

卫星遥感监测全球和中国区域污染 气体NO₂和SO₂时空变化

闫欢欢,张兴赢,王维和

中国气象局国家卫星气象中心,北京100081

摘要 卫星遥感技术的发展为连续、大面积监测城市污染气体NO₂和SO₂提供了重要技术支持。本文基于紫外-可见光光谱传感器OMI观测数据,分析了近10余年(2004—2014年)全球和中国区域NO₂和SO₂空间分布特征、长时间序列变化和季节变化特征。结果表明,中国NO₂含量的高值主要集中在京津冀及周边、长江三角洲、珠江三角洲、新疆乌鲁木齐、辽宁沈阳、陕西西安等地,SO₂主要集中在京津冀、长江三角洲、珠江三角洲、四川、重庆等地。较2005—2009年,2010—2014年NO₂高值范围有所扩大,河北、山东、河南、安徽、新疆乌鲁木齐等地NO₂含量有所上升,而珠江三角洲、上海等地NO₂含量有所下降。与NO₂时空变化不同,较2005—2009年,2010—2014年SO₂高值区范围有所缩小,且河北、山东、河南、安徽、江苏、上海、重庆、贵州、珠江三角洲等地SO₂含量有所降低。全球范围内,中国东部、美国东部、荷兰、德国、意大利、南非等地NO₂含量较高,中国中东部、美国东部、南非、印度等地SO₂含量较高。较2005—2009年,2010—2014年美国东部、中国珠江三角洲、中国上海、日本、西班牙、葡萄牙、意大利北部、迪拜等地NO₂含量下降明显,而2010—2014年中国东部地区和乌鲁木齐、波兰大部、伊朗德黑兰、伊拉克巴格达、科威特、沙特利雅得、印度新德里、印度巴朗格伊尔及周边、孟加拉国达卡、智利圣地亚哥等地NO₂含量却有不同程度的上升。较2005—2009年,2010—2014年中国华北大部、重庆和贵州大部、珠江三角洲、长江三角洲,以及美国东部、南非姆普马兰加及周边等地的SO₂含量有所下降,而秘鲁利马、秘鲁南部等地SO₂含量出现增长。全球7大主要城市近10年NO₂和SO₂含量比较结果显示,中国石家庄NO₂含量均值最高,其次为中国北京、俄罗斯莫斯科、南非姆普马兰加、美国纽约、德国科隆、中国乌鲁木齐;南非姆普马兰加、中国石家庄、中国北京的SO₂总量明显高于美国纽约、德国科隆、俄罗斯莫斯科;中国北京、中国乌鲁木齐、美国纽约、德国科隆、俄罗斯莫斯科城市NO₂含量高于SO₂。

关键词 卫星遥感;NO₂;SO₂;污染气体监测

中图分类号 P407

文献标志码 A

doi 10.3981/j.issn.1000-7857.2015.17.004

Spatiotemporal variations of NO₂ and SO₂ over global region and China by OMI observations during 2004–2014

YAN Huanhuan, ZHANG Xingying, WANG Weihe

National Satellite Meteorological Center, China Meteorological Administration, Beijing 100081, China

Abstract The satellite remote sensing technology provides an unprecedented advantage for continuous, large spatial and short-revisit monitoring for atmospheric NO₂ and SO₂. This paper presents the spatial and temporal distributions of NO₂ and SO₂ from OMI over Global region and China during 2004–2014. The results show that the Beijing–Tianjin–Hebei Region, the Yangtze River delta, the Pearl River Delta, Urumchi, Shenyang and Xi’an have high NO₂ columns, while the Beijing–Tianjin–Hebei Region, the Yangtze River delta, the Pearl River Delta, Sichuan and Chongqing have high SO₂ columns. Compared with those in 2005–2009, the NO₂

收稿日期:2015-06-18;修回日期:2015-07-09

基金项目:国家卫星气象中心青年人才基金项目;高分辨率对地观测系统重大专项气象应用示范项目(E310/1112);中国气象局公益性行业(气象)科研专项(GYHY201106045);欧盟FP7框架国际合作项目(606719);高分辨率对地观测系统重大专项应用共性关键技术项目(Y20A-D14)

作者简介:闫欢欢,助理研究员,研究方向为大气遥感,电子信箱:yanhh@cma.gov.cn;张兴赢(通信作者),研究员,研究方向为卫星大气成分遥感及其应用,电子信箱:zxy@cma.gov.cn

引用格式:闫欢欢,张兴赢,王维和.卫星遥感监测全球和中国区域污染气体NO₂和SO₂时空变化[J].科技导报,2015,33(17):41–51.

columns during 2010–2014 over Hebei, Shandong, Henan, Anhui and Urumchi are increasing due to increased vehicles and the immature flue gas denitrification technology, while the SO₂ columns over Hebei, Shandong, Henan, Anhui, Jiangsu, Shanghai, Chongqing, Guizhou and Guangzhou are decreasing due to the strong control for pollution emission from large coal-fired power plants and the effective flue gas desulfurization. On a global scale, the Eastern China, the Eastern United States, Netherlands, Germany, Italy and South Africa have high NO₂ levels, while the Eastern China, the Eastern United States, South Africa and India have high SO₂ pollution levels. Compared with those in 2005–2009, the NO₂ columns during 2010–2014 over the Eastern China, Poland, Teheran, Baghdad, Kuwait, Riyadh, New Delhi, Dacca and Santiago are increasing, while the Eastern United States, the Pearl River Delta, Shanghai, Japan, Spain, Portugal, Northern Italy and Dubai see an obvious decreasing trend. The SO₂ columns during 2010–2014 over the Northern China, the Yangtze River delta, the Pearl River Delta, the Eastern United States, Mpumalanga are decreasing obviously. The trend with the NO₂ columns higher than that of SO₂ is found in cities of Beijing, Shijiazhuang, Urumchi, New York, Cologne and Moscow.

Keywords satellite remote sensing; NO₂; SO₂; atmospheric pollutant monitoring

随着全球城市化和工业化进程的加快,人类活动向大气中排放的污染气体 NO₂ 和 SO₂ 不断增加。近地表高含量的 NO₂ 和 SO₂ 可严重危害人体健康、影响辐射收支平衡和生态平衡,引发酸雨、灰霾、光化学烟雾等一系列城市环境污染问题。近年来中国京津冀地区霾天气频发,特别是 2013 年和 2014 年的春冬季节^[1-4],灰霾前体物 NO₂ 和 SO₂ 的高含量排放及区域输送是其主要原因之一。

卫星遥感技术以其覆盖面广、周期观测能力强、空间连续等优势被广泛应用于城市群与区域尺度污染气体的监测,可同时获得区域大气污染分布情况,弥补地面站点监测在空间尺度上的不足,便于对大气污染进行动态监测和预报^[5,6]。随着 TOMS (total ozone mapping spectrometer)^[7,8]、GOME (global ozone monitoring experiment)^[9-11]、SCIAMACHY (scanning imaging absorption spectrometer for atmospheric chartography)^[12,13]、OMI (ozone monitoring instrument)^[14]、GOME-2 (global ozone monitoring experiment-2)^[15-17] 等高光谱卫星仪器的发射升空,卫星遥感已成为大气环境监测和大气质量预报的重要手段。

近年来,国内外学者在卫星大气成分遥感应用方面进行了大量的研究报道。李莹^[18]利用 SCIAMACHY NO₂ 产品分析了 NO₂ 的时空分布特征和变化趋势;齐瑾^[19]利用 SCIAMACHY/ENVISAT 资料开展中国区域 NO₂ 反演研究;张兴赢等^[20]利用 GOME 和 SCIAMACHY 卫星遥感资料分析了 1997—2006 年中国对流层 NO₂ 的变化趋势和时空分布特征,并进行了来源解析;张彦军等^[21]利用 OMI 卫星遥感资料研究北京、黄骅港、三亚、深圳和抚顺的对流层 NO₂ 变化趋势;岳捷^[22]利用卫星观测数据分析了 1996 年 3 月—2008 年 3 月中国和美国选定区域对流层 NO₂ 的时空分布和变化趋势,并结合大气化学传输模式 (MOZART) 对中美大城市上空对流层 NO₂ 显著的季节变化原因进行对比分析;Witte 等^[23]利用 OMI 和 MOPITT 卫星观测资料对 2008 年北京奥运会和残奥会期间的 NO₂、SO₂ 和 CO 含量进行空气质量变化监测;孟晓艳等^[24]利用差分吸收光谱仪 MAX-DOAS、SO₂ 气体分析仪及 OMI 卫星反

