和 NO<sub>x</sub>比 值较大,O<sub>3</sub>处于 NO<sub>x</sub>控制区,O<sub>3</sub>浓度随 NO<sub>x</sub>浓度 升高而升高。其次,南亚高压的低空辐合作用使青 藏高原周边一定量O3及其前体物向青藏高原汇聚。 漏嗣佳等(2010)研究表明,长江中下游地区 NO<sub>x</sub> 浓度较大且主要受人为活动影响, VOCs 和 NO<sub>x</sub>比 值较小,其大部分地区 O<sub>3</sub> 处于 VOCs 控制区,O<sub>3</sub> 浓度随 VOCs 浓度升高而升高。而 VOCs 主要源于 近地面排放,且生命周期很短,对流层中上部浓度 非常低,导致长江中下游地区对流层中上部 O3 浓 度较低。因此,LNO<sub>x</sub>和南亚高压的共同作用导致



图 7 2005~2013 年 (a) 青藏高原和 (b) 长江中下游地区闪电活动与对流层 NO<sub>2</sub> VCD 的年际变化趋势 Fig. 7 Interannual variations of lightning flash density and NO<sub>2</sub>VCD over (a) the Tibetan Plateau region and (b) the middle and lower reaches of Yangtze River during 2005–2013





该高度上青藏高原O<sub>3</sub>含量比同纬度同高度地区高, 青藏高原和长江中下游地区的O<sub>3</sub>差值为正值,且 在8 km (350 hPa)左右达到极值。在青藏高原夏 季对流层上部11~14 km,闪电产生的NO<sub>x</sub>,经由 南亚高压的强上升气流向上输送并通过一系列化 学反应生成O<sub>3</sub> (Noxon, 1976),O<sub>3</sub>随 LNO<sub>x</sub>增多而 增多。郭凤霞和陈聪(2012)和李庆等(2005)均 得出,在青藏高原夏季200 hPa左右存在一个NO<sub>2</sub> 极大值区,这正好与O<sub>3</sub>差值负值极小值区(图9c: 10~14 km左右)相对应,可见,在这一高度范围, LNO<sub>x</sub>是造成青藏高原和长江中下游地区的O<sub>3</sub>浓度 差减小至极小值的主要因素。在 14~20 km 左 右,此高度位于平流层下部(150~60 hPa), NO<sub>x</sub> 和 O<sub>3</sub>之间的光化学净反应为 0(唐孝炎等, 2006), 因此 NO<sub>x</sub>浓度的变化对 O<sub>3</sub>影响不大,青藏高原 O<sub>3</sub> 浓度的变化在南亚高压的影响下主要受上升气流 和平流层辐散的影响而不断减少,且比对流层上部 O<sub>3</sub>减少的量大,由此造成了明显的 O<sub>3</sub>差值负值区, 即为 O<sub>3</sub> 低谷极大值区,这与周秀骥等(2004)的 研究一致。

图 10 给出了上述分析的概念图。根据上述分 析可知,在对流层上部到对流层顶(6~14 km),



图 9 2008 年(a) 青藏高原和(b) 长江中下游地区 O3浓度及(c) 两个地区 O3浓度差值在每个季节的垂直分布

Fig. 9 Ozone distributions in (a) the Tibetan Plateau, (b) the middle and lower reaches of Yangtze River Delta and (c) ozone concentration differences between the Tibetan Plateau and the Yangtze River Delta



图 10 青藏高原与长江中下游地区关于 O<sub>3</sub>和闪电的产生氮氧化物(LNO<sub>x</sub>)的关系分析对比概念图。O<sub>3</sub>和 NO<sub>x</sub>旁的符号:↑表示气体浓度较大,↓ 表示气体浓度较小

Fig. 10 Conceptual map of the comparison of the relationship between the O<sub>3</sub> valley and LNO<sub>x</sub> (NO<sub>x</sub> produced from lighting) in the Tibetan Plateau and the middle and lower reaches of Yangtze River Delta.  $\uparrow$  indicates large concentration, and  $\downarrow$  indicates low concentration

