

我国北方地区对流层中下层臭氧收支^{*1}

彭 丽¹⁾ 林云萍²⁾ 周广强¹⁾ 赵春生²⁾ 耿福海¹⁾

¹⁾(上海市城市环境气象中心,上海 200135) ²⁾(北京大学物理学院大气科学系,北京 100871)

摘 要

为了揭示我国北方地区对流层中下层臭氧(O₃)的形成机理以及周边地区的污染输送对我国北方地区对流层中下层 O₃ 收支的影响,在与外场观测数据比较分析的基础上,利用全球化学输送模式(MOZART-2)采用收支分析方法定量分析了影响我国北方地区对流层中下层 O₃ 的各个物理化学过程。结果表明:我国北方地区对流层下层 O₃ 最重要的来源是光化学生成作用,约占总来源的 58.3%(41.5 Tg),光化学生成反应中 HO₂ 对于 O₃ 生成的贡献最大;最大的汇是干沉降过程,约占总汇的 43.2%(26.2 Tg);水平净输送作用对我国北方地区对流层中下层 O₃ 收支的影响非常大,在我国北方地区对流层下层,41.6%左右的 O₃ 来自水平净输送,随高度增加,水平输送影响增大,我国北方地区对流层中层大约 81.5%的 O₃ 来自水平净输送。

关键词: 对流层中下层; 臭氧; 收支分析; 光化学反应; 输送

引 言

大气污染是当前面临的重要环境问题之一,对流层 O₃ 作为一种最主要的大气污染物,对气候、环境和生态有重要影响。目前,科学家们开展了很多外场观测来研究影响 O₃ 及其前体物收支的各个物理化学过程:比如 PEM-West A/B^[1-2], ACE-Asia^[3], TRACE-P^[4] 等。很多外场观测集中在太平洋西岸,研究跨太平洋的输送以及东亚、我国的排放对太平洋和北美地区的 O₃ 及其前体物的影响^[5-7]。目前,我国正处于经济高速发展时期,工业发展和城市化扩张加剧了能源消耗,能源使用的急剧增长导致了污染物浓度的大量增加,由此带来的环境问题受到广泛关注。国内科学家从观测^[8-11]、模式研究^[12-16] 等方面进行了关于我国对流层 O₃ 及其前体物的大量研究工作,王晓云等^[11] 对 O₃ 前体物浓度分布与气象条件的关系做了初步分析,郑向东等^[9-10] 开展了 O₃ 探空的观测研究,周秀骥^[12] 建立二维空气质量模型研究了长三角地区 O₃ 的分布和变化。Ma 等^[13-15] 发展了我国的三维区域化学输送模式,模拟了不同的源排放对我国对流层 O₃ 的影响,

以及平流层-对流层交换、局地光化学生成和边界层输送等物理化学过程对对流层 O₃ 的贡献。徐祥德等进行了大气环境污染机理和调控原理研究^[17]。由于我国所处的地理位置,它不仅对下风向地区的环境污染有一定作用,同时也受到上风向地区污染输入的影响。Newell 等^[18] 估计冬季达到亚洲的污染物 40% 左右来自欧洲的污染排放。盛裴轩等^[19] 发现除了夏季以外,蒙古的空气可输送至我国华北,俄罗斯的空气能影响我国东北地区,而平壤等地的空气在夏季向北输送影响我国。Zhao 等^[20] 利用 MOZART-2 模式研究了我国的源排放对我国东部地区 O₃ 及其前体物收支的影响,以及世界其他地区远距离输送对我国东部地区空气质量的影响。目前针对大气污染物的跨国界输送对我国北方地区对流层 O₃ 的影响开展不多,尤其缺乏对对流层 O₃ 浓度有贡献的各种物理化学过程的定量分析研究。这与缺少 O₃ 探空数据以及与其相配合的近地面化学成分观测有关,同时模式的研究工作未能很好地与观测试验相结合也是一个因素。因此本文采用 MOZART-2 模式结合 O₃ 探空观测资料研究我国北方地区的 O₃ 收支,揭示光化学反应、沉降作用以及周边地区的输送作用对该地区对流层 O₃ 的影响。

