

蔡子颖,郝 团,张 敏,等.基于数值模拟天津臭氧污染特征及其气象影响评估分析方法研究 [J]. 中国环境科学, 2025,45(4):1810-1819.

Cai Z Y, Hao J, Zhang M, et al. Research on the characteristics of ozone pollution and meteorological impact assessment method in Tianjin based on numerical simulation [J]. China Environmental Science, 2025,45(4):1810-1819.

基于数值模拟天津臭氧污染特征及其气象影响评估分析方法研究

蔡子颖^{1,2,3*},郝 团³,张 敏^{1,2},樊文雁¹,韩素芹^{1,2},邱晓滨³,唐颖潇^{1,2},杨 旭^{1,2},姚 青^{1,2} (1.天津市环境气象中心,天津 300074; 2.中国气象局-南开大学大气环境与健康研究联合实验室,天津 300074; 3.天津市气象科学研究所,天津 300074)

摘要: 针对现有臭氧污染气象条件评估方法缺少边界层指标导致表征能力偏差问题,基于 2019~2023 年气象和环境观测数据,结合臭氧数值模拟,在实现模式臭氧标记法源追踪和过程速率分析技术嵌入基础上,联合观测数据构建天津臭氧污染气象条件评估指数(OWI),实现天津臭氧污染气象条件精准评估.研究表明:臭氧浓度和气象条件密切相关,基于平均气温、最高气温、相对湿度、日降水量、白天紫外辐射、午间紫外辐射、日照时数、平均风速和风向构建 OWI 指数,可初步实现气象条件对臭氧浓度影响表征,该指数与 O₃ 浓度相关系数 0.82,可识别 82%的臭氧轻度及以上污染.分析白天和夜间边界层高度对前体物扩散、近地面氮氧化物滴定和臭氧垂直交换影响,针对垂直扩散条件较好时,OWI 指数表征 O₃ 浓度较实况偏高问题,增加白天和夜间边界层高度指标优化 OWI 指数.通过臭氧数值模拟,实现水平、垂直输送、对流、化学生成、湍流混合和区域输送对臭氧浓度影响计算,联合模拟结果和观测,优化特定条件下 OWI 指数,如白天垂直输送大于 15 $\mu\text{g}/(\text{m}^3\cdot\text{h})$,白天臭氧化学生成量大于 20 $\mu\text{g}/(\text{m}^3\cdot\text{h})$,适当调高 OWI 指数;区域输送过强时,计算周边臭氧污染气象条件指标,综合判断气象条件对臭氧影响.

关键词: 臭氧; 污染气象条件评估; 环境模式; 边界层; 天津

中图分类号: X513 文献标识码: A 文章编号: 1000-6923(2025)04-1810-10

Research on the characteristics of ozone pollution and meteorological impact assessment method in Tianjin based on numerical simulation. CAI Zi-ying^{1,2,3*}, HAO Jian³, ZHANG-min^{1,2}, FAN Wen-yan¹, HAN Su-qin^{1,2}, QIU Xiao-bin³, TANG Yin-xiao^{1,2}, YANG Xu^{1,2}, YAO Qing^{1,2} (1.Tianjin Environmental Meteorological Center, Tianjin 300074, China; 2.CMA-NKU Cooperative Laboratory for Atmospheric Environment-Health Research, Tianjin 300074, China; 3.Tianjin Institute of Meteorology, Tianjin 300074, China). *China Environmental Science*, 2025,45(4): 1810~1819

Abstract: To address the issue of biases in the representational capabilities of existing assessment methods for ozone pollution meteorological conditions, stemming from a lack of boundary layer indicators, this study utilized meteorological and environmental observation data collected from 2019 to 2023. By integrating ozone numerical simulations and incorporating source tracking along with process rate analysis techniques within the model framework, we developed a joint model and observation-based Tianjin Ozone Pollution Meteorological Condition Assessment Index (OWI). This index aims to accurately assess ozone pollution meteorological conditions in Tianjin. The research findings reveal a strong correlation between ozone concentrations and various meteorological factors. The OWI index was constructed based on parameters such as average temperature, maximum temperature, relative humidity, daily precipitation, daytime ultraviolet radiation, midday ultraviolet radiation, sunshine duration, average wind speed, and wind direction. It effectively characterizes the impact of these meteorological conditions on ozone levels. Notably, this index exhibits a correlation coefficient of 0.82 with O₃ concentration and demonstrates an ability to identify 82% of mild or more severe ozone pollution incidents. Furthermore, by analyzing the effects of daytime and nighttime boundary layer heights on precursor diffusion processes—such as near-surface nitrogen oxide titration and vertical exchange of ozone—the study addresses potential overestimations in O₃ concentrations by the OWI index under favorable vertical diffusion conditions. To optimize the OWI index further, we incorporated indicators for both daytime and nighttime boundary layer heights. Through ozone numerical simulations, the study calculated the effects of horizontal and vertical transport, convection, chemical generation, turbulent mixing, and regional transport on ozone levels. By combining simulation results with observations, the OWI index was optimized under specific conditions, such as adjusting upwards when daytime vertical transport exceeds 15 $\mu\text{g}/(\text{m}^3\cdot\text{h})$ or daytime ozone chemical generation exceeds 20 $\mu\text{g}/(\text{m}^3\cdot\text{h})$; and considering surrounding meteorological conditions and ozone transport impacts when regional transport was too strong.

Key words: ozone; pollution weather condition assessment; environmental models; boundary layer; Tianjin

收稿日期: 2024-09-06

基金项目: 气象能力提升联合研究专项(23NLTSQ009)

* 责任作者, 正高级工程师, 120078030@163.com

O₃ 作为一种光化学污染,是挥发性有机物和氮氧化物在太阳光照射下发生光化学反应的产物.长时间和高浓度 O₃ 污染事件爆发是夏季高温强辐射天气困扰人们的重要大气环境问题^[1].短期内臭氧波动受气象因素诱导,长期主要受前体物排放变化和气候变化影响,臭氧污染过程往往伴随高温、低湿、强辐射等气象特征,各级气象与生态环境部门基于气象对臭氧浓度影响的可预测性,联合开展了臭氧及其污染气象条件预报,并在全国范围开展气象条件对臭氧影响评估业务.

臭氧污染气象条件预报评估技术可分为三类,天气学分析法、统计分析法和数值模拟法.天气学分析法由业务人员通过分析气温、辐射等光化学气象条件,以及环流、地面形势和风场,预判和诊断臭氧污染发生潜势^[2-4],天气学分析法依赖主观经验、臭氧污染概念模型^[4]以及分析阈值指标.统计分析法则是通过数据分析挖掘建立数据之间关联关系,过去主要为回归方程,随着人工智能和机器学习技术^[5-7]发展,诸如 BP 神经网络和卷积神经网络^[8]等技术更多应用于现阶段臭氧污染气象条件预报和评估,且呈现了不错效果,如张恒德等^[9]基于 BP 神经网络预测京津冀地区 O₃,预报值和实况相关系数在 0.8 以上.数值模式是利用计算机求解关于大气动力、大气物理、大气化学以及陆面作用的数学方程来实现臭氧预测模拟,目前已发展至第三代空气质量模型,国外模型主要有 WRF/Chem、CMAQ 和 CAMx,国内有 NAQPMS、CMA-CUACE 和 NJU-CAQPS^[10-13].