青藏高原 O<sub>3</sub> 的浓度变化主要受到 LNO<sub>x</sub> 和南亚高 压的双重影响, LNO<sub>x</sub> 使 O<sub>3</sub> 含量升高,南亚高压 使之减少,总体呈减少趋势;而在平流层下部 (14~25 km),O<sub>3</sub> 浓度的变化主要受南亚高压的 影响而不断减少,且比对流层上部O<sub>3</sub>减少的量大。 因此,青藏高原夏季对流层 LNO<sub>x</sub> 浓度的大幅度上 升造成对流层 O<sub>3</sub> 的浓度的大量上升,对O<sub>3</sub> 的大 量耗散起到了一定的补偿作用,抑制了O<sub>3</sub> 低谷的 进一步深化。这与周秀骥等(2004)研究得出的 对流层光化学反应对O<sub>3</sub> 低谷有补偿作用这一结论 相一致。

#### 6 结论

本文根据 2005~2013 年 OMI 卫星提供的 NO<sub>2</sub> VCD、TOC 和 O<sub>3</sub> 廓线数据以及 OTD/LIS 总闪数据, 通过与长江中下游地区作对比,对青藏高原 O<sub>3</sub> 低 谷的形成和变化特征及其与 LNO<sub>x</sub> 的关系进行了分 析,得出了以下结论:

青藏高原 O<sub>3</sub> 低谷在春季开始形成,夏秋季达 到最深,最后在冬季消失。长江中下游地区 O<sub>3</sub> 呈 东北高,西南低的分布趋势,季节分布与青藏高原 相似,总体偏高。青藏高原 TOC 值在 3~12 月均 2 期郭凤霞等:闪电产生氮氧化物对青藏高原臭氧低谷形成的影响No. 2GUO Fengxia et al. Effects of Nitrogen Oxides Produced from Lightning on the Formation of the Ozone Valley over ...275

低于同纬度的长江中下游地区,二者的 O<sub>3</sub> 浓度差 值在 6~8 月达到峰值(约 15 DU)。

青藏高原 NO<sub>2</sub> VCD 总体较小,其季节变化和 闪电频次的大体相似,均表现为夏高冬低的分布特 征,主要源于闪电放电。长江中下游地区 NO<sub>2</sub> VCD 值较高,其季节变化和闪电相反,表现为夏低冬高 的分布特征,主要源于人为排放。

受南亚高压的影响,青藏高原夏季 O<sub>3</sub> 浓度总体呈减小趋势,但其与同纬度长江中下游地区 O<sub>3</sub> 浓度差异的大小和成因在不同高度各不相同。在对流层中上部,青藏高原因强雷暴天气导致 LNO<sub>x</sub>浓度升高并随强上升气流向对流层顶输送,同时通过光化学反应使 O<sub>3</sub> 浓度增加;其次,南亚高压在低空导致青藏高原周围地区的 O<sub>3</sub> 及其前体物向青藏高原辐合,使 O<sub>3</sub> 浓度增加。二者的共同作用使青藏高原和同纬度地区的 O<sub>3</sub> 浓度差较小,减轻了 O<sub>3</sub>的耗散,抑制了 O<sub>3</sub> 低谷的进一步深化。在平流层下部,LNO<sub>x</sub>对此高度 O<sub>3</sub> 浓度的变化影响不大,O<sub>3</sub> 浓度主要受南亚高压的影响向四周辐散,O<sub>3</sub> 浓度减小量较大,青藏高原和同纬度地区的 O<sub>3</sub> 浓度差较大,O<sub>3</sub> 低谷较深。