演等资料,分析和讨论了北京及周边地区的 SO₂ 污染的变化过程特征、日变化特征、输送特征、源排放特征以及与天气过程和气象条件的紧密联系;王跃启等^[25]基于 2004 年 11 月—2008 年 1 月 OMI 卫星对流层 NO₂ 总量数据,对中国 8 个自然地理分区对流层 NO₂ 垂直柱含量的按均值、月均值的分布进行了分析;Li 等^[26]利用 OMI 卫星观测到 2007—2008 年中国地区 SO₂ 含量的大幅下降,从而证明了中国地区煤电厂脱硫实施有效降低了中国地区 SO₂ 排放;张兴赢等^[27]利用 SCIAMACHY 卫星观测评估了 2004—2009 年中国地区人类 SO₂ 排放的趋势;姜杰等^[28]利用 OMI PBL SO₂ 产品分析中国地区 2005—2008 年 SO₂ 含量的时空分布特征。

然而,以上研究大多针对 2009 年之前中国地区污染变化进行研究分析,缺少近年来长时间序列的中国和全球尺度的对比分析。同时上述研究大多针对单种污染气体 NO₂ 或 SO₂ 进行时空演变特性分析,缺少 NO₂ 和 SO₂ 含量之间的客观定量比较。因此,本文利用紫外-可见光高光谱传感器 OMI 近 10 年的观测数据,分析近 10 余年 (2004—2014 年) 中国各地区 NO₂ 和 SO₂ 空间分布特征、长时间序列变化和季节变化特征,进行全球主要城市地区 NO₂ 和 SO₂ 的 10 年含量比较及演变特征分析。

1 卫星数据及数据处理方法

OMI 传感器由荷兰和芬兰联合研发,于 2004 年 7 月 15 日搭载在 NASA 的 EOS/Aura 卫星上发射升空,其主要目的是研究大气痕量成分及其对气候变化的影响。OMI 采用太阳同步轨道的天底观测方式,是近紫外-可见光波段的高光谱传感器,波长范围 270~500 nm,114° 的视场角,扫描幅宽约 2600 km,天底像元空间分辨率为 13×24 km²,赤道过境当地时间 13:40 至 13:50,可实现每天全球覆盖。由于具有较高的光谱分辨率、空间分辨率、信噪比及每日全球覆盖等优势,OMI 被广泛应用于城市污染气体监测、空气质量预报和城市源排放清单估算等领域。本文所使用的 OMI 数据主要来自 <http://mirador.gsfc.nasa.gov>。

OMI NO₂对流层柱总量反演基于差分光学吸收光谱算法(differential optical absorption spectroscopy, DOAS)^[29,30],这种方法被延伸应用于星载仪器(GOME,SCIAMACHY和GOME-2等)的痕量气体遥感反演^[10,31-33]。它主要利用可见光425~450 nm窗口的高光谱辐射探测量及NO₂在该反演窗口内的强吸收,反演获得整个光路的NO₂斜柱含量,通过辐射传输计算得到大气质量因子,将斜柱含量转换为垂直柱含量,通过与平流层总量的分离获得NO₂对流层柱总量。关于NO₂总量反演技术、不同卫星产品交叉比对、地面验证和误差分析等方面,已有大量研究成果和报道^[17,19,20,34-40]。

OMI紫外波段对SO₂含量监测具有较高的敏感性,不仅能够探测火山喷发产生的SO₂,而且能够监测人类排放的SO₂分布及变化^[23,26,41-45]。之前的OMI边界层SO₂柱总量产品使用波段差分(band residual difference, BRD)算法反演^[46],该算法对于近地表SO₂污染探测具有较高的敏感性,但在高纬地区误差较大。本文使用的OMI SO₂柱总量产品基于主成分分析(principal component analysis, PCA)算法反演^[47]。相比较BRD算法,PCA算法充分利用仪器的高光谱特性,提取与臭氧吸收、Ring效应等干扰因素相关的主成分,结合SO₂雅各比矩阵获取大气中SO₂含量,有效降低了当前OMI SO₂反演产品误差,提高了产品精度和应用范围。

研究分析的数据质量控制:1) 筛选和排除OMI行异常(row anomaly, 参考 <http://www.knmi.nl/omi/research/product/rowanomaly-background.php>)影响的像元;2) 为选择尽可能多的有效像元,选择云量小于30%的像元反演值;3) 轨道扫描带边缘像元观测角较大、反演误差大,排除选择该像元;4) 使用大于0的NO₂和SO₂柱总量反演值,需要注意的是OMI SO₂负值可代表低含量SO₂排放。

2 结果分析与讨论

2.1 中国NO₂和SO₂时空演变特征

2.1.1 中国近10年NO₂和SO₂空间分布格局及变化

利用高光谱传感器OMI近十余年的卫星观测数据(2004年10月1日—2014年12月31日),研究分析中国污染气体NO₂和SO₂的空间分布及变化。从图1可以看出,近十余年来,中国NO₂对流层柱总量的高值主要集中在京津冀及周边(河南北部、山东西部)、长江三角洲和珠江三角洲,其次新疆乌鲁木齐、辽宁沈阳、陕西西安等地也存在不同程度的NO₂高值。SO₂的高值主要集中在京津冀及周边、长江三角洲、珠江三角洲、四川、重庆等地。NO₂和SO₂的含量与当地工业活动强度、气象条件、本地地形等因素密切相关,高值在一定程度上可反映出当地的工业排放量。

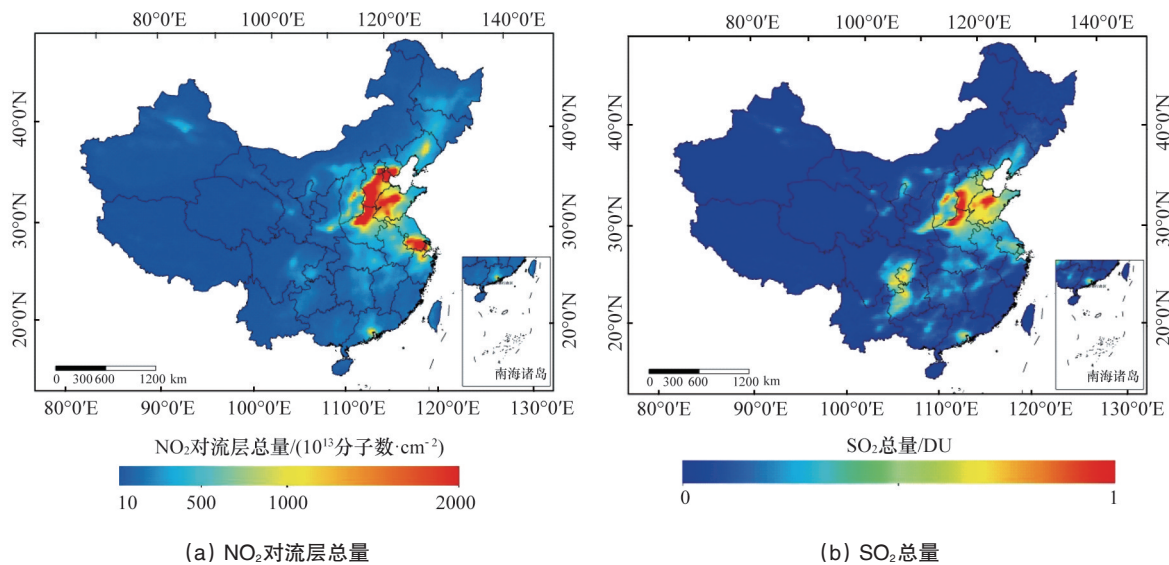


图1 全国NO₂和SO₂总量近十余年平均分布(2004-10-01—2014-12-31)

Fig. 1 Spatial distribution of averaged OMI NO₂ and SO₂ columns over China from October 2004 to December 2014

选择长江三角洲、珠江三角洲、东北地区、华中地区、西南地区、西北地区及京津冀地区,按照行政区边界曲线对NO₂和SO₂柱总量进行提取,评估比较7个区域近10年的NO₂、SO₂和污染总量(NO₂和SO₂)。其中,长江三角洲包括上海、江苏、浙江、安徽,珠江三角洲包括广东、广西、福建,东北三省包括黑龙江、吉林、辽宁,华中地区包括湖北、湖南、河南、江西,西南地区包括云南、贵州、四川、重庆,西北地区包括陕西、甘