* 国家自然科学基金项目(40575060)资助。
2009-02-17 收到,2009-10-08 收到再改稿。

1 数据与方法

本文采用 MOZART-2 全球化学输送模式估计我国北方地区 ($32^{\circ}\sim 45^{\circ}\text{N}$, $75^{\circ}\sim 125^{\circ}\text{E}$) 对流层内 O_3 的各项收支, 该模式已经广泛应用于对流层光化学模拟中^[20-21], 模式的水平分辨率为 $3.8^{\circ}\times 3.8^{\circ}$, 动力场采用每天 4 次的 NCEP 再分析资料, 垂直分辨率为 26 层, 从地面至高空约 28 km 高度, 模拟时段为 2003 年 12 月—2005 年 6 月。MOZART-2 的排放源资料主要是建立在 EDGAR, GEIA 的排放清单和 Hao 等^[22]、Muller^[23] 的研究结果基础上, 反映了 20 世纪 90 年代的源排放情况。近十几年来, 随着工业发展, 源排放的种类和数量都发生了相应的变化。为了更好地模拟污染气体的分布特征和各种物理化学过程, 需要采用能代表近期污染的源排放数据。采用 EDGAR-32FT2000 数据库中代表 1997—2002 年期间平均情况的水平分辨率为 $1^{\circ}\times 1^{\circ}$ 的源排放对 MOZART-2 源清单进行了更新, 对更新源排放后的 CO 模拟结果和 MOPITT 卫星观测进行对比分析, 结果表明: 在我国北方地区, MOZART-2 模式能较好地模拟出 CO 的分布和季节变化特征^[24]。痕量气体的收支包括 3 个方面: 源、汇和气体的总质量。 O_3 是二次产物, 对流层 O_3 的源/汇为干沉降、光化学反应和输送过程。

本研究 O_3 垂直廓线采用的是 TAPTO-China (The Transport of Air Pollutants and Tropospheric O_3 over China) 项目在 2005 年 4—5 月获得的外场

观测数据。TAPTO-China 是由国家自然科学基金与中国香港资助局联合资助的为期两年的春季 O_3 外场观测项目, 2005 年春季该项目在我国北方地区的阿勒泰、西宁、北京和龙凤山分别进行了 22, 23, 17 次和 24 次 O_3 探空观测, 4 个站点依次代表了我国北方的西部、中部和东部地区不同环境背景下的 O_3 浓度特征。

2 结果与分析

2.1 观测与模拟结果的对比分析

图 1 和图 2 为 2005 年春季 TAPTO 观测期间各站点的 O_3 浓度模拟廓线与观测廓线, 地面到 25 km 高度的 O_3 浓度廓线(图 1)显示总体上模拟值和观测值比较吻合, 阿勒泰、西宁和北京的对流层上层至平流层下层高度范围观测值和模拟值的差异较大。由于平流层 O_3 浓度与对流层 O_3 浓度差别非常大, 为了了解两者在对流层的差异, 图 2 展示了从地面至 12 km O_3 浓度的模拟值与观测值廓线。可以看出: 在西北部的观测点阿勒泰, 6 km 高度以下的 O_3 浓度模拟值与观测值的差异较小; 西宁是高山观测站, 从地面到对流层 7 km 高度该站点的模拟值与观测值比较吻合; 北京 5 km 高度以下的模拟值较好, 5 km 以上差异较大; 龙凤山观测站的模拟结果要优于其他站点, 从地面到 10 km 高度的模拟结果和观测吻合较好。这 4 个北方观测点的 O_3 浓度模拟值普遍比观测值高, 在对流层中下层模拟值和观测值比较吻合, 在对流层的上层, 阿勒泰、西宁和