科学实现臭氧污染气象条件预报和评估,首先是光化学条件^[14-15]分析,紫外辐射驱动 VOCs 和氮氧化物光解^[16-17].气温直接影响光化学反应速率,以及通过影响土壤氮氧化物和 BVOC 排放间接调控 O₃ 生成^[18-19].其次为扩散和干湿清除,风通过垂直扩散和水平输送影响 O₃ 及其前体物浓度^[20],京津冀和山东对天津 O₃ 输送贡献为 48.3%^[21].目前中国气象局印发《气象条件对臭氧浓度变化影响评估服务规范》建立的环流、气温、辐射、风和降水为指标臭氧污染气象条件评估方法即从这个思路建立^[22-23].由于臭氧三维传输特征,该方法可能存在两点不足:一是中-重污染,只分析光化学条件,不分析垂直输送和湍流混合,易造成中-重臭氧污染轻判.二是良-轻污染,只分析光化学条件,不分析边界层对前体物

扩散影响,对于华北雨季和高温重叠的 7~9 月,易造成臭氧污染高估^[24-25].

基于此,本文在建立天津气温、辐射、风和降水臭氧污染气象条件评估指标(OWI)基础上,增加边界层分析指标,并引入大气化学模式 WRF/Chem,改写相关代码实现臭氧区域输送、水平、对流和垂直输送、湍流混合、干湿沉降、化学生成对臭氧浓度影响定量计算,以此为基础优化 OWI 指数,适应新阶段蓝天保卫战需要,为高质量发展臭氧污染气象条件评估业务奠定基础.

1 材料与方法

1.1 空气质量和气象数据

本文观测数据分为三部分,一是生态环境部门 O₃ 质量浓度监测数据,包括天津地区 20 个空气质量站逐小时数据,时间为 2013~2023 年,采用环境空气质量标准(GB 3095—2012)^[26]对数据进行质量控制;二是天津市气象局风、温度、湿度、降水、紫外辐射、辐射和日照时数观测数据,包括天津地区 13 个国家级站点逐小时数据,时间为 2018~2023 年,数据来自气象大数据云平台天擎,数据质量经过严格控制;三是夜间和白天的边界层高度,主要为大气化学模式 WRF/Chem 模拟数据,时间为 2018~2023 年.

1.2 大气化学模式改进和设计

基于大气化学模式 WRF/Chem 实现臭氧模拟,该模式是 NCAR 和 NOAA 联合一些大学和研发机构开发的中尺度在线大气化学模式,模式考虑大气污染的化学过程、平流输送、湍流扩散、干湿沉降过程等,在全球空气质量预报和模拟中有广泛运用.气相化学过程采用 CBMZ(Common Basis Set Multiscale Zero-dimensional)机制,气溶胶过程采用 MOSAIC(Model for Simulating Aerosol Interactions and Chemistry),主要物理过程设置如下:积云对流方案采用 GRELL-3D,微物理过程采用 WSM5 (Weather Research and Forecasting Single-Moment 5-class microphysics scheme),长波辐射方案和短波辐射方案均采用 RRTMG,考虑气溶胶直接辐射反馈,边界层方案使用 YSU 方案,模式采用两层嵌套,外层水平分辨率 27km,水平网格 81×81,内层 9km 分辨率,121×121,垂直 32 层(图 1).模式的人为排放源使用清华大学 MEIC(Multi-resolution Emission Inventory for China)

排放源清单(2020 版本),分辨率 $0.25^{\circ} \times 0.25^{\circ}$,在天津地区使用 20 个空气质量监测站实况数据和相关排放源统计信息进行时空细化,气象初始场和背景场均使用 NCEP 的 FNL 全球 $1^{\circ} \times 1^{\circ}$ 数据,模拟时间为 2022 年 4 月 1 日~2022 年 9 月 30 日,2023 年 4 月 1 日~2023 年 9 月 30 日,模拟采用 24h 滚动计算,每 24h 重新使用一次 NCEP 的 FNL 气象初始场,污染初始场则为上一次的模拟值.模式优化包括三个方面:一是通过增加代码实现臭氧标记法源追踪^[27-29],实现周边 29 个省市臭氧对天津输送贡献计算;二是通过修改模式注册表和开启 chemdiag 功能^[28],实现臭氧不同物理化学过程分解计算,包括水平、垂直输送、对流、化学生成、湍流混合和干沉降计算,其中干沉降计算为增加相关代码实现功能新增.模拟期间臭氧实况和模拟值相关系数 0.68,相对误差 18%,模拟均值 $149\mu\text{g}/\text{m}^3$,实况均值 $147\mu\text{g}/\text{m}^3$,具有较好模拟性能(图 2).

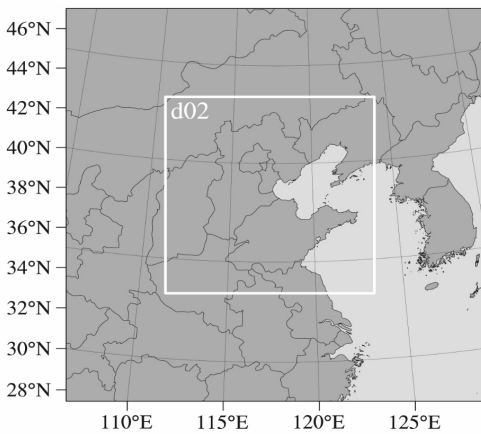


图 1 臭氧数值模式模拟范围

Fig.1 Simulation range of ozone numerical model

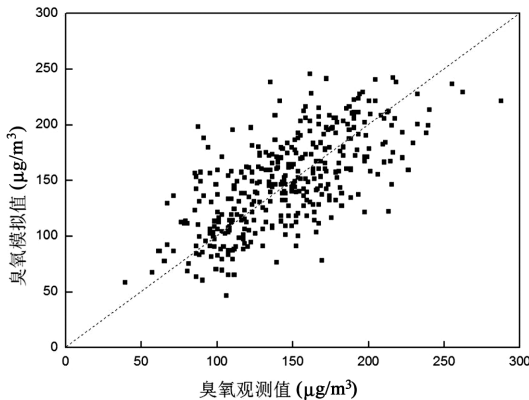


图 2 臭氧数值模式模拟值和观测值对比

Fig.2 Comparison of simulated and observed ozone concentration in the ozone numerical model

2 结果与讨论

2.1 天津 O₃ 浓度变化特征分析

2013~2023 年天津 O₃ 评价浓度(最大 8h 平均浓度第 90 百分位数)呈先上升后波动变化特征(图 3).其中 2013~2016 年评价浓度 $152\mu\text{g}/\text{m}^3$;2017~2020 年达到峰值,为 $196\mu\text{g}/\text{m}^3$;2021 年受疫情和气象条件影响(不利臭氧生成),降至 $160\mu\text{g}/\text{m}^3$;2022 和 2023 年反弹至 $176\mu\text{g}/\text{m}^3$ 和 $190\mu\text{g}/\text{m}^3$,其变化趋势与京津冀区域基本一致,臭氧评价浓度高于区域均值.