#### 参考文献(References)

- Boccippio D J, Goodman S J, Heckman S. 1999. Regional differences in tropical lightning distributions [J]. J. Appl. Meteor., 39 (12): 2231–2248, doi:10.1175/1520-0450(2001)040<2231:RDITLD>2.0.CO;2.
- Borucki W J, Chameides W J. 1984. Lightning: Estimates of the rates of energy dissipation and nitrogen fixation [J]. Rev. Geophys., 22 (4): 363–372, doi:10.1029/RG022i004p00363.
- Chen Liujia, Yu Bailang, Chen Zuoqi, et al. 2014. Investigating the temporal and spatial variability of total ozone column in the Yangtze River Delta using satellite data: 1978–2013 [J]. Remote Sens., 6 (12): 12527–12543, doi:10.3390/rs61212527.
- Crutzen P J. 1970. The influence of nitrogen oxides on the atmospheric ozone content [J]. Quart. J. Roy. Meteor. Soc., 96 (408): 320–325, doi:10. 1002/qj.49709640815.
- Delmas R, Serca D, Jambert C. 1997. Global inventory of NO<sub>x</sub> sources [J]. Nutrient Cycling in Agroecosystems, 48 (1–2): 51–60, doi:10.1023/A: 1009793806086.
- 杜君平,朱玉霞,刘锐,等. 2014. 基于OMI数据的中国臭氧总量时空分 布特征 [J]. 中国环境监测, 30 (2): 191–196. Du Junping, Zhu Yuxia, Liu Rui, et al. 2014. Analysis on spatiotemporal characteristics of total column ozone over China based on OMI product [J]. Environmental Monitoring in China (in Chinese), 30 (2): 191–196, doi:10.3969/j.issn. 1002-6002.2014.02.037.
- 郭凤霞, 陈聪. 2012. 中国地区闪电和对流层上部 NO<sub>x</sub> 的时空分布特征 及其相关性分析 [J]. 大气科学, 36 (4): 713-721. Guo Fengxia, Chen

Cong. 2012. Comparison of lightning activity and NO<sub>x</sub> distribution in the upper troposphere in China [J]. Chinese Journal of Atmospheric Sciences (in Chinese), 36 (4): 713–721, doi:10.3878/j.issn.1006-9895.2011.11129.

- Guo F X, Bao M, Mu Y J, et al. 2016. Temporal and spatial characteristics of lightning-produced nitrogen oxides in China [J]. Journal of Atmospheric and Solar-Terrestrial Physics, 149: 100–107, doi:10.1016/j. jastp.2016.10.007.
- Guo F X, Ju X Y, Bao M, et al. 2017. Relationship between lightning activity and tropospheric nitrogen dioxide and the estimation of lightningproduced nitrogen oxides over China [J]. Advances in Atmospheric Sciences, 34 (2): 235–245, doi:10.1007/s00376-016-6087-x.
- 李庆,陈月娟,施春华,等. 2005. 青藏高原上空氦氧化物的分布特征及 其与臭氧的关系 [J]. 高原气象, 24 (6): 935–940. Li Qing, Chen Yuejuan, Shi Chunhua, et al. 2005. NO<sub>x</sub> distribution over the Qinghai– Xizang Plateau and its relationship with O<sub>3</sub> [J]. Plateau Meteorology (in Chinese), 24 (6): 935–940.
- Lin J T. 2012. Satellite constraint for emissions of nitrogen oxides from anthropogenic, lightning and soil sources over East China on a high-resolution grid [J]. Atmos. Chem. Phys., 12 (6): 2881–2898, doi:10. 5194/acp-12-2881-2012.
- Liu Y, Li W L, Zhou X J. 2001. Prediction of the trend of total column ozone over the Tibetan Plateau [J]. Science in China Series D: Earth Sciences, 44 (S1): 385–389, doi: 10.1007/BF02912010.
- Liu Y, Li W L, Zhou X J, et al. 2003. Mechanism of formation of the ozone valley over the Tibetan Plateau in summer-transport and chemical process of ozone [J]. Advances in Atmospheric Sciences, 20 (1): 103–109, doi:10.1007/BF03342054.
- 漏嗣佳,朱彬,廖宏. 2010. 中国地区臭氧前体物对地面臭氧的影响 [J].
  大气科学学报, 33 (4): 451–459. Lou Sijia, Zhu Bin, Liao Hong. 2010.
  Impacts of O<sub>3</sub> precursor on surface O<sub>3</sub> concentration over China [J]. Trans.
  Atmos. Sci. (in Chinese), 33 (4): 451–459, doi:10.3969/j.issn.1674-7097.
  2010.04.009.
- Luo C, Tang J, Zhou X J. 1996. Measurements and model simulations of surface ozone variations at different background concentrations of the precursors [J]. J. Meteor. Res., 10 (2): 215–221.
- Noxon J F. 1976. Atmospheric nitrogen fixation by lightning [J]. Geophys. Res. Lett., 3 (8): 463–465, doi:10.1029/GL003i008p00463.
- Seinfeld J H, Pandis S N. 1998. Atmospheric Chemistry and Physics [M]. New York: Wiley-Interscience, 969pp.
- 唐孝炎, 张远航, 邵敏. 2006. 大气环境化学 [M]. 北京: 高等教育出版 社, 598pp. Tang Xiaoyan, Zhang Yuanhang, Shao Min. 2006. Atmospheric Environmental Chemistry (in Chinese) [M]. Beijing: Higher Education Press, 598pp.
- 王跃启, 江洪, 肖钟湧, 等. 2009. 基于 OMI 数据的中国臭氧总量时空动 态信息提取 [J]. 环境科学与技术, 32 (6): 177–180, 184. Wang Yueqi, Jiang Hong, Xiao Zhongyong, et al. 2009. Extracting temporal and spatial distribution information about total ozone amount in China based on OMI satellite data [J]. Environmental Science & Technology (in Chinese), 32 (6): 177–180, 184, doi:10.3969/j.issn.1003-6504.2009.06.041.
- 韦惠红,郑有飞. 2006. 我国臭氧总量的时空分布特征 [J]. 南京气象学 院学报, 29 (3): 390–395. Wei Huihong, Zheng Youfei. 2006. Analysis of the temporal and spatial distributions of the total ozone over China [J].