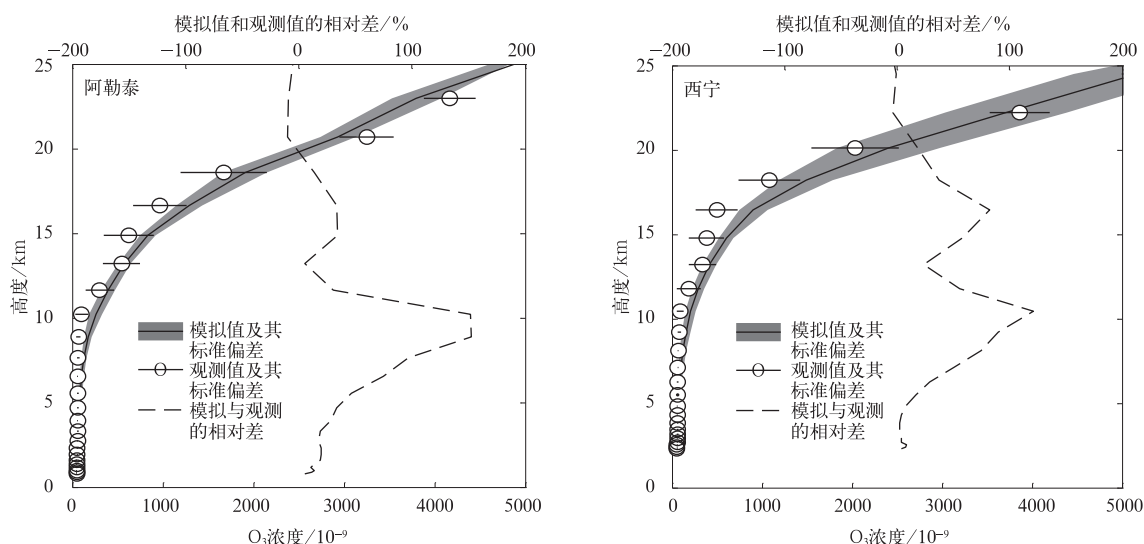
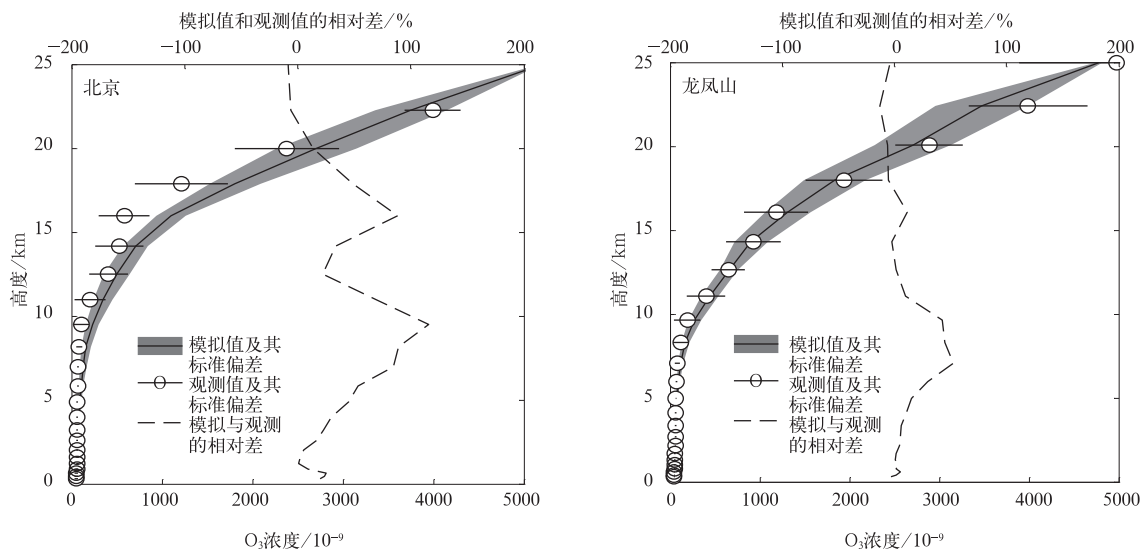