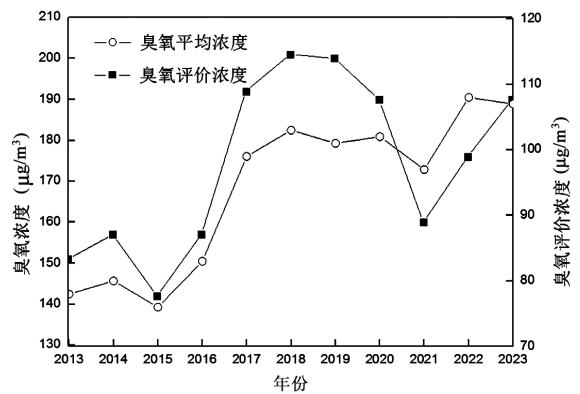


图 3 2013~2023 年天津臭氧评价和平均浓度变化趋势

Fig.3 Trends in ozone evaluation concentration and average concentration in Tianjin from 2013 to 2023

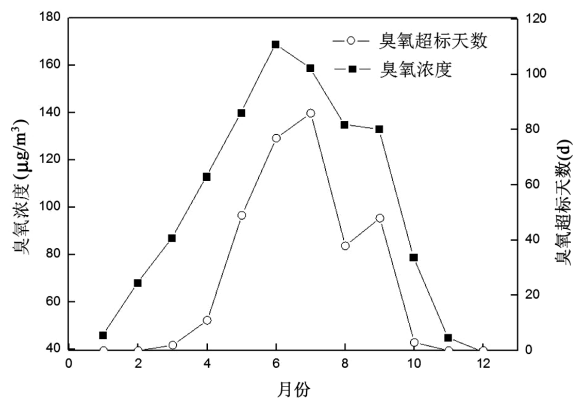


图 4 2019~2023 年臭氧浓度和超标天数月变化趋势

Fig.4 Monthly trend of ozone concentration and ozone exceeding days from 2019 to 2023

O₃ 年均浓度较评价浓度变化平缓,除 2021 年受特殊气象条件影响外,呈持续增加趋势. 2022~ 2023 年达到峰值,年均增加约为 $3\mu\text{g}/(\text{m}^3 \cdot \text{a})$,其中冬季增加 39.8%($14\mu\text{g}/\text{m}^3$),春季增加 34.8%($30\mu\text{g}/\text{m}^3$),夏季增加 24.3%($30\mu\text{g}/\text{m}^3$),秋季增加 67.5%($39\mu\text{g}/\text{m}^3$).天津

O₃ 污染超标天数变化与 O₃ 评价浓度变化一致,2023 年相比 2013 年,超标天数增加一倍,达到 70d,占有超标天数的 56%,超标天数主要集中在 4~9 月.统计分析近 5 年数据(2019~2023 年),4, 5, 6, 7, 8 和 9 月分别出现超标天数 11, 49, 77, 86, 38 和 48d,占有超标天数 98.4%,峰值和次峰值浓度分别出现在 6 月和 7 月,为 169 和 159 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (图 4).

2.2 气象条件对臭氧浓度影响分析及臭氧污染气象条件评估指数(OWI)构建

O₃ 是光化学反应产物,其浓度高低与温度、湿度、辐射和边界层高度等气象要素密切相关.气象要素主要通过影响前体物排放、污染物输送、化学反应速率和干沉降过程等途径影响 O₃ 浓度.体包括:①通过温度、湿度等气象要素影响植被 VOCs、土壤活性氮、野火排放等前体物的天然源排放,影响 O₃ 化学反应;②通过水平风速和垂直扩散能力影响 O₃ 及前体物输送和扩散过程;③通过辐射和气温等气象要素变化影响大气化学反应速率,导致大气氧化性发生变化,进而影响 O₃ 光化学形成;④通过温度、湿度等气象要素影响植被的气孔开闭及对 O₃ 的吸附(沉降)过程.计 2019~2023 年 4~9 月(O₃ 污染易出现时间)气象条件与 O₃ 关系,O₃ 浓度与平均气温、最高气温、相对湿度、日降水、平均风速、白天紫外辐射、白天辐射、日照时数、白天边界层高度相关系数分别为 0.57, 0.68, -0.04, -0.21, -0.20, 0.42, 0.44, 0.45 和 0.10,参考细颗粒物扩散指数建立方法和中国气象局《气象条件对臭氧浓度变化影响评估服务规范》,建立臭氧污染气象条件评估指数(OWI 指数),综合表征气象条件对臭氧浓度变化影响.

具体方法为,根据气象要素以及其对应 O₃ 浓度,将其划分为若干等份,计算每一等份对应 O₃ 浓度,并求取其 2019~2023 年 4~9 月平均 O₃ 浓度(140 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)比值,比值为该气象指标对应分布段权重系数.如最高气温,根据最高气温出现概率,将其划分为 <19.5,19.5~26.5,26.5~28.5,28.5~29.5,29.5~30.5,30.5~31.5,31.5~32.5,32.5~34.5,34.5~36.5 和 >36.5 $^{\circ}\text{C}$ 十个区间.当最高气温小于等于 19.5 $^{\circ}\text{C}$ 时,其对应 O₃ 浓度为 92 $\mu\text{g}/\text{m}^3$,2019~2023 年 4~9 月 O₃ 浓度均值为 140 $\mu\text{g}/\text{m}^3$,其权重系数为两者比,即 0.66;最高气温大于 36.5 $^{\circ}\text{C}$,其平均浓度为 222 $\mu\text{g}/\text{m}^3$,初步确定其权重

系数为 1.59,依次类推对 8 项气象指标分别计算,以求和构建 OWI 指数,该指数能够定量表征太阳辐射、气温、湿度、风等气象要素对臭氧综合影响,与 O₃ 浓度呈线性正相关,其值越大表征气象条件越有利于臭氧浓度升高.在此基础上以达到 OWI 指数和 O₃ 浓度相关系数最大为目标,编辑程序反复微调各气象要素权重系数,进行适当放大和缩小,最终确定权重系数表 1 和公式 1.

$$\text{OWI} = 3.1 \times T_{\max} + T + S + 0.9 \times \text{UV} + 0.8 \times \text{UVnoon} + 1.3 \times \text{RH} + 1.8 \times W + 0.5 \times R \quad (1)$$

式中: T 、 T_{\max} 、RH、 R 、UV、UVnoon、 S 和 W 分别为平均气温、最高气温、相对湿度、日降水量、白天紫外辐射、日间紫外辐射、日照时数和平均风速权重系数,取值为表 1,范围在 0~2 之间.