肃、宁夏、新疆,京津冀包括北京、天津、河北。利用1 DU=2.69×10¹⁶ 分子数/cm²,将NO₂柱总量转换为Dobson单位,便于与SO₂柱总量结果进行统一比较分析。从图2各个地区2004—2014年NO₂和SO₂均值可以看出,拥有高人口密度和高含量工业排放的京津冀地区污染总量最高,其次是长江三角洲、东北三省、华中地区、珠江三角洲、西南地区、西北地区。各研究区域包括城区和郊区及边远地区,NO₂主要来自

于城区中机动车的排放、煤炭工业活动等,SO₂主要来自于煤、油、天然气的燃烧等工业活动,燃煤过程中同时释放SO₂和NO_x,其中氮氧化物释放比例相对较低^[26,48,49]。

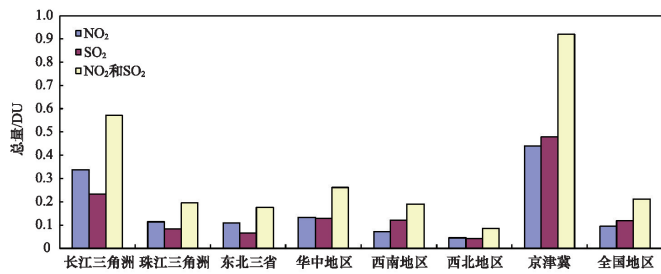
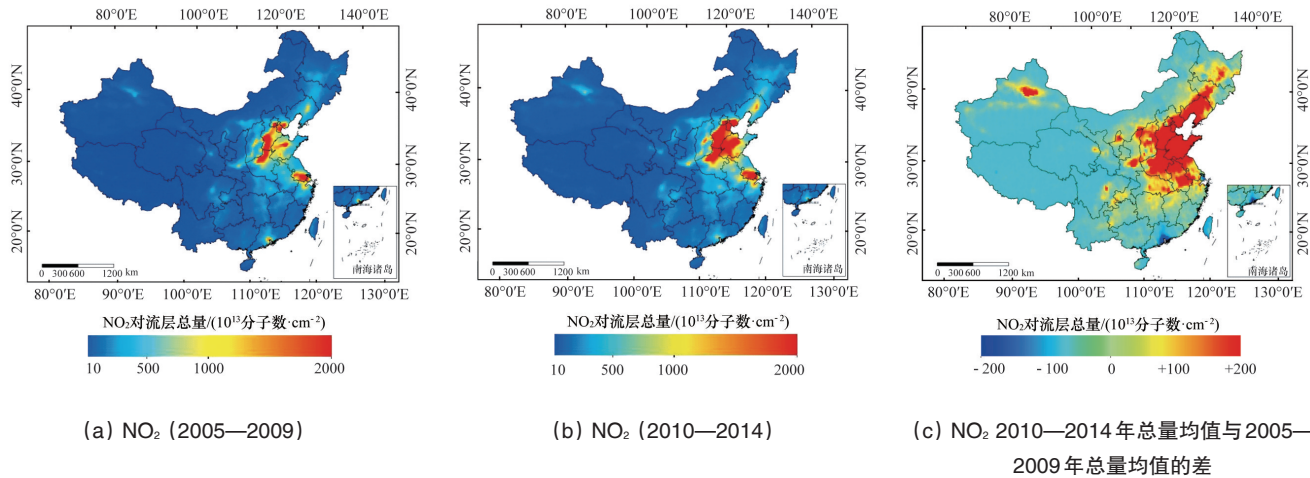


图2 中国各个地区NO₂和SO₂近10年含量平均值比较
(2004-10-01—2014-12-31)

Fig. 2 Averaged OMI NO₂ and SO₂ columns over China regions from October 2004 to December 2014

将2005—2009年和2010—2014年的NO₂和SO₂总量均值进行比较,评估2个5年期间NO₂和SO₂含量的变化。从图3和图4可以看出,较2005—2009年,2010—2014年NO₂总量高值范围有所扩大,河北、山东、河南、安徽、新疆乌鲁木齐等地NO₂含量有所上升,而珠江三角洲、上海等地NO₂含量出现下降。如图3(c)所示,京津冀地区NO₂含量增幅达到27.33%,东北三省增长26.85%,西北地区增长21.64%,而珠江三角洲地区下降约0.27%,全国整体增长约20.48%。与NO₂表现不同,较2005—2009年,2010—2014年SO₂柱总量高值范围有所减小(图4),长江三角洲、珠江三角洲、京津冀等地SO₂含量降幅明显,依次下降34.52%、48.35%、26.68%(图5)。全国大部分地区SO₂含量的降低(下降26.10%),证明了中国燃煤脱硫控制措施的有效性,而由于城市机动车保有量和人类工业活动的增加,脱硝技术的不成熟,中国NO₂含量出现明显的范围扩大和含量增加。



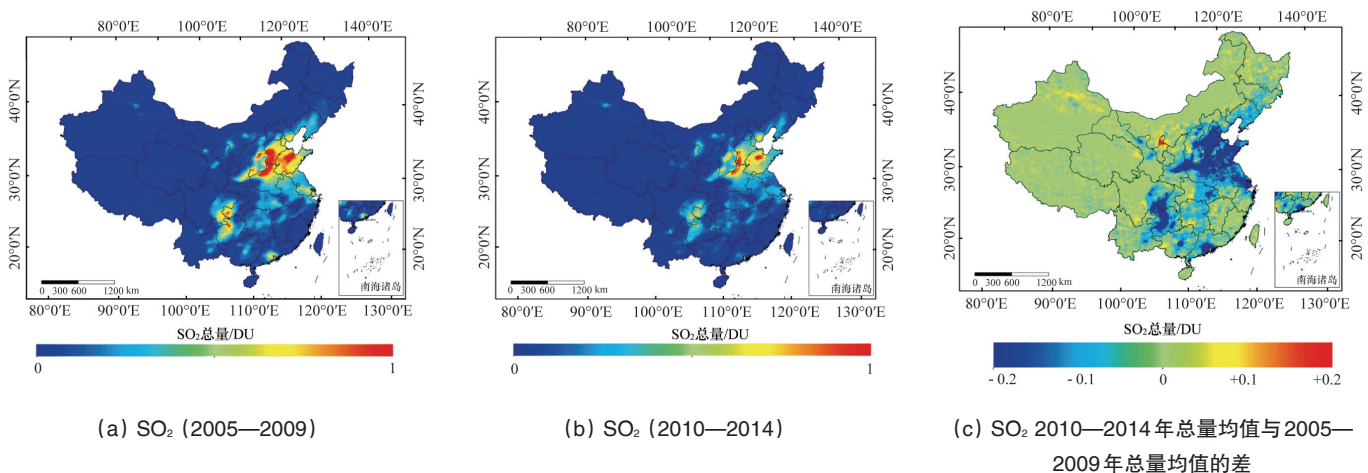
(a) NO₂ (2005—2009)

(b) NO₂ (2010—2014)

(c) NO₂ 2010—2014年总量均值与2005—2009年总量均值的差

图3 全国NO₂对流层总量平均分布

Fig. 3 Spatial distribution of averaged OMI NO₂ tropospheric columns over China



(a) SO₂ (2005—2009)

(b) SO₂ (2010—2014)

(c) SO₂ 2010—2014年总量均值与2005—2009年总量均值的差

图4 全国SO₂总量平均分布

Fig. 4 Spatial distribution of averaged OMI SO₂ tropospheric columns over China

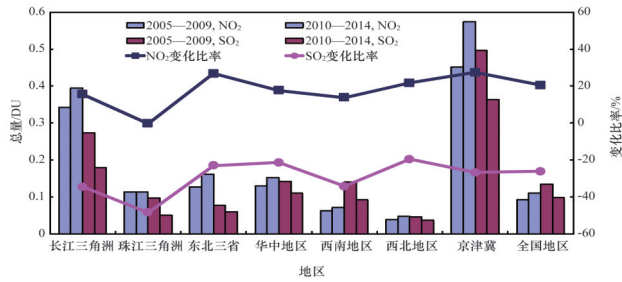
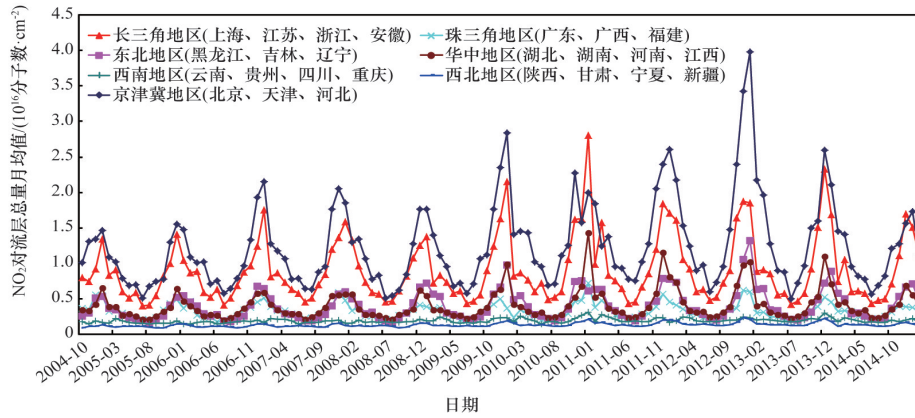