图 1 地面至 25 km 的 O_3 浓度模拟值与观测值对比

Fig. 1 Comparison of simulated O_3 with the observed from ground to 25 km



续图 1

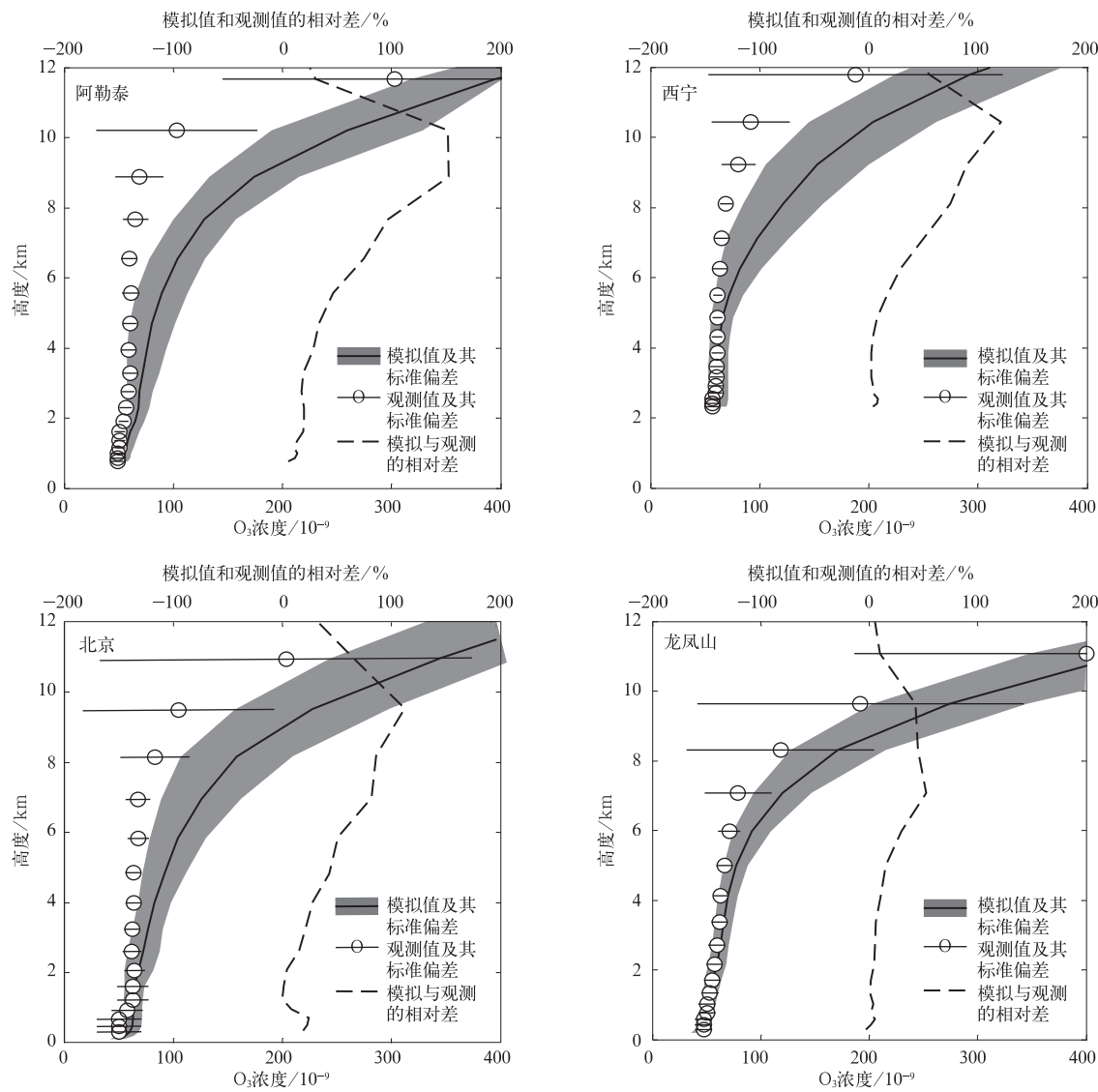


图 2 地面至 12 km 的 O₃ 浓度模拟值与观测值比对

Fig. 2 Comparison of simulated O₃ with the observed from ground to 12 km

北京的模拟值和观测值差异较大,模式约高估了1倍的 O_3 浓度。Horowitz等^[25]研究表明:在中高纬度地区的对流层顶附近,MOZART模式高估了25%甚至更多的 O_3 浓度。

2.2 臭氧收支分析

在我国北方地区的对流层中下部0~6 km(约1000~400 hPa),MOZART-2能较准确地模拟 O_3 浓度的垂直分布,本文就我国北方地区对流层中下层的 O_3 收支进行了分析,对流层下层设为1000~700 hPa,对流层中层为700~400 hPa。表1显示了2004年我国北方地区对流层中下层的 O_3 年收支。在对流层下层,光化学生成作用(41.5 Tg)是 O_3 最重要的来源,占了总来源的58.3%;水平输送作用略小于光化学对 O_3 生成的贡献(29.6 Tg, 41.6%);在对流层中层,光化学反应生成的 O_3 (12.7 Tg)比对流层下层明显减小,这是由于 O_3 的前体物浓度在对流层下层浓度较高的缘故;随着高度增加,水平输送作用增大,对流层中层的 O_3 有81.5%(55.9 Tg)来自水平方向的输送,在对流层中层光化学生成的 O_3 和光化学消耗量基本持平;光化学生成反应中 HO_2 对于 O_3 生成贡献最大,在对流层下层占有所有化学生成量的60.5%(25.1 Tg),在对流层中层为67.9%(8.6 Tg)。在对流层下层,消耗 O_3 最大的是干沉降,该过程消耗了26.2 Tg的 O_3 ,占各种汇的43.2%,光化学反应消耗了30.5%的 O_3 ,其中 $O(^1D)$ 与 H_2O , O_3 与 HO_2 和 OH 反应消耗的 O_3 占了光化学消耗的绝大部分(17.5 Tg);对流层中层 O_3 的汇主要是垂直方向的输送(47.0 Tg, 79.4%);对流层中层的 O_3 总质量比对流层下层要大,这种 O_3 浓度随着高度增大的分布特征和阿勒泰、西宁、北京和龙凤山观测的 O_3 浓度垂直分布特征一致。

表1 2004年我国北方地区对流层中下层 O_3 年收支(单位:Tg)

Table 1 Annual O_3 budget in the lower and middle troposphere over North China of 2004 (unit: Tg)

物理化学过程	1000~700 hPa	700~400 hPa	1000~400 hPa
源			
$HO_2 + NO$	25.1	8.6	33.7
$CH_3O_2 + NO$	9.1	3.1	12.2
$RO_2 + NO$	7.3	1.0	8.3
水平净输送	29.6	55.9	85.6
源合计	71.1	68.6	139.8
汇			
$O(^1D) + H_2O$	6.1	3.0	9.1
$O_3 + OH$	4.0	3.4	7.4
$O_3 + HO_2$	7.4	5.8	13.2
其他化学消耗	1.0	0.0	1.0
垂直净输送	16.0	47.0	63.0
干沉降	26.2		26.2
汇合计	60.7	59.2	119.9
总质量	1.3	2.0	3.4