评估 OWI 指数对臭氧浓度的表征能力,其与 O₃ 浓度相关系数为 0.78,拟合公式为

$$O_3 = 30.686 \times \text{OWI} - 177.71 \quad (2)$$

OWI 取值范围为 7.227~12.656,基于公式可定义 OWI 指数大于 10.8 时易于出现臭氧污染(假定 O₃ 浓度大于 160 $\mu\text{g}/\text{m}^3$,则 OWI 大于 10.8),该指标可识别 76.1%臭氧轻度及以上污染(正确 234 次,空 100 次,漏 56 次).

2.3 风向对臭氧浓度影响分析及臭氧污染气象条件评估指数(OWI)优化

臭氧浓度变化不仅与本地气象要素密切相关,也受到区域输送显著影响.《气象条件对臭氧浓度变化影响评估服务规范》为适用于全国不同城市臭氧评估,无法在 OWI 指数中有效引入风向指标.天津地区由于其排放分布和地理环境相对固定,风向对臭氧浓度有明显影响.为降低臭氧日变化和沿海城市规律性风场日变化特征影响(夏季午后受海风影响多偏东风和东南风),统计 O₃-8h 与日风向频率关系,臭氧浓度与南风、西南风和东南风日风向频率呈正相关,相关系数分别为 0.46,0.32 和 0.26;与北风、东北风和西北风日风向频率呈负相关,相关系数分别为-0.39, -0.33 和-0.32.图 5 显示,南风和西南风臭氧浓度最高,为 171 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 和 162 $\mu\text{g}/\text{m}^3$,出现臭氧轻度污染概率 59%和 52%,其次为东南风和东风,臭氧浓度 156 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 和 130 $\mu\text{g}/\text{m}^3$,出现臭氧轻度污染概率 40%和 19%,西

风时臭氧浓度 $127\mu\text{g}/\text{m}^3$, 出现臭氧轻度及以上概率 15%, 其余风向对应臭氧浓度大幅度下降, 西北风、

北风和东北风时出现臭氧轻度及以上污染概率均小于 2%, 对应浓度 100, 98 和 $130\mu\text{g}/\text{m}^3$.

表 1 天津地区臭氧污染气象条件指数权重系数

Table 1 The weight coefficient of the fine particulate meteorological diffusion index in Tianjin

项目和权重	分段									
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
最高气温 $T_{\text{max}}(\text{°C})$	19.5	26.5	28.5	29.5	30.5	31.5	32.5	34.5	36.5	∞
权重系数 1	0.66	0.76	0.90	0.96	1.06	1.07	1.19	1.30	1.41	1.59
平均气温 $T(\text{°C})$	13.5	18.5	21.5	23.5	26.5	27.5	28.5	30.5	31.5	∞
权重系数 2	0.65	0.76	0.85	0.93	1	1.12	1.22	1.36	1.39	1.51
相对湿度 RH(%)	35	77	85	90	∞					
权重系数 3	1	1.08	0.91	0.72	0.54					
白天紫外辐射 (W/m^2)	12	15	19	23	∞					
权重系数 4	0.62	0.79	0.89	0.99	1.09					
午间紫外辐射 (W/m^2)	14	18	22	24	29	∞				
权重系数 5	0.67	0.80	0.92	0.96	1.06	1.10				
10m 风速 $W(\text{m}/\text{s})$	1.4	2.6	3	3.5	∞					
权重系数 6	1	1.04	0.94	0.88	0.70					
日降水量 $R(\text{mm})$	0	10	25	∞						
权重系数 7	1	0.86	0.83	0.7						
日照时数 $S(\text{h})$	3	5	6	8	∞					
权重系数 8	0.7	0.91	0.96	1.04	1.11					

注:以相对湿度为例,表示相对湿度小于等于35时,取权重系数1.

表 2 不同风向权重系数 β

Table 2 The weight coefficient for different wind directions

北-东北	东	东南	南	西南	西	西北	静风
0.7	0.93	1.11	1.22	1.16	0.91	0.7	1

基于风向显著影响,在原有 OWI 指数基础上补充风向指标(不同风向对应权重系数 \times 风向出现频率求积).其权重系数按照风向对应浓度与臭氧平均浓度比值取值,具体如表 2 所示:

修正后的 OWI 公式为:

$$\text{OWI} = 3.1 \times T_{\text{max}} + T + S + 0.9 \times \text{UV} + 0.8 \times \text{UV}_{\text{noon}} + 1.3 \times \text{RH} + 1.8W + 0.5 \times R + 4 \times D \quad (3)$$

式中: D 为基于风向的修正系数.

增加风向后,OWI 与 O_3 浓度相关系数 0.82,拟合公式为:

$$\text{O}_3 = 25.903 \times \text{OWI} - 253.93 \quad (4)$$

OWI 取值范围为 11.088~18.3693,基于公式可定义 OWI 指数大于 15.8 时易出现臭氧污染(东北和北风出现频率超过 30%时,OWI 最高取值 15.7),该指标可识别 82%的臭氧轻度及以上污染(正确 241 次,空 80 次,漏 52 次).

2.4 边界层对臭氧浓度影响分析

臭氧生成除了与光化学气象条件密切相关外,垂直扩散能力影响 O_3 浓度及其前体物输送和扩散过程,尤其近年臭氧前体物浓度下降,高温弱风场出现臭氧污染概率降低(2022 年天津 33°C 以上高温日(且小风无降水)臭氧超标率由 2017 年 90%降低至 62%).OWI 指数优化,需进一步分析边界层对臭氧前体物和臭氧垂直交换影响,基于 WRF/Chem 模拟获取天津地区 2019~2023 年逐小时边界层高度,统计表明夜间和白天边界层高度与 O_3 -8h 表现出相反特征,夜间边界层高度与当日 O_3 -8h 为负相关,相关系数 -0.19,夜间边界层高度越低,前体物积聚越明显, O_3 -8h 越高;白天边界层高度与当日 O_3 -8h 为正相关,相关系数 0.10,白天边界层高度越高,湍流交换强,近地面 O_3 浓度高.

直接分析边界层高度与 O_3 -8h 浓度相关性较弱,分析边界层高度与 OWI 指数表征偏差关系.于公式 4 通过 OWI 指数可以计算该指数表征的 O_3 -8h 浓度,认为其与 O_3 -8h 实况差值为 OWI 指数表征偏差.图 6a 给出其与 OWI 指数关系,从样本分析基本无显著规律.基于夜间边界层高度对样本进

行分段研究,当 PBLH>500m 时,OWI 指数与其表征偏差呈现较好正相关(图 6b),相关系数达到 0.73,OWI 指数越大,其偏差由负向正变化,调整范围可以达到正负 40 $\mu\text{g}/\text{m}^3$,分析原因当夜间 PBLH 较高时,前体物充分扩散,白天尽管 OWI 表征光化学气象条件有利,但实际 O₃-8h 偏低,所以其表征差值较大;另一方面,如果白天 OWI 指数较低,近地面臭氧与光化学气象条件关系不密切,夜间较高的 PBLH,不利于近地面氮氧化物滴定,反而有利于夜间臭氧垂直交换,所以 OWI 指数估算 O₃-8h 低于实况 O₃-8h,并表现出较好的统计学意义.天边界层高度 PBLH> 2000m 时也可统计出类似规律,但要求 OWI 指数小于 17,当 OWI 指数大于 17 时,意味着光化学条件极好,较高的白天边界层高度,扩散条件好且垂直交换强,OWI 表征臭氧浓度偏高偏低存在不确定性; OWI 小于 17 时,其表征臭氧浓度与实况偏差呈现较好统计学意义,相关系数达到 0.83,其偏差由负向正变化,调整范围可以达到正负 40 $\mu\text{g}/\text{m}^3$.分析原因:OWI 指数较低且边界层高度较高,光化学作用影响弱于臭氧垂直交换影响,原有表征光化学特征为主的 OWI 指标,表征臭氧浓度偏低;OWI 指数较高时,光化学作用影响占主导,较高的边界层高度除了臭氧垂直交换能力强外,其前体物和本身扩散能力也强,OWI 指数表征偏高.