图5 中国各个地区NO₂和SO₂ 2005—2009年和2010—2014年总量变化

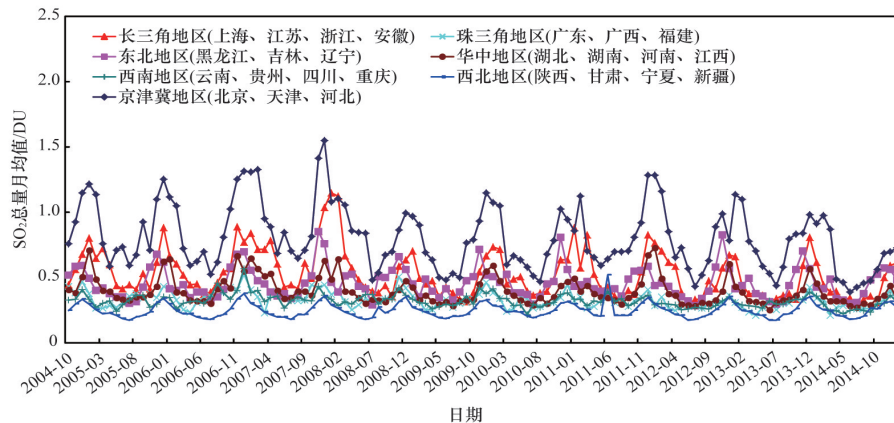
Fig. 5 Changes of NO₂ and SO₂ columns over China regions from 2005—2009 to 2010—2014

2.1.2 中国各个区域NO₂和SO₂的季节变化

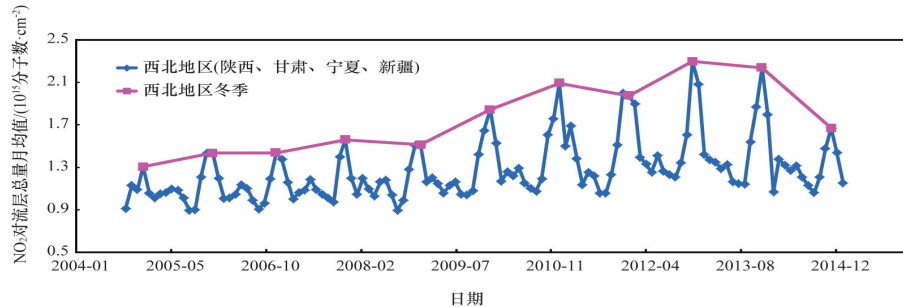
利用2004年10月—2015年2月的OMI观测数据,选择长江三角洲、珠江三角洲、东北地区、华中地区、西南地区、西北地区及京津冀地区,研究分析NO₂和SO₂柱总量的季节变化特征。OMI NO₂和SO₂柱总量月平均变化曲线(图6(a)和(b))显示,中国NO₂和SO₂柱总量呈现明显的季节性周期变化,夏季低值,冬季高值。冬季高值主要是由于冬季人类燃煤取暖,工业排放,以及气粒转换(NO₂和SO₂易被氧化物氧化,转化为硫酸盐和硝酸盐颗粒)的转换率受到低温低湿抑制等^[50,51]。夏季,大气湿度和温度相对较高,气粒转化率较高,频繁降雨大大降低了大气中NO₂和SO₂含量。



(a) NO₂对流层总量月均值变化



(b) SO₂总量月均值变化



(c) 西北地区NO₂对流层总量月均值变化

图6 中国各个区域NO₂和SO₂总量月均值变化(2004—10—2015—02)

Fig. 6 Monthly averaged NO₂ and SO₂ over China regions from October 2004 to February 2015

2013年1月,中国中东部地区发生重度雾霾污染事件,造成大量航班延误、高速公路封闭、呼吸道疾病患者涌向医院急诊室,引起了世界范围的高度关注^[1-4]。该次强霾污染范围涉及中国中东部、东北及西南部分地区,污染最严重的是京津冀区域。本次污染过程中室外能闻到强烈的刺鼻味道,说明大气中气态污染物包括SO₂、氮氧化物及挥发性有机物等。卫星遥感监测结果显示(图6(a)、(b)),2013年1月的NO₂和SO₂含量同时达到了峰值,京津冀2013年1月NO₂柱总量为3.98×10¹⁶分子数/cm²,约是2005年1月(1.47×10¹⁶分子数/cm²)的2.72倍,较2005年1月增长了172%。京津冀2013年1月SO₂柱总量为1.13 DU,略低于2005年1月(1.21 DU)但仍高于临近月份。2014年冬季,在工业减排控制措施和相对有利的气象扩散条件下,京津冀地区的NO₂和SO₂含量低于2006—2013年同期,而由于机动车保有量和工业活动的持续增长,NO₂和SO₂含量仍维持在较高的水平。

西北地区人烟稀少、人类工业活动较少,2005年之前大气中NO₂排放源以土壤、闪电等自然源为主导,夏季NO₂总量出现小高峰,夏季NO₂总量高于冬季^[20]。近年来由于冬季

人类工业排放活动增强,西北地区冬季NO₂总量上升并出现峰值,峰值持续上升,2005年后冬季NO₂含量超过夏季,2014年冬季NO₂含量出现明显下降(图6(c)),这一特征表明了近年来西北地区工业活动增强对本地空气质量的影响。

2.1.3 中国地区NO₂和SO₂的年际变化

从2004—2014年中国各个地区OMI NO₂和SO₂柱总量年平均变化曲线(图7)可以看出,京津冀和长江三角洲地区有着较高的NO₂和SO₂总量年平均均值,京津冀地区的NO₂总量年均约是其他地区的2倍以上,SO₂柱总量约是其他地区的1.5倍,西北地区的NO₂和SO₂低于其他地区。京津冀地区受工业排放、特殊地形及不利气象扩散条件等因素,NO₂和SO₂含量较高,继2005、2006和2007年的持续上升后,NO₂和SO₂总量年均值在2008年出现下降,证明了2008年北京奥运会举办之前和举办期间北京市和周边地区污染减排控制措施实施的有效性。2009—2013年,京津冀地区NO₂年均值呈现增长趋势,SO₂年均值整体呈下降趋势。2014年,京津冀和长江三角洲NO₂和SO₂总量呈明显的下降趋势,以京津冀下降幅度最为明显(NO₂下降28%,SO₂下降21%)。

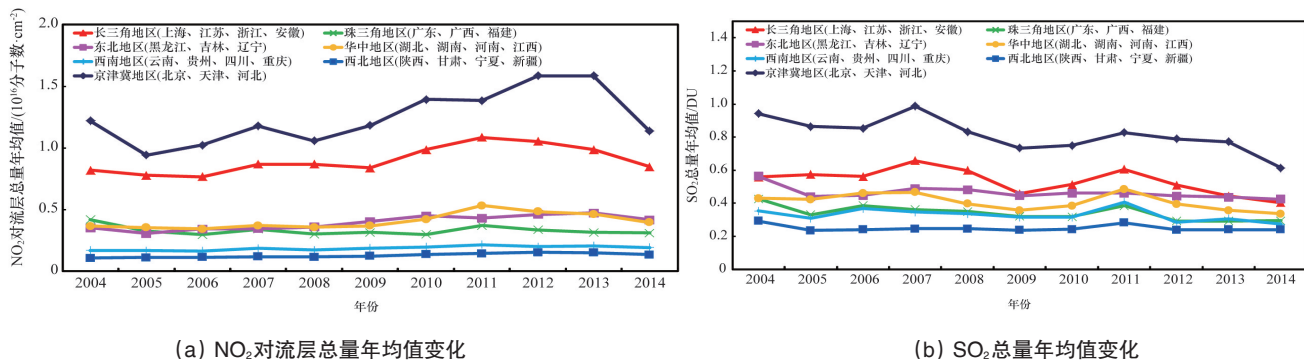


图7 中国各区域NO₂和SO₂柱总量年均值变化(2004—2014年)
Fig. 7 Annually averaged NO₂ and SO₂ over China regions from 2004 to 2014