图3是2004年我国北方地区对流层中下层臭氧光化学收支的年变化。如图3所示,对流层下层和中层的 O_3 光化学生成量和消耗量在夏季最大,冬季最小,由于夏季温度高、辐射强,光化学反应活性强,因此该季节 O_3 的光化学生成/消耗量比较大;相反地,冬季温度低、辐射弱,光化学反应速率低,导致 O_3 的光化学/消耗量较小。图3也显示出对流层下层的 O_3 光化学生成量大于光化学消耗量,Frost等^[26]指出一般在靠近源区的边界层内,光化学反应的净效应是生成 O_3 ;在对流层中层, O_3 的光化学生成量在6—9月大于光化学消耗量,研究表明在锋面活动^[27]或深对流^[28]作用下,边界层内的 O_3 前体物输送至自由对流层,导致自由对流层出现 O_3 净生成^[29],夏季是我国北方地区对流活跃的季节,对流运动可将地面排放的 O_3 前体物输送至较高的对流层,使得该季节在对流层中层光化学反应

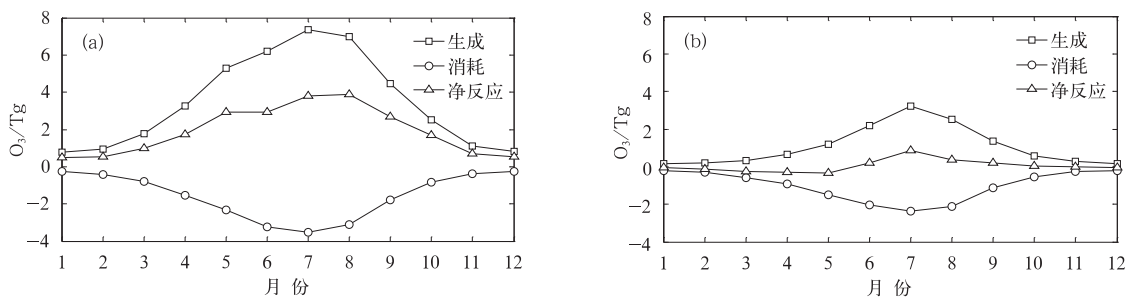


图3 2004年我国北方地区臭氧光化学收支年变化

(a)对流层下层,(b)对流层中层

Fig. 3 Annual circle of O_3 photochemical budget in North China of 2004

(a) lower troposphere, (b) middle troposphere

净生成 O₃, 在其他季节, 光化学净消耗意味着对流层中层是 O₃ 光化学消耗区域。

干沉降过程是我国北方地区对流层下层 O₃ 最大的汇, 如图 4 所示, O₃ 干沉降量有显著的季节变化: 春末到夏季干沉降量最大, 冬季干沉降量最低, O'Connor 等^[30]模拟的北半球热带以外地区的 O₃ 干沉降量也在夏季达到最大。O₃ 干沉降量决定于 O₃ 的浓度、干沉降速率和边界层的混合状态, 干沉降速率由地表特征决定^[31], 一些自然物表面如植物叶面都是比较有效的接受器, 干沉降速率还受到植物本身的日变化和季节性生长循环的影响。春末至夏季 O₃ 的光化学生成量比较大, 我国北方地区的 O₃ 浓度在这段时期也比较大, 同时边界层内的垂直混合增强, 植被也最为茂盛, 与之相反, 冬季 O₃ 浓度最低, 边界层混合较弱, 植被萧条, 这些因素导致了 O₃ 的干沉降量在春末至夏季最大, 冬季最小。

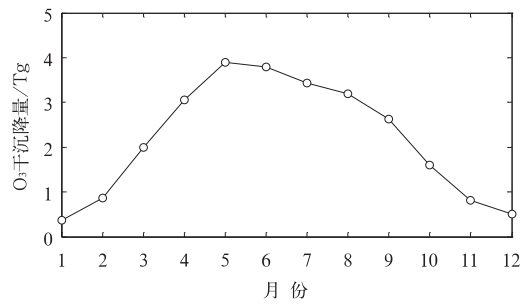


图 4 2004 年我国北方地区的 O₃ 干沉降年变化

Fig. 4 Annual circle of O₃ dry deposition in North China of 2004

在我国北方地区对流层下层, 约 41.6% (29.6 Tg) 的 O₃ 来自水平净输送; 对流层中层, 有 81.5% (55.9 Tg) 的 O₃ 来自水平净输送; 输送对我国北方地区对流层 O₃ 有非常重要的贡献。图 5 显示了 2004 年我国北方地区对流层下层、中层各截面