基于上述两个特征,可以参考夜间和白天边界层高度对 OWI 指数进行修正,当白天 PBLH>2000m,且 OWI 指数小于 17 时,

$$OWI_{\text{new}} = OWI_{\text{old}} - (OWI_{\text{old}} \times 11.624 - 161.02)/25.93 \quad (5)$$

白天 PBLH<2000m,夜间 PBLH>500m,

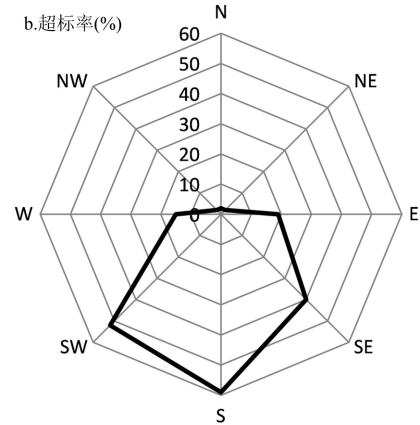
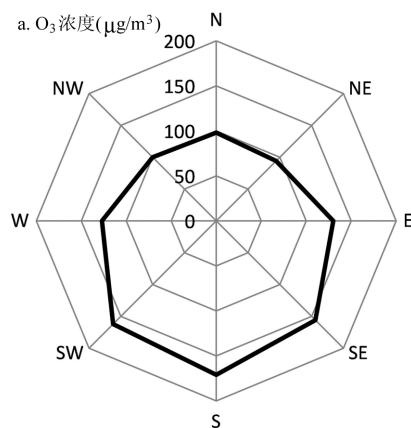


图 5 不同风向对应的臭氧浓度(a)和臭氧超标率(b)
Fig.5 Ozone concentration (a) and ozone exceedance rate (b) corresponding to different wind directions

$$OWI_{\text{new}} = OWI_{\text{old}} - (OWI_{\text{old}} \times 10.349 - 142.3)/25.93 \quad (6)$$

上述修正后空报减少了 8 次.

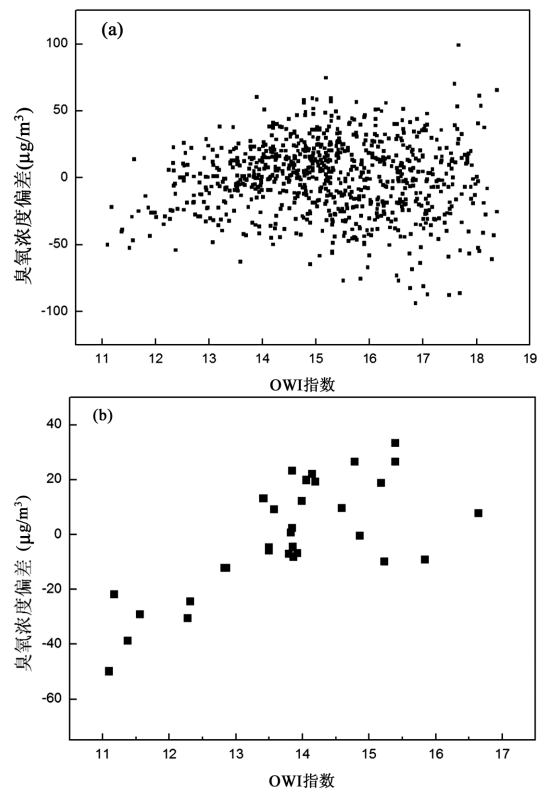


图 6 OWI 指数与其表征偏差之间的关系
Fig.6 Relationship between OWI index and its characterization bias

a 全样本,b 夜间边界层高度大于 500m

此外,尽管夜间和白天边界层高度与 O₃-8h 表现出弱相关性,但也可以分析出白天边界层高度在

1000~1700m 更易于出现臭氧轻度及以上污染(图 7),夜间边界层高度在 150m 以内更易于出现臭氧轻度及以上污染(图 8),该指标可用于臭氧污染边界层分析。

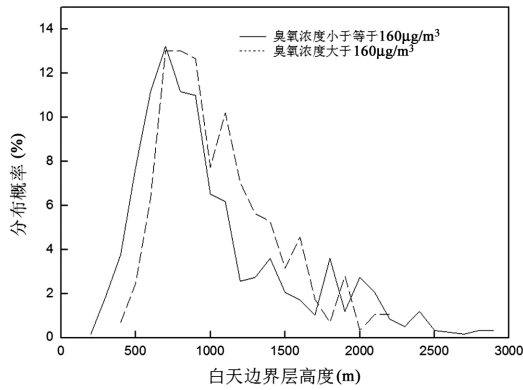


图 7 臭氧是否超标的白天边界层高度分布对比
Fig.7 Comparison of daytime boundary layer height distribution between ozone polluted days and non polluted days

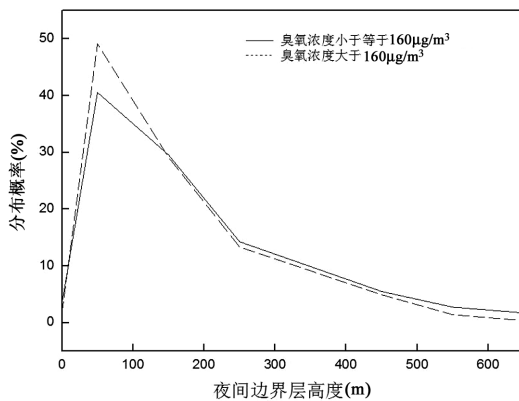


图 8 臭氧是否超标的夜间边界层高度分布对比
Fig.8 Comparison of nighttime boundary layer height distribution between ozone polluted days and non polluted days

2.5 基于数值模式臭氧污染气象条件评估指数(OWI)优化

基于数值模式过程分析技术,可以实现臭氧化学生成、湍流混合、对流输送、水平输送、垂直输出和干湿沉降分解计算,图 9 给出 2023 年 4~9 月天津不同时刻上述物理化学过程对近地面臭氧平均影响。净生成量分析,每日 00:00~05:00 时和 18:00~23:00 时臭氧为净消耗,18:00~20:00 时湍流混合由负贡献转为正贡献,且化学生成有明显负贡献,平均净消耗量为 $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$;白天 06:00~17:00 时为臭氧净生