Journal of Nanjing Institute of Meteorology (in Chinese), 29 (3): 390–395, doi:10.3969/j.issn.1674-7097.2006.03.016.

- 杨景梅, 邱金桓. 2009. 利用卫星资料分析我国北方东西部臭氧分布差 异 [J]. 应用气象学报, 20 (1): 1–7. Yang Jingmei, Qiu Jinhuan. 2009. Differences in ozone distribution patterns of east and west parts in the North of China based on satellite data. [J]. Journal of Applied M eteorological Science, 20 (1): 1–7, doi:10.3969/j.issn.1001-7313.2009.01. 001.
- 叶笃正,高由禧,罗四维,等. 1979. 青藏高原气象学 [M]. 北京:科学出版社, 1pp. 1. Ye Duzheng, Gao Youxi, Luo Siwei, et al. 1979. Atmosphere in Tibetan Plateau (in Chinese) [M]. Beijing: Science Press, 1.
- 张兴赢,张鹏,张艳,等. 2007. 近 10 a 中国对流层 NO<sub>2</sub> 的变化趋势、时 空分布特征及其来源解析 [J]. 中国科学 D 辑: 地球科学, 37 (10): 1409–1416. Zhang Xingying, Zhang Peng, Zhang Yan, et al. 2007. The trend, seasonal cycle, and sources of tropospheric NO<sub>2</sub> over China during 1997–2006 based on satellite measurement [J]. Science in China Series D:

Earth Science, 50 (12): 1877-1884, doi:10.1007/s11430-007-0141-6.

- Zhou Xiuji, Luo Chao. 1994. Ozone valley over Tibetan Plateau [J]. Acta Meteorologica Sinica, 8 (4): 505–506.
- 周秀骥, 罗超, 李维亮, 等. 1995. 中国地区臭氧总量变化与青藏高原低 值中心 [J]. 科学通报, 40 (15): 1396–1398. Zhou Xiuji, Luo Chao, Li Weiliang, et al. 1995. Variation of total ozone over China and the Tibetan Plateau low center [J]. Chinese Sci. Bull., 40 (15): 1396–1398.
- 周秀骥, 李维亮, 陈隆勋, 等. 2004. 青藏高原地区大气臭氧变化的研究 [J]. 气象学报, 62 (5): 513–527. Zhou Xiuji, Li Weiliang, Chen Longxun, et al. 2004. Study of ozone change over Tibetan Plateau [J]. Acta Meteorologica Sinica, 62 (5): 513–527, doi:10.3321/j.issn:0577-6619.2004.05.001.
- 邹捍, 部永祺. 1997. 大尺度山地上空臭氧亏损及其变化趋势 [J]. 山地 研究, 15 (4): 209–213. Zou Han, Gao Yongqi. 1997. Ozone deficit and trend over the large scale mountains [J]. Mountain Research, 15 (4): 209–213, doi:10.16089/j.cnki.1008-2786.1997.04.001.