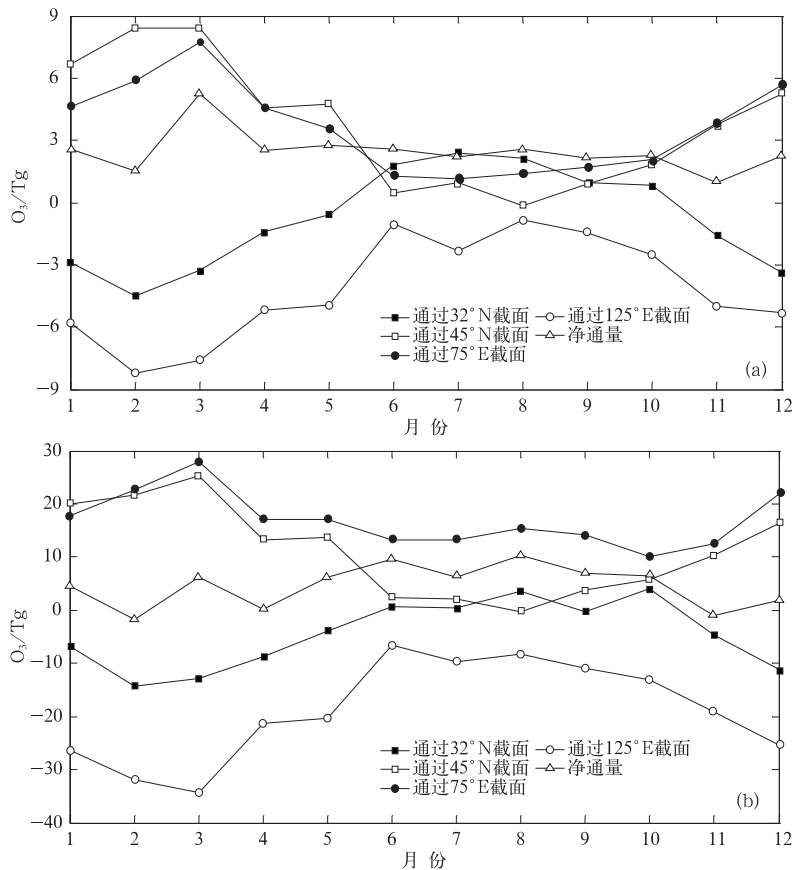


图 5 2004 年我国北方地区的 O₃ 水平输送量年变化

(a) 对流层下层, (b) 对流层中层

Fig. 5 Annual circle of O₃ horizontal transport in North China of 2004

(a) lower troposphere, (b) middle troposphere

的 O_3 水平通量和水平净通量的年变化,通过我国北方地区 4 个截面的 O_3 水平输送量代表了周边地区对我国北方地区 O_3 的贡献(正值代表了通过某截面周边地区向我国北方地区输入 O_3 , 负值代表了通过某截面我国北方地区向外输出 O_3)。2004 年全年西面的欧洲和中亚向我国北方地区对流层下层输入 O_3 为 43.4 Tg, 北面的蒙古和俄罗斯输入 O_3 为 45.8 Tg, 我国北方向南方输出 O_3 为 9.4 Tg, 向东面的太平洋沿岸地区输出 O_3 为 50.2 Tg, 由于对流层下层光化学反应净生成的 O_3 量较大, 向太平洋地区输出的 O_3 中局地光化学生成的 O_3 占了相当一部分; 在对流层中层输送作用更为显著, 由于水平风速的增大, 各方向的 O_3 水平输送量都明显增大, 来自欧洲和中亚的 O_3 输入量为 202.7 Tg, 蒙古和俄罗斯的输入量为 134.1 Tg, 向南方的输出量为 53.8 Tg, 向太平洋地区的输出量也增加到了 227.1 Tg。向太平洋地区输出的 O_3 中包含了本地的化学生成、上风向地区的输入以及对流层下层的垂直输入, 假设向太平洋地区输出的 O_3 中包含所有该层局地光化学生成的 O_3 和由下层垂直输入的 O_3 (共 28.7 Tg), 其中也有约 87.4% (198.4 Tg) 的 O_3 来自于中亚、蒙古和俄罗斯这些周边地区的输入。与该地区 CO 输送通量的月变化一致^[24], 西面、北面的 O_3 输入量以及南面、东面的输出量在冬、春季较大, 夏季最小; 夏季在西南季风的作用下, 南面的 O_3 通量会由输出转变为输入。冬、春季较大的风速使得 O_3 的通量在冬、春较大。

3 结论及讨论

本文采用 MOZART-2 模式分析了影响我国北方地区对流层中下层臭氧的各个物理化学过程, 得出如下结论:

1) 我国北方地区对流层下层 O_3 最重要的来源是光化学生成作用, 最大的汇是干沉降过程。光化学生成反应中 HO_2 对于 O_3 生成的贡献最大。

2) 我国北方地区对流层中下层的 O_3 光化学生成量和消耗量在夏季最大, 冬季最小。在我国北方地区对流层下层, O_3 的光化学生成量大于光化学消耗量, 除夏季外, 该地区的对流层中层是 O_3 的光化学消耗区域。