成时期,峰值出现在 09:00~10:00 时,净生成量接近 $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 。统计分析,尽管不同天气形势不同过程臭氧物理化学过程表现出差异性,但平均数据表明,臭氧化学生成贡献分为两个阶段,07:00~17:00 时为正贡献,其余时间为负贡献,湍流混合影响也分为两段,09:00~17:00 时为负贡献,其余时间为正贡献(夜间近地面氮氧化物滴定作用,近地面臭氧浓度低于高空,湍流混合适当增加近地面臭氧)。于此将指标划定义四个新指标以优化 OWI 指数,白天臭氧化学生成(chem),白天湍流混合(vmix),白天垂直输送(advz)和夜间湍流混合(vmix),白天时间段为 08:00~17:00 时,夜间为 18:00~07:00 时。中垂直输送指标较为明确,其白天均值接近 0,分布在 $-43 \sim 25 \mu\text{g}/(\text{m}^3 \cdot \text{h})$,部分天气由于明显的上升运动会降低近地面臭氧,部分天气由于明显下沉运动,会显著增加近地面臭氧,其幅度甚至接近日间臭氧化学生成量,该部分指标,原有 OWI 无法有效体现。分析模式数据和观测数据,可定义如下修正指标:当白天垂直输送(advz)大于 $15 \mu\text{g}/(\text{m}^3 \cdot \text{h})$,且 OWI 指数大于 15.8(估算为轻度以上臭氧污染),OWI 指数应增加 0.5,如果白天垂直输送(advz)小于 $-25 \mu\text{g}/(\text{m}^3 \cdot \text{h})$,且 OWI 指数大于 15.8(估算为轻度以上臭氧污染),OWI 指数应减少 0.5。

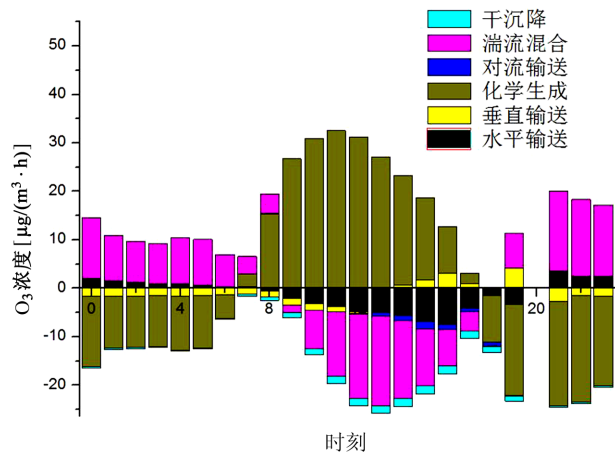


图 9 不同物理化学过程对臭氧贡献(日变化)
Fig.9 Daily variation of contributions of different physical and chemical processes to ozone

白天和夜间湍流混合使得臭氧浓度变化均与臭氧浓度呈现弱的负相关,OWI 与实况偏差相较与湍流混合无明显统计关系。间湍流混合使得臭氧下降浓度超过 $5 \mu\text{g}/(\text{m}^3 \cdot \text{h})$,OWI 则存在明显低估,均值幅度 $25 \mu\text{g}/\text{m}^3$,作者认为 OWI 指数可以增加 0.5。白天臭氧

化学生成(Chem)相比垂直输送更为复杂,因为 OWI 中的辐射、气温参数均反映气象条件对臭氧化学生成(chem)影响,从统计指标分析 OWI 与白天臭氧化学生成(Chem)相关系数为 0.4(图 10),表明 OWI 对臭氧生成有一定表征,但也存在明显不足,从数据分析白天臭氧化学生成在 $0\sim 10\mu\text{g}/(\text{m}^3\cdot\text{h})$ 区间,OWI 估算臭氧浓度平均高估 $7.29\mu\text{g}/\text{m}^3$,有较大离散性;白天臭氧化学生成在 $10\sim 20\mu\text{g}/(\text{m}^3\cdot\text{h})$ 区间,OWI 估算臭氧浓度平均高估 $4.56\mu\text{g}/\text{m}^3$,离散性有所降低,但仍分布在一个较宽范围;白天臭氧化学生成在 $20\sim 30\mu\text{g}/(\text{m}^3\cdot\text{h})$ 区间,OWI 估算臭氧浓度平均低估 $8.9\mu\text{g}/\text{m}^3$,离散性明显下降,很少有高估数值,均为低估数值;白天臭氧化学生成大于 $30\mu\text{g}/(\text{m}^3\cdot\text{h})$,基本为低估,均值 $25\mu\text{g}/\text{m}^3$ 。于上述分析,白天臭氧化学生成量大于 $20\mu\text{g}/(\text{m}^3\cdot\text{h})$,OWI 指数应适当增加 0.3,上述分析仅仅是初步研究,后续需根据气象条件和基于前体物计算的臭氧生成潜势力(OPP)综合分析深入研究。

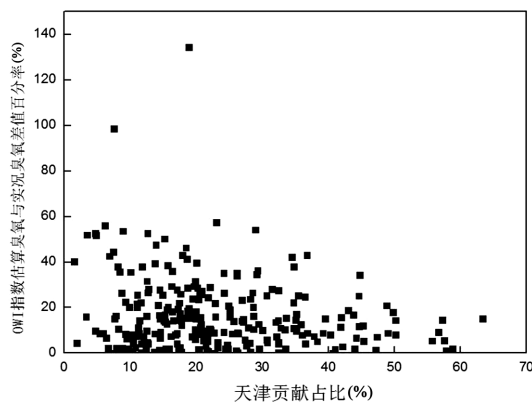


图 11 天津本地对臭氧浓度贡献与 OWI 指数估算偏差对比分析

Fig.11 Comparative analysis of bias in estimating the contribution of local ozone concentration to OWI index in Tianjin

臭氧污染除了与本地气象条件相关, O_3 及其前体物氮氧化物和 VOCs 存在跨区域和同区域城市间输送,包括水平输送和垂直输送,进而影响 O_3 浓度的时空分布。究表明北京 O_3 垂直传输最大可贡献日间 O_3 的 30%,上海午间近地面平均 $32\mu\text{g}/\text{m}^3$ 的 O_3 来自垂直输送,相比垂直混合,水平输送对区域性 O_3 污染影响更显著。过系统分析,2018~2020 年北京污染区域输送来自山东贡献 12%,河南贡献 11%。上述问题无法通过统计本地气象统计指标表征,需借助数值

模式实现臭氧污染气象条件评估指数(OWI)优化。于标记法源追踪模式计算 2022~2023 年 4 到 9 月天津臭氧本地贡献仅占 24%,京津冀贡献为 55%(包含天津),山东贡献 16%,河南为 6%,内蒙古为 7%。