2.2 全球NO₂和SO₂时空演变特征

2.2.1 全球近10年NO₂和SO₂空间分布格局及变化

从全球NO₂和SO₂柱总量空间分布(图8、图9)可以看出,中国东部、美国东部、荷兰、德国、意大利、南非等地NO₂柱总量较高,中国中东部、美国东部、南非、印度等地SO₂柱总量较高(排除刚果、俄罗斯中北部、墨西哥、秘鲁、哥伦比亚等地火山喷发高值)。

利用OMI 2005—2009年和2010—2014年NO₂和SO₂柱总量均值,比较分析全球NO₂和SO₂总量近10年的空间分布变化。从NO₂ 2010—2014年和2005—2009年差值图(图10)可以看出,美国东部、中国珠江三角洲、中国上海、日本、西班牙、葡萄牙、意大利北部、迪拜等地2010—2014年较2005—2009年NO₂总量出现了明显的下降,而中国东部地区、乌鲁木齐、波兰大部、伊朗德黑兰、伊拉克巴格达、科威特、沙特利雅

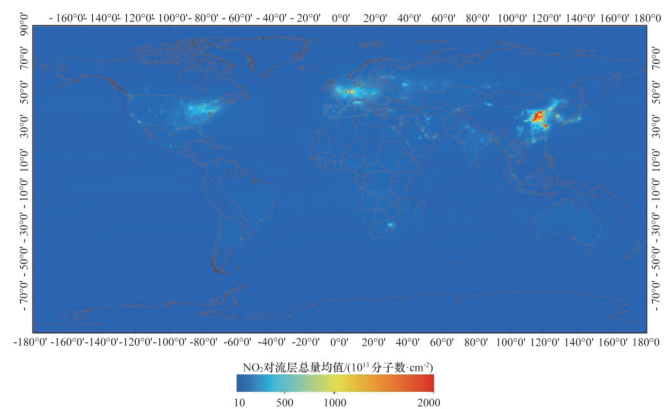
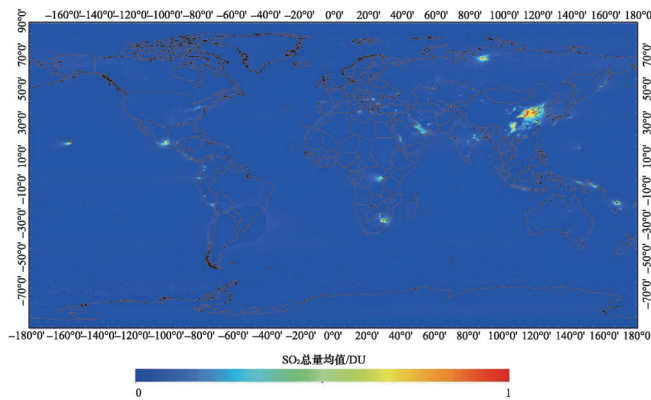
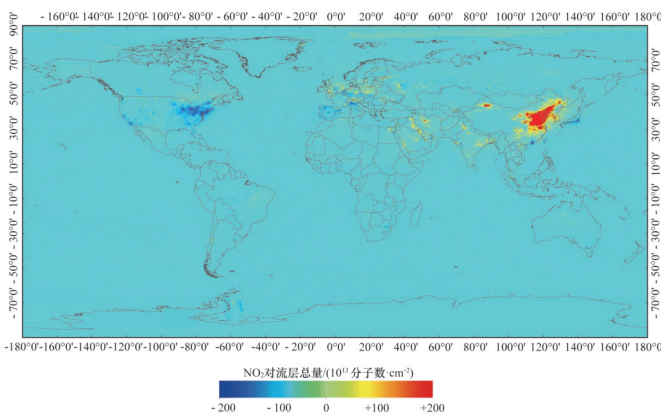


图8 全球NO₂对流层总量均值分布(2004—10—2014—12)
Fig. 8 Global NO₂ tropospheric columns from October 2004 to December 2014

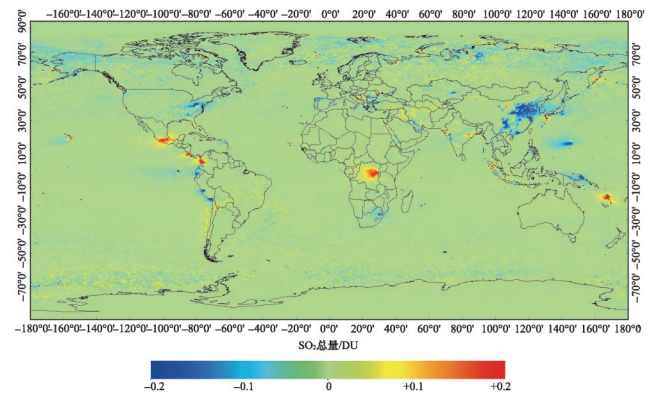
图9 全球SO₂总量均值分布(2004-10—2014-12)Fig. 9 Global SO₂ tropospheric columns from October 2004 to December 2014图10 全球NO₂对流层总量2010—2014年年均值与2005—2009年年均值差值分布Fig. 10 Global changes of NO₂ tropospheric columns from 2005-2009 to 2010-2014

得、印度新德里、印度巴朗格伊尔及周边、孟加拉国达卡、智利圣地亚哥等地,2010—2014年较2005—2009年NO₂总量出现了不同程度的上升。其中,中国东部NO₂高值扩张范围和程度较明显。

NO₂含量变化与当地的机动车数量、煤炭消耗等工业活动相关。当前中国的煤炭消耗产业中,虽制定并实施了有效的脱硫控制措施,但煤炭脱硝技术仍不成熟。中国对燃煤设施的脱硝控制刚刚起步,一些工业燃煤的氮氧化物排放甚至没有脱硝控制,燃烧过程中会释放大量的氮氧化物(NO和NO₂)。因此,从2005—2009年和2010—2014年的对比中可以看出,中国东部大部分地区2010—2014年NO₂总量高于2005—2009年。

从2010—2014年和2005—2009年SO₂差值可以看出(图11),中国华北和华东大部、重庆和贵州大部、珠江三角洲、长江三角洲、美国东部、南非姆普马兰加及周边等地的SO₂总量2010—2014年较2005—2009年有所下降,而秘鲁利马、秘鲁

南部^[52]等地的SO₂总量有所增长。需要注意的是,SO₂总量在北马里亚纳的降低、巴布亚新几内亚的降低、瓦努阿图的上升(Yasur火山,近十年来持续火山喷发,2010—2014年较2005—2009年活动较频繁)、厄瓜多尔的降低、哥伦比亚西海岸的上升(Nevado del Ruiz火山,自2010年来间断性喷发)、刚果局地的降低(Nyamuragira和Nyiragongo两座火山,近年来一直有喷发活动)是因为火山喷发所致(火山活动记录详见<http://www.volcano.si.edu/index.cfm>)。全球地区2005—2009年和2010—2014年的比对也显示(图10),有效的脱硫减排措施使得中国东部大部分地区的SO₂总量2010—2014年较2005—2009年有明显的下降。

图11 全球SO₂总量2010—2014年年均值与2005—2009年年均值差值分布Fig. 11 Global changes of SO₂ tropospheric columns from 2005-2009 to 2010-2014

2.2.2 全球主要城市NO₂和SO₂总量的比较

选择全球7个主要城市区域进行NO₂和SO₂总量的比较分析,分别是中国北京(116.1°E~116.6°E,39.7°N~40.2°N),中国石家庄(114.3°E~114.8°E,37.8°N~38.3°N),中国乌鲁木齐(87.3°E~87.8°E,43.5°N~44°N),美国纽约(73.7°W~74.2°W,40.3°N~40.8°N),德国科隆(6.7°E~7.2°E,50.7°N~51.2°N),俄罗斯莫斯科(37.4°E~37.9°E,55.5°N~56°N),南非姆普马兰加(29.2°E~29.7°E,26.2°S~26.7°S)。为有效评价不同城市污染气体的变化,7个城市区域选择范围大小相同(0.5°×0.5°),研究区域像元数一致。