3) 水平净输送作用对我国北方地区对流层中下层 O_3 的影响非常大, 在我国北方地区对流层下

层, 41.6% 的 O_3 来自水平净输送, 随高度增加, 风速增大, 水平输送作用更为显著, 我国北方地区对流层中层 81.5% 的 O_3 来自水平净输送。

4) 我国北方地区对流层下层向太平洋地区年输出 O_3 为 50.2 Tg, 由于对流层下层净生成的 O_3 量较大, 向太平洋地区输出的 O_3 中局地光化学生成的 O_3 占了相当一部分; 在对流层中层, 向太平洋地区的输出量中约有 87.4% 的 O_3 来自于中亚、蒙古和俄罗斯地区的输入。

O_3 模拟值和观测值比对表明, 模式高估了对流层上部和平流层下部的 O_3 浓度。本研究中, 观测站点位于我国北部, 中高纬度地区对流层上部和平流层下部是平流层-对流层交换 (STE) 的多发地带, 观测数据的采样时间 (春季) 又是对流层顶折叠的多发时期, 在全球化学输送模式中, STE 这种亚尺度过程不能被明确表示, 由此造成模拟值和观测值差异较大。基于模拟和观测的比对分析, 本研究仅包括对流层中下层, 如何较为准确地模拟 STE 过程, 完善对区域对流层臭氧收支分析还需要做更多的工作。

参考文献

- [1] Hoell J M, Davis D D, Liu S C, et al. The Pacific Exploratory Mission-West Phase B: February-March 1994. *J Geophys Res*, 1997, 102(D23): 28223-28239.
- [2] Hoell J M, Davis D D, Liu S C, et al. Pacific Exploratory Mission-West A (PEM-West A): September-October 1991. *J Geophys Res*, 1996, 101(D1): 1641-1653.
- [3] Huebert B J, Bates T, Russell P B, et al. An overview of ACE-Asia: Strategies for quantifying the relationships between Asian aerosols and their climatic impact. *J Geophys Res*, 2003, 108(D23): 8633.
- [4] Jacob D J, Crawford J H, Kleb M M, et al. Transport and chemical evolution over the Pacific (TRACE-P) aircraft mission: Design, execution, and first results. *J Geophys Res*, 2003, 108(D20): 9000.
- [5] Hudman R C, Jacob D J, Cooper O R, et al. Ozone production in transpacific Asian pollution plumes and implications for ozone air quality in California. *J Geophys Res*, 2004, 109: D23S11.
- [6] Kondo Y, Nakamura K, Chen G, et al. Photochemistry of ozone over the western Pacific from winter to spring. *J Geophys Res*, 2004, 109: D23S02.
- [7] Price H U, Jaffe D A, Cooper O R, et al. Photochemistry, ozone production, and dilution during long-range transport episodes from Eurasia to the northwest United States. *J Geophys Res*, 2004, 109: D23S14.