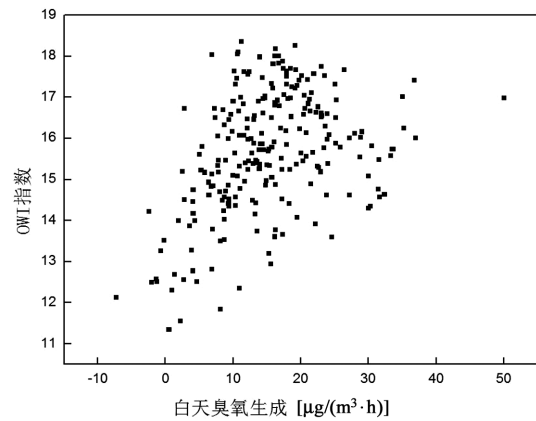


图 10 模式估算白天臭氧化学生成量与 OWI 指数关系

Fig.10 Relationship between daytime ozone chemical production and OWI index estimated by the model

表 3 不同区域的区域输送对天津臭氧的影响(%)

Tab 3 Percentage of ozone transport from different regions to Tianjin(%)

项目	区域输送均值	区域输送 1.5 倍	区域输送 2 倍
北京对天津	5.9	8.9	17.8
河北中南部对天津	17.2	25.8	34.4
河北北部对天津	8.1	12.2	16.2
山东对天津	16.3	24.5	32.7
河南对天津	5.7	8.5	11.3
内蒙古对天津	7.3	10.9	14.6
辽宁对天津	3.1	4.7	6.2

分析 OWI 指数表征和臭氧实况浓度偏差(图 11),如图天津贡献占比小于 20%时,OWI 指数估算臭氧浓度与实况臭氧浓度偏差离散度较大,均值为 19.54%;天津本地贡献占比在 20%~40%区间,偏差均值为 14.7%;天津本地贡献占比在 40%以上时,对应本地贡献为主,OWI 指数可很好反应气象条件对臭氧浓度影响,偏差均值降为 10.5%。鉴于上述统计分析,采用 OWI 指数和臭氧分析模式(区域输送功能)确定阈值指标,定义 $\text{tran}_{\text{天津}}$ 为天津本地贡献臭氧百分比, $\text{tran}_{\text{天津}} > 0.4$ 时,不考虑周边气象条件和区域输送影响,以 OWI 指数分析臭氧污染气象条件; $0.2 < \text{tran}_{\text{天津}} \leq 0.4$ 时,适当考虑周边气象条件和臭氧区域输送影响,当某区域输送影响超过其均值两倍时,应考虑该区域臭氧浓度和气象条件; $\text{tran}_{\text{天津}}$

≤0.2 时,考虑周边气象条件和臭氧输送影响,当某区域输送影响超过其均值 1.5 倍时,应考虑该区域臭氧浓度和气象条件,区域平均贡献率如表 3.

3 结论

3.1 天津 O₃ 年均浓度较评价浓度变化平缓,除 2021 年受特殊气象条件影响外,呈持续增加趋势,2022~2023 年达到峰值,年均增加约为 3μg/(m³·a),其中冬季增加 39.8%(14μg/m³),春季增加 34.8%(30μg/m³),夏季增加 24.3%(30μg/m³),秋季增加 67.5%(39μg/m³).O₃ 超标天数主要集中在 4~9 月,占所有超标天数 98.4%,峰值和次峰值浓度分别出现在 6 月和 7 月,为 169 和 159μg/m³.

3.2 气象条件与臭氧密切相关,基于平均气温、最高气温、相对湿度、日降水量、白天紫外辐射、午间紫外辐射、日照时数、平均风速、风向构建天津臭氧污染气象条件指数(OWI),该指数与 O₃ 浓度相关系数 0.82,可定义 OWI 指数大于 15.8 时易出现臭氧污染,该指标可识别 82%的臭氧轻度及以上污染.

3.3 夜间边界层高度与臭氧浓度呈负相关,白天边界层高度与臭氧浓度呈正相关.受前体物扩散、近地面氮氧化物滴定和臭氧垂直扩散条件影响,从统计数据反映:当夜间 PBLH>500m 时,OWI 指数与其表征偏差(与臭氧浓度差值)呈现较好的正相关(R=0.73),白天边界层高度 PBLH>2000m,且 OWI 指数小于 17 时,OWI 指数与其表征偏差(与臭氧浓度差值)呈现较好的正相关(R=0.83).对其特性可以联合白天和夜间边界层高度优化 OWI 指数,减少部分条件 OWI 值估算偏高问题.

3.4 基于数值模式过程分析技术和标记法源追踪,可以实现臭氧化学生成、湍流混合、对流输送、水平输送、垂直输出和干湿沉降分解计算,实现臭氧区域输送影响计算.基于数值模式物理化学分量实现 OWI 指数优化,如白天垂直输送(advz)大于 15μg/(m³·h),且 OWI 指数大于 15.8(估算为轻度以上臭氧污染),OWI 指数应增加 0.5;白天臭氧化学生成量(Chem)大于 20μg/(m³·h),OWI 指数应增加 0.3;tran_{天津}≤0.2 时,计算周边臭氧污染气象条件指标,综合判断气象条件对臭氧影响.

参考文献:

[1] 臭氧污染控制专业委员会.中国大气臭氧污染防治蓝皮书(2020 年)