从图12可以看出,中国石家庄近10年NO₂总量均值最高,24.3×10¹⁵分子数/cm²。中国北京的NO₂10年年均值达到17.6×10¹⁵分子数/cm²,比石家庄低38%。美国纽约、德国科隆、俄罗斯莫斯科及南非姆普马兰加的NO₂含量均值在1×10¹⁶分子数/cm²左右。中国乌鲁木齐的NO₂总量较低,近10年年均值为5.2×10¹⁵分子数/cm²。近10年SO₂总量平均显示,南非姆普马兰加、中国石家庄、中国北京的SO₂总量(均值分别为1.08、1.11、0.43 DU)明显高于美国纽约、德国科隆、俄罗斯莫斯科。中国石家庄、南非姆普马兰加城市的SO₂总量高于

NO₂总量,表明了这些城市燃煤工业活动较强。值得注意的是,中国北京、中国乌鲁木齐、美国纽约、德国科隆、俄罗斯莫斯科

斯科城市NO₂总量高于SO₂,这是因为城市区域机动车NO₂排放较高,而含硫煤炭相关工业一般位于郊区或边远地区。

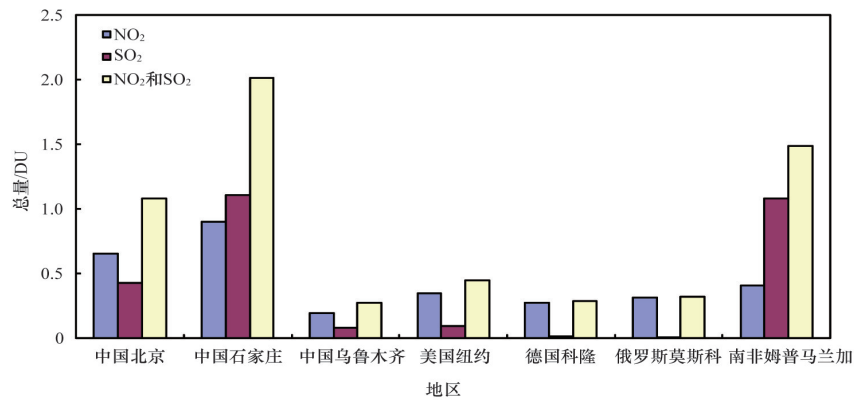


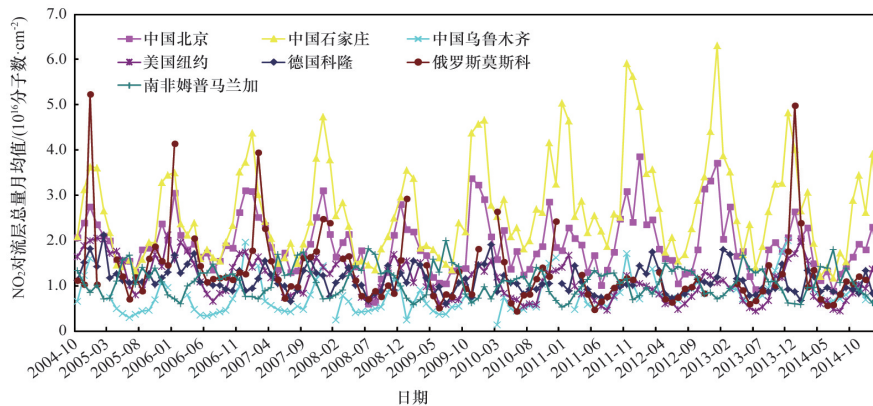
图 12 全球主要城市NO₂和SO₂总量近10年总量均值比较(2004-10-01—2014-12-31)

Fig. 12 Averaged OMI NO₂ and SO₂ columns over world's major cities from October 2004 to December 2014

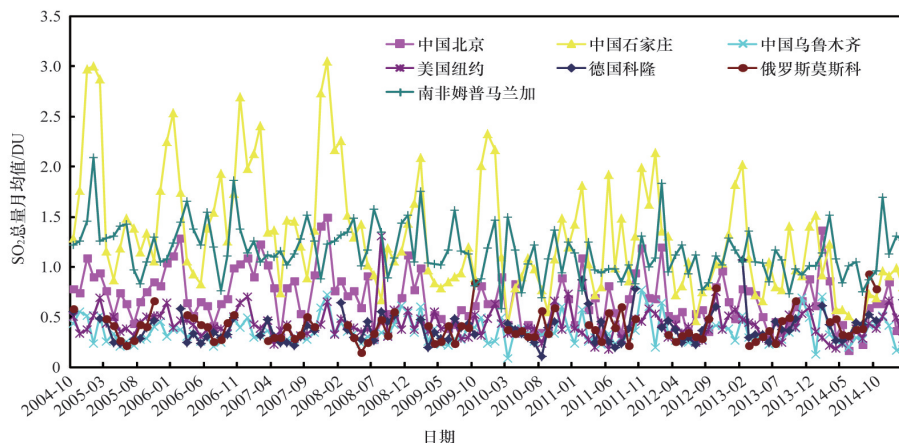
2.2.3 全球主要城市NO₂和SO₂总量的季节及年际变化

利用2004年10月—2015年2月的OMI观测数据,分析了7个全球主要城市区域的NO₂和SO₂总量的季节变化和年际变化。

图13显示,由于选择的城市区域范围较小(0.5°×0.5°)、像元数偏少、均值误差较大,较3.1节中国各区域月均值变化、全球主要城市的月均值误差较大,但仍可反映出NO₂和SO₂冬季高夏季低季节变化特征。



(a) NO₂对流层总量月均值变化



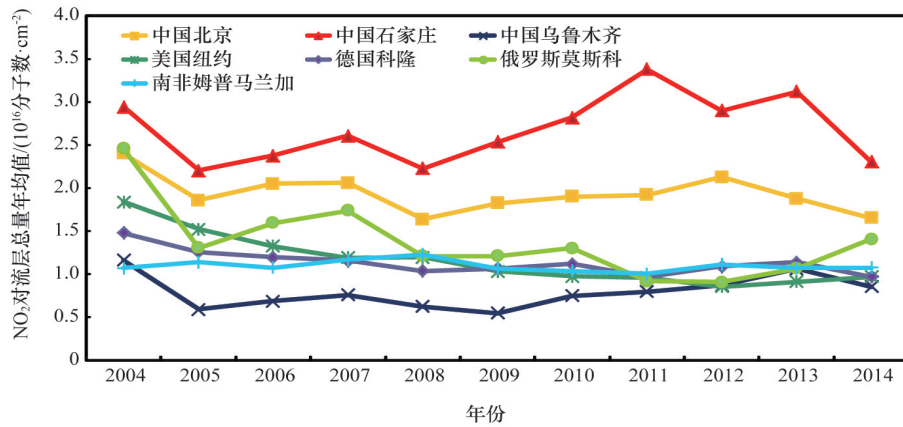
(b) SO₂总量月均值变化

图 13 全球主要城市区域NO₂和SO₂总量月均值变化(2004-10—2015-02)

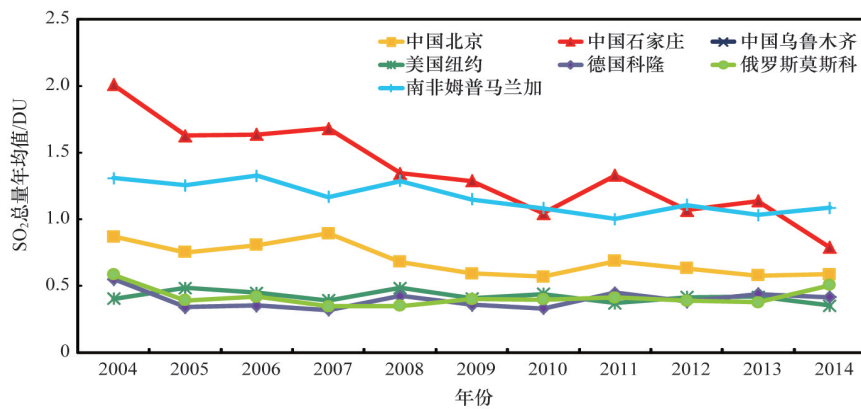
Fig. 13 Monthly averaged NO₂ and SO₂ over world's major cities from October 2004 to February 2015

图14为2004—2014年全球主要城市区域NO₂和SO₂总量年平均变化曲线。石家庄和北京地区NO₂含量较高,NO₂和SO₂总量年均值在2008年出现下降,2009—2011年,石家庄和北京地区NO₂含量持续增长,其中石家庄地区增长较为明

显。俄罗斯莫斯科NO₂含量2008—2012年整体呈下降趋势,2013和2014年有所上升,较其他6个主要城市区域SO₂含量低。南非姆普马兰加SO₂含量较高(高于NO₂),仅次于中国石家庄。