- [8] 丁国安,孟昭阳,于海青,等. 北京城区大气边界层空气污染特征观测研究. 应用气象学报,2002,13(特刊): 82-91.
- [9] 郑向东,汤洁,周秀骥,等. 拉萨地区 1998 年夏季臭氧总量及垂直廓线的观测研究. 应用气象学报,2000,11(2): 173-179.
- [10] 郑向东,周秀骥,秦瑜,等. 夏季西宁地区的对流层臭氧垂直分布;臭氧探空与气象探空的观测结果分析. 气象学报,2002,60(1): 48-52.
- [11] 王晓云,潘莉卿,吕伟林,等. 北京城区冬季空气污染物垂直分布与气象状况的观测分析. 应用气象学报,2001,12(3): 279-286.
- [12] 周秀骥. 长江三角洲低层大气与生态系统相互作用. 北京:气象出版社,2004:130-146.
- [13] Ma J Z, Liu H L, Hauglustaine D. Summertime tropospheric ozone over China simulated with a regional chemical transport model 1. Model description and evaluation. *J Geophys Res*, 2002, 107(D22): 4660.
- [14] Ma J Z, Zhou X J, Hauglustaine D. Summertime tropospheric ozone over China simulated with a regional chemical transport model 2. Source contribution and budget. *J Geophys Res*, 2002, 107(D22): 4612.
- [15] Ma J Z, Van Aardenne J A. Impact of different emission inventories on simulated tropospheric ozone over China; A regional chemical transport model evaluation. *Atmos Chem Phys*, 2004, 4(4): 877-887.
- [16] 张恺,徐大海,朱蓉,等. CAPPS 多箱模式中光化学模式的嵌套与城市大气臭氧数值预报. 应用气象学报,2005,16(1): 1-12.
- [17] 徐祥德,丁国安,卞林根. 北京城市大气环境污染机理与调控原理. 应用气象学报,2006,17(6): 815-828.
- [18] Newell R E, Evans M J. Seasonal changes in pollutant transport to the North Pacific; The relative importance of Asian and European sources. *Geophys Res Lett*, 2000, 27(16): 2509-2512.
- [19] 盛裴轩,毛节泰. 东北亚地区污染物输送的等熵轨迹分布——周边国家对中国的影晌. 气象学报,1997,55(5): 588-601.
- [20] Zhao C S, Tie X X, Wang G L, et al. Analysis of air quality in eastern China and its interaction with other region of the world. *J Atmos Chem*, 2006, 55: 189-204.
- [21] Tie X X, Granier C, Massie S, et al. Chemical characterizations of air pollution in eastern China and the eastern United States. *Atmos Environ*, 2006, 40: 2607-2625.
- [22] Hao W M, Liu M H. Spatial and temporal distribution of tropical biomass burning. *Global Biogeochem Cycles*, 1994, 8: 495-503.
- [23] Muller J F. Geographical distribution and seasonal variation of surface emissions and deposition velocities of atmospheric trace gases. *J Geophys Res*, 1992, 97: 3787-3804.
- [24] Peng L, Zhao C S, Lin Y P, et al. Analysis of carbon monoxide budget in north China. *Chemosphere*, 2006, 66: 1383-1389.
- [25] Horowitz L, Walters S, Mauzerall D L, et al. A global simulation of tropospheric ozone and related tracers: Description and evaluation of MOZART, Version 2. *J Geophys Res*, 2003, 108(D24): 4783.
- [26] Frost G J, Trainer M, Allwine G, et al. Photochemical ozone production in the rural south eastern United States during the 1990 Rural Oxidants in the Southern Environment (ROSE) program. *J Geophys Res*, 1998, 103(D17): 22491-22508.
- [27] Bethan S, Vaughan G, Gerbig C, et al. Chemical air mass air mass differences near fronts. *J Geophys Res*, 1998, 103(D11): 13413-13434.
- [28] Dickerson R R, Huffman G J, Luke W T, et al. Thunderstorms: An important mechanism in the transport of air pollutants. *Science*, 1987, 235: 460-465.
- [29] Zanis P, Monks P S, Schuepbach E, et al. The role of in situ photochemistry in the control of ozone during spring at the Jungfraujoch-comparison of model results with measurements. *J Atmos Chem*, 2000, 37: 1-27.
- [30] O'Connor F M, Law K S, Pyle A, et al. Tropospheric ozone budget; Regional and global calculations. *Atmos Chem Phys Discuss*, 2004, 4: 991-1036.
- [31] Fuentes J D, Gillespie T J, Denhartog G, et al. Ozone deposition onto a deciduous forest during dry and wet conditions. *Agr Forest Meteorol*, 1992, 62: 1-18.

Ozone Budget in the Lower and Middle Troposphere over North China

Peng Li¹⁾ Lin Yunping²⁾ Zhou Guangqiang¹⁾ Zhao Chunsheng²⁾ Geng Fuhai¹⁾

¹⁾ (*Shanghai Urban Environmental Meteorological Research Center, Shanghai 200135*)

²⁾ (*Department of Atmospheric Science, School of Physics, Peking University, Beijing 100871*)

Abstract

Photochemical reaction, transportation and deposition are the main processes that effect ozone concentrations in troposphere. Quantitative estimation of troposphere ozone budget and the effect of intercontinental transport are very important in order to reveal ozone formation mechanism and the impacts of transport on troposphere ozone over North China. MOZART-2, a global chemical transport model (model of ozone and related tracers, Version 2) is used to assess physical and chemical processes that influence the budget of lower and middle troposphere ozone in North China. Ozone sonde data obtained by TAPTO (The Transport of Air Pollution and Troposphere Ozone over China) field campaign are compared with model results for reference.

The comparison shows that MOZART-2 represents the vertical distributions of ozone in the lower and middle troposphere over North China very well, while for the upper troposphere, ozone concentrations are overestimated by the model. Budget analysis indicates that in the lower troposphere over North China, photochemical production (41.5 Tg) contributes about 58.3% of the total ozone sources, and oxidation of NO by HO₂ is the largest contributor especially. The largest consumption process in lower troposphere is dry deposition, accounting for about 43.2% of the total ozone sinks.

Ozone chemical budget varies with seasons notably. It reaches its maximum in summer due to strong photochemical reactions, while the minimum chemical budget occurs in winter because of low temperature and weak reactions. The chemical production of ozone is more than the chemical loss in the lower troposphere in the whole year. But for middle troposphere, chemical loss exceeds chemical production all year except in summer. In summer, ozone precursors in the boundary layer can be transported to upper level of troposphere due to the active convection, and the photochemical reactions of more ozone precursors lead to more ozone production.

Net horizontal transport plays an important role in ozone budget in the low and middle troposphere