- [M]. 北京:科学出版社,2020.
- Ozone Pollution Control Committee. China atmospheric ozone pollution prevention and control blue book (2020) [M]. Beijing: Science Press, 2020.
- [2] 刘超,张碧辉,花丛,等.风廓线雷达在北京地区一次强沙尘天气分析中的应用 [J]. 中国环境科学,2018,38(5):1663-1669.
- Liu C, Zhang B H, Hua C, et al. Application of wind profiler radar in a strong sand dust weather analysis in Beijing [J]. China Environmental Science, 2018,38(5):1663-1669.
- [3] 常炉予,许建明,瞿元昊,等.上海市臭氧污染的大气环流客观分型研究 [J]. 环境科学学报,2019,39(1):169-179.
- Chang L Y, Xu J M, Chui Y H, et al. Study on objective synoptic classification on ozone pollution in Shanghai [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2019,39(1):169-179.
- [4] 王磊,刘端阳,韩桂荣,等.南京地区近地面臭氧浓度与气象条件关系研究 [J]. 环境科学学报,2018,38(4):1285-1296.
- Wang L, Liu D Y, Han G R, et al. Study on the relationship between surface ozone concentrations and meteorological conditions in Nanjing, China [J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2018,38(4):1285-1296.
- [5] 李颖若,韩婷婷,汪君霞,等.ARIMA 时间序列分析模型在臭氧浓度中长期预报中的应用 [J]. 环境科学,2021,42(7):3118-3126.
- Li Y R, Han T T, Wang J X, et al. Application of ARIMA model for mid-and long-term forecasting of ozone concentration [J]. Environmental Science, 2021,42(7):3118-3126.
- [6] 王馨陆,黄冉,张雯娟,等.基于机器学习方法的臭氧和 PM_{2.5} 污染潜势预报模型—以成都市为例 [J]. 北京大学学报(自然科学版),2021,57(5):938-950.
- Wang X L, Huang R, Zhang W X, et al. Forecasting ozone and PM_{2.5} pollution potentials using machine learning algorithms: A case study in Chengdu [J]. Acta Scientiarum Naturalium Universitatis Pekinensis, 2021,57(5):938-950.
- [7] 张恒德,张庭玉,李涛,等.基于 BP 神经网络的污染物浓度多模式集成预报 [J]. 中国环境科学,2018,38(4):1243-1256.
- Zhang H D, Zhang T Y, Li T, et al. Forecast of air quality pollutants' concentrations based on BP neural network multi-model ensemble method [J]. China Environmental Science, 2018,38(4):1243-1256.
- [8] Sayeed A, Choi Y, Eslami E, et al. A novel CMAQ-CNN hybrid model to forecast hourly surface-ozone concentrations 14days in advance [J]. Scientific Reports, 2021,11(1):10891.
- [9] 张恒德,张庭玉,李涛,等.基于 BP 神经网络的污染物浓度多模式集成预报 [J]. 中国环境科学,2018,38(4):1243-1256.
- Zhang H D, Zhang T Y, Li T, et al. Forecast of air quality pollutants' concentrations based on BP neural network multi-model ensemble method [J]. China Environmental Science, 2018,38(4):1243-1256.
- [10] 庞杨,韩志伟,朱彬,等.利用 WRF-Chem 模拟研究京津冀地区夏季大气污染物的分布和演变 [J]. 大气科学学报,2013,36(6):674-682.
- Pang Y, Han Z W, Zhu B, et al. A model study on distribution and evolution of atmospheric pollutants over Beijing-Tianjin-Hebei region in summertime with WRF-Chem [J]. Journal of the Atmospheric Sciences, 2013,36(6):674-682.
- [11] 张亮,朱彬,高晋徽,等.长江三角洲夏季一次典型臭氧污染过程的模拟 [J]. 环境科学,2015,36:3981-3988.

- Zhang L, Zhu B, Gao J H, et al. Modeling study of a typical summer ozone pollution event over Yangtze River Delta [J]. *Environmental Science*, 2015,36:3981-3988.
- [12] 黄丛吾,陈报章,马超群,等.基于极端随机树方法的 WRF-CMAQ-MOS 模型研究 [J]. *气象学报*, 2018,76(5):779-789.
- Huang C Y, Chen B Z, Ma C Q, et al. WRF-CMAQ-MOS studies based on extremely randomized trees [J]. *Acta Meteorologica Sinica*, 2018,76(5):779-789.
- [13] 吴莹,王玉祥.NAQPMS 和 CMAQ 模式在臭氧预报应用中的效果检验 [J]. *四川环境*, 2019,38(1):81-84.
- Wu Y, Wang Y X, The effects of NAQPMS model and CMAQ model in ozone forecasting applications [J]. *Sichuan Environment*, 2019,38(1):81-84.
- [14] Wang T, Xue L, Brimblecombe P, et al. Ozone pollution in China: A review of concentrations, meteorological influences, chemical precursors, and effects [J]. *Science of the Total Environment*, 2017, 575:1582-1596.
- [15] Porter W C, Heald C L. The mechanisms and meteorological drivers of the summertime O₃-temperature relationship [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2019,19:13367-13381.
- [16] Liu Y, Wang T. Worsening urban O₃ pollution in China from 2013 to 2017-Part 1: The complex and varying roles of meteorology [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2020,20:6305-6321.
- [17] Seinfeld J H, Pandis S N. *Atmospheric chemistry and physics: From air pollution to climate change*, 2nd ed [M]. John Wiley & Sons, Inc, New York, USA, 2016:383-705.
- [18] Orter W C, Heald C L. The mechanisms and meteorological drivers of the summertime O₃-temperature relationship [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2019,9:13367-13381.
- [19] Dang R J, Liao H, Fu Y, et al. Quantifying the anthropogenic and meteorological influences on summertime surface O₃ in China over 2012-2017 [J]. *Science of the Total Environment*, 2021,754,142394.
- [20] YANG W, Chen H, Wang W, et al. Modeling study of ozone source apportionment over the Pearl River Delta in 2015 [J]. *Environmental Pollution*, 2019,253.
- [21] 樊文雁,蔡子颖,姚青,等.区域输送对天津臭氧污染的影响 [J]. *中国环境科学*, 2022,42(11):4991-4999.
- Fan W Y, Cai Z Y, Yao Q, et al. Effect of regional transport on ozone pollution in Tianjin [J]. *China Environmental Science*, 2022,42(11): 4991-4999.
- [22] 黄俊,廖碧婷,王春林,等.广州逐时臭氧污染气象条件指数研究及应用 [J]. *环境科学学报*, 2023,43(1):63-75.
- Huang J, Liao B T, Wang C L, et al. Meteorological condition index(MCI)for hourly ozone pollution in Guangzhou: Development and application [J]. 2023,43(1):63-75.
- [23] 潘巧英,李婷苑,陈靖扬,等.2023.基于 GRAPES 模式佛山市臭氧污染气象指数的构建和预报 [J]. *环境科学学报*, 2023,43(1):140-151.
- Pan Q Y, Li T Y, Chen J Y, et al. Construction and prediction of ozone weather index in Foshan based on GRAPES model [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2023,43(1):140-151.
- [24] 肖致美,李鹏,孔君,等.天津市持续高温强光照天气下臭氧污染差异性 [J]. *中国环境科学*, 2023,43(7):3322-3330.
- Xiao Z M, Li P, Kong J, et al. Difference of ozone pollution under the continuous high temperature and strong sunlight weather in Tianjin [J]. *China Environmental Science*, 2023,43(7):3322-3330.
- [25] Tang G, Liu Y, Wang Y et al., Aggravated ozone pollution in the strong free convection boundary layer [J]. *Science of the Total Environment*, 2021,788,147740.
- [26] GB3095-2012 环境空气质量标准 [S].
- GB3095-2012 Ambient air quality standards [S].
- [27] Gao J, Zhu B, Xiao H, et al. A case study of surface ozone source apportionment during a high concentration episode, under frequent shifting wind conditions over the Yangtze River Delta, China [J]. *Science of the Total Environment*, 2016,544:853-863.
- [28] Gao J, Zhu B, Xiao H, et al. Diurnal variations and source apportionment of ozone at the summit of Mount Huang, a rural site in Eastern China [J]. *Environmental Pollution*, 2017,222:513-522.
- [29] 姚青,马志强,郝天依,等.京津冀区域臭氧时空分布特征及其背景浓度估算 [J]. *中国环境科学*, 2021,41(11):4999-5008.
- Yao Q, Ma Z Q, Hao T Y, et al. Temporal and spatial distribution characteristics and background concentration estimation of ozone in Beijing-Tianjin-Hebei region [J]. *China Environmental Science*, 2021, 41(11):4999-5008.

作者简介: 蔡子颖(1984-),男,江苏扬州人,正高级工程师,硕士,主要从事大气环境数值模拟研究.表论文 82 篇.120078030@163.com.