(a) NO₂对流层总量年均值变化



(b) SO₂总量年均值变化

图14 全球主要城市区域NO₂和SO₂总量年平均(2004—2014年)

Fig. 14 Annually averaged NO₂ and SO₂ over world's major cities from 2004 to 2014

3 结论

利用高光谱卫星传感器OMI NO₂和SO₂观测数据,分析了中国和全球NO₂和SO₂时空演变特征。

1) 中国NO₂对流层总量的高值主要集中在京津冀及周边、长江三角洲、珠江三角洲、新疆乌鲁木齐、辽宁沈阳、陕西西安等地,SO₂主要集中在京津冀、长江三角洲、珠江三角洲、四川、重庆等地。

2) 较2005—2009年,2010—2014年NO₂高值区范围有所扩大,河北、山东、河南、安徽、新疆乌鲁木齐等地NO₂总量有所上升,而珠江三角洲、上海等地NO₂总量有所下降。与NO₂时空变化不同,较2005—2009年,2010—2014年SO₂高值区范围有所缩小,且河北、山东、河南、安徽、江苏、上海、重庆、贵州、珠江三角洲等地SO₂总量有所降低。中国大部分地区SO₂含量的降低,有力证明了中国燃煤脱硫控制措施的有效

性,而由于城市机动车和工业活动的增加、脱硝技术的不成熟等因素,导致NO₂高值区范围扩大和含量升高。

3) 以土壤、闪电等自然源排放为主导的西北地区,近年来由于冬季人类工业活动的增强,西北地区冬季NO₂总量上升并出现峰值,NO₂季节变化逐渐呈现夏季和冬季双峰结构。

4) 在全球范围内,中国东部、美国东部、荷兰、德国、意大利、南非等地NO₂含量较高,中国中东部、美国东部、南非、印度等地SO₂含量较高。较2005—2009年,2010—2014年美国东部、中国珠江三角洲、中国上海、日本、西班牙、葡萄牙、意大利北部、迪拜等地NO₂总量下降明显,而2010—2014年中国东部地区、乌鲁木齐、波兰大部、伊朗德黑兰、伊拉克巴格达、科威特、沙特利雅得、印度新德里、印度巴朗格伊尔及周边、孟加拉国达卡、智利圣地亚哥等地NO₂总量却有不同程度

的上升。较2005—2009年,2010—2014年中国华北大部、重庆和贵州大部、珠江三角洲、长江三角洲、美国东部、南非姆普马兰加及周边等地的SO₂总量有所下降,而秘鲁利马、秘鲁南部等地SO₂总量出现增长。

5) 全球7大主要城市近10年NO₂和SO₂总量比较结果显示,中国石家庄NO₂总量均值最高,其次为中国北京、俄罗斯莫斯科、南非姆普马兰加、美国纽约、德国科隆、中国乌鲁木齐;南非姆普马兰加、中国石家庄、中国北京的SO₂总量明显高于美国纽约、德国科隆、俄罗斯莫斯科;中国北京、中国乌鲁木齐、美国纽约、德国科隆、俄罗斯莫斯科城市NO₂对流层总量高于SO₂,这与城市机动车数量及工业结构有关,含硫煤炭相关工业一般位于郊区或边远地区。

参考文献(References)

- [1] 丁一汇, 柳艳菊. 近50年我国雾和霾的长期变化特征及其与大气湿度的关系[J]. 中国科学: 地球科学, 2014, 44(1): 37-48.
Ding Yihui, Liu Yanju. Analysis of long-term variations of fog and haze in China in recent 50 years and their relations with atmospheric humidity [J]. Science China: Earth Sciences, 2014, 44(1): 36-46.
- [2] 王跃思, 姚利, 王莉莉, 等. 2013年元月我国中东部地区强霾污染成因分析[J]. 中国科学: 地球科学, 2014, 44(1): 15-26.
Wang Yuesi, Yao Li, Wang Lili, et al. Mechanism for the formation of the January 2013 heavy haze pollution episode over central and eastern China [J]. Science China: Earth Sciences, 2014, 44(1): 14-25.
- [3] 王自发, 李杰, 王哲, 等. 2013年1月我国中东部强霾污染的数值模拟和防控对策[J]. 中国科学: 地球科学, 2014, 44(1): 3-14.
Wang Zifa, Li Jie, Wang Zhe, et al. Modeling study of regional severe hazes over mid-eastern China in January 2013 and its implications on pollution prevention and control[J]. Science China: Earth Sciences, 2014, 44(1): 3-13.
- [4] 张人禾, 李强, 张若楠. 2013年1月中国东部持续性强雾霾天气产生的气象条件分析[J]. 中国科学: 地球科学, 2014, 44(1): 27-36.
Zhang Renhe, Li Qiang, Zhang Ruonan. Meteorological conditions for the persistent severe fog and haze event over eastern China in January 2013 [J]. Science China: Earth Sciences, 2014, 44(1): 26-35.
- [5] Fishman J, Bowman K W, Burrows J P, et al. Remote sensing of tropospheric pollution from space[J]. Bulletin of the American Meteorological Society, 2008, 89(6): 805-821.
- [6] Martin R V. Satellite remote sensing of surface air quality[J]. Atmospheric Environment, 2008, 42(34): 7823-7843.
- [7] Carn S A, Krueger A J, Krotkov N A, et al. Fire at Iraqi sulfur plant emits SO₂ clouds detected by Earth Probe TOMS[J]. Geophysical Research Letters, 2004, 31(19): 329-340.
- [8] Krueger A J. Sighting of El Chichón sulfur dioxide clouds with the nimbus 7 total ozone mapping spectrometer[J]. Science, 1983, 220(4604): 1377-1379.
- [9] Burrows J P, Weber M, Buchwitz M, et al. The global ozone monitoring experiment (GOME): Mission concept and first scientific results[J]. Journal of the Atmospheric Sciences, 1999, 56(2): 151-175.
- [10] Eisinger M, Burrows J P. Tropospheric sulfur dioxide observed by the ERS-2 GOME instrument[J]. Geophysical Research Letters, 1998, 25(22): 4177-4180.
- [11] Martin R V, Chance K, Jacob D J, et al. An improved retrieval of tropospheric nitrogen dioxide from GOME[J]. Journal of Geophysical Research, 2002, 107(D20): 4437-4456.
- [12] Gottwald M, Bovensmann H, Lichtenberg G, et al. SCIAMACHY, monitoring the changing Earth's atmosphere[M]. DLR: Springer, 2006.
- [13] Richter A, Wittrock F, Burrows J P. SO₂ measurements with SCIAMACHY [C]//Proceeding of Atmospheric Science Conference. Frascati, Italy: European Space Agency, 2006: 8-12.
- [14] Levelt P F, van den Oord G H J, Dobber M R, et al. The ozone monitoring instrument[J]. IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing, 2006, 44(5): 1093-1101.
- [15] Munro R, Eisinger M, Anderson C, et al. GOME-2 on MetOp[C]//Proceeding of the 2006 EUMETSAT Meteorological Satellite Conference. Helsinki, Finland, 2006: 12-16.
- [16] Richter A. Algorithm theoretical basis document for the GOME-2 rapid volcanic SO₂ product[EB/OL]. 2009-09-05[2015-06-18]. <http://savaa.nilu.no/PublicArchive.aspx>.
- [17] Valks P, Pinardi G, Richter A, et al. Operational total and tropospheric NO₂ column retrieval for GOME-2[J]. Atmospheric Measurement Techniques, 2011, 4(7): 1491-1514.
- [18] 李莹. 地基DOAS观测反演的NO₂柱总量与SCIAMACHY卫星NO₂数据的比较及NO₂时空分布研究[D]. 北京: 北京大学, 2006.
Li Ying. Study of distribution property of NO₂ from SCIAMACHY and comparison between satellite and ground based NO₂ column by DOAS observation[D]. Beijing: Peking University, 2006.
- [19] 齐瑾. 利用SCIAMACHY/ENVISAT资料开展中国区域NO₂反演研究[D]. 北京: 中国气象科学研究院, 2007.
Qi Jin. Retrieval of nitrogen dioxide total column over China from SCIAMACHY/ENVISAT data[D]. Beijing: Chinese Academy of Meteorological Sciences, 2007.
- [20] 张兴赢, 张鹏, 张艳, 等. 近10a中国对流层NO₂的变化趋势, 时空分布特征及其来源解析[J]. 中国科学: D辑, 2007, 37(10): 1409-1416.
Zhang Xingying, Zhang Peng, Zhang Yan, et al. The trend, seasonal cycle, and sources of tropospheric NO₂ over China during 1997-2006 based on satellite measurement[J]. Science China: Earth Sciences, 2007, 50(12): 1877-1884.
- [21] 张彦军, 牛铮, 王力, 等. 基于OMI卫星数据的城市对流层NO₂变化趋势研究[J]. 地理与地理信息科学, 2008, 24(3): 96-99.
Zhang Yanjun, Niu Zheng, Wang Li, et al. Study on tropospheric NO₂ change trend in cities using OMI satellite data[J]. Geography and Geo-Information Science, 2008, 24(3): 96-99.
- [22] 岳捷. 利用卫星遥感数据对中国和美国对流层NO₂分布和变化特征进行对比研究[D]. 北京: 北京大学, 2008.
Yue Jie. Comparison of seasonal variations of tropospheric NO₂ over China and America using satellite remote-sensing data[D]. Beijing: Peking University, 2008.
- [23] Witte J C, Schoeberl M R, Douglass A R, et al. Satellite observations of changes in air quality during the 2008 Beijing Olympics and Paralympics [J]. Geophysical Research Letters, 2009, 36(17): 37-44.
- [24] 孟晓艳, 王普才, 王庚辰, 等. 北京及其周边地区冬季SO₂的变化与输送特征[J]. 气候与环境研究, 2009, 14(3): 309-317.
Meng Xiaoyan, Wang Pucai, Wang Gengchen, et al. Variation and

- transportation characteristics of SO₂ in winter over Beijing and its surrounding areas[J]. *Climatic and Environmental Research*, 2009, 14(3): 309-317.
- [25] 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(8): 932-937.
Wang Yueqi, Jiang Hong, Zhang Xiuying, et al. Temporal-spatial distribution of tropospheric NO₂ in China using OMI satellite remote sensing data[J]. *Research of Environmental Sciences*, 2009(8): 932-937.
- [26] Li C, Zhang Q, Krotkov N A, et al. Recent large reduction in sulfur dioxide emissions from Chinese power plants observed by the ozone monitoring instrument[J]. *Geophysical Research Letters*, 2010, 37(8): 292-305.
- [27] Zhang X Y, van Geffen J, Liao H, et al. Spatiotemporal variations of tropospheric SO₂ over China by SCIAMACHY observations during 2004-2009[J]. *Atmospheric Environment*, 2012, 60: 238-246.
- [28] Jiang J, Zha Y, Gao J, et al. Monitoring of SO₂ column concentration change over China from Aura OMI data[J]. *International Journal of Remote Sensing*, 2012, 33(6): 1934-1942.
- [29] Perner D, Platt U. Detection of nitrous-acid in the atmosphere by differential optical-absorption[J]. *Geophysical Research Letters*, 1979, 6(12): 917-920.
- [30] Platt U, Perner D, Patz H W. Simultaneous measurement of atmospheric CH₂O, O₃, and NO₂ by differential optical-absorption[J]. *Journal of Geophysical Research-Oceans and Atmospheres*, 1979, 84(C10): 6329-6335.
- [31] Richter A, Burrows J P. Tropospheric NO₂ from GOME measurements[J]. *Advances in Space Research*, 2002, 29(11): 1673-1683.
- [32] Platt U, Stutz J. *Differential optical absorption spectroscopy: Principles and applications*[M]. Verlag Berlin Heidelberg: Springer, 2008.
- [33] Platt U. *Differential optical absorption spectroscopy (DOAS)*[M]// Sigrist M W. *Air Monitoring by Spectroscopic Techniques*. Chemical Analysis Series. New York: John Wiley & Sons, 1994: 27-84.
- [34] Boersma K F, Eskes H J, Veefkind J P, et al. Near-real time retrieval of tropospheric NO₂ from OMI[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2007, 7(8): 2103-2118.
- [35] Boersma K, Jacob D J, Bucsela E, et al. Validation of OMI tropospheric NO₂ observations during INTEX-B and application to constrain NO_x emissions over the eastern United States and Mexico[J]. *Atmospheric Environment*, 2008, 42(19): 4480-4497.
- [36] Bucsela E, Perring A, Cohen R, et al. Comparison of tropospheric NO₂ from in situ aircraft measurements with near-real-time and standard product data from OMI[J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* (1984-2012), 2008, 113(D16): 523-531.
- [37] Boersma K F, Jacob D J, Eskes H J, et al. Intercomparison of SCIAMACHY and OMI tropospheric NO₂ columns: Observing the diurnal evolution of chemistry and emissions from space[J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2008, 113(D16), doi: 10.1029/2007JD008816.
- [38] Boersma K, Jacob D J, Trainic M, et al. Validation of urban NO₂ concentrations and their diurnal and seasonal variations observed from the SCIAMACHY and OMI sensors using in situ surface measurements in Israeli cities[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2009, 9(12): 3867-3879.
- [39] Heland J, Schlager H, Richter A, et al. First comparison of tropospheric NO₂ column densities retrieved from GOME measurements and in situ aircraft profile measurements[J]. *Geophysical Research Letters*, 2002, 29(20): 44-41-44-44.
- [40] 徐晋, 谢品华, 司福祺, 等. 奥运期间北京对流层 NO₂ 柱浓度地基多轴差分吸收光谱仪观测与 OMI 的对比[J]. *大气与环境光学学报*, 2009(5): 347-355.
Xu Jin, Xie Pinhua, Si Fuqi, et al. Comparison of OMI and ground-based MAX-DOAS measurements of tropospheric nitrogen dioxide in Beijing during the olympic games[J]. *Journal of Atmospheric and Environmental Optics*, 2009(5): 347-355.
- [41] Fioletov V, McLinden C, Krotkov N, et al. Application of OMI, SCIAMACHY, and GOME-2 satellite SO₂ retrievals for detection of large emission sources[J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2013, 118(19): 11, 399-311, 418.
- [42] Krotkov N A, McClure B, Dickerson R R, et al. Validation of SO₂ retrievals from the ozone monitoring instrument over ne China[J]. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 2008, 113(D16): 259-269.
- [43] Lee C, Martin R V, van Donkelaar A, et al. SO₂ emissions and lifetimes: Estimates from inverse modeling using in situ and global, space-based (SCIAMACHY and OMI) observations[J]. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 2011, 116(D6): 161-165.
- [44] McLinden C A, Fioletov V, Boersma K F, et al. Air quality over the Canadian oil sands: A first assessment using satellite observations[J]. *Geophysical Research Letters*, 2012, 39(4): 81-83.
- [45] Yan H H, Chen L F, Tao J H, et al. SO₂ long-term monitoring by satellite in the Pearl River Delta[J]. *Journal of Remote Sensing*, 2012, 16(2): 390-404.
- [46] Krotkov N A, Carn S A, Krueger A J, et al. Band residual difference algorithm for retrieval of SO₂ from the aura Ozone Monitoring Instrument (OMI)[J]. *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, 2006, 44(5): 1259-1266.
- [47] Li C, Joiner J, Krotkov N A, et al. A fast and sensitive new satellite SO₂ retrieval algorithm based on principal component analysis: Application to the ozone monitoring instrument[J]. *Geophysical Research Letters*, 2013, 40(23): 6314-6318.
- [48] Zhang Q, Streets D G, He K. Satellite observations of recent power plant construction in Inner Mongolia, China[J]. *Geophysical Research Letters*, 2009, 36(15): 1-5.
- [49] 吴代赦, 郑宝山, 唐修义, 等. 中国煤中氮的含量及其分布[J]. *地球与环境*, 2006, 34(1): 1-6.
Wu Daishe, Zheng Baoshan, Tang Xiuyi, et al. Contents and distribution of nitrogen in Chinese coals[J]. *Earth and Environment*, 2006, 34(1): 1-6.
- [50] Eatough D J, Christensen J J, Eatough N L, et al. Sulfur chemistry in a copper smelter plume[J]. *Atmospheric Environment*, 1982, 16(5): 1001-1015.
- [51] Khoder M I. Atmospheric conversion of sulfur dioxide to particulate sulfate and nitrogen dioxide to particulate nitrate and gaseous nitric acid in an urban area[J]. *Chemosphere*, 2002, 49(6): 675-684.
- [52] Carn S A, Krueger A J, Krotkov N A, et al. Sulfur dioxide emissions from Peruvian copper smelters detected by the ozone monitoring instrument [J]. *Geophysical Research Letters*, 2007, 34(9): 1093-1101.

(责任编辑 吴晓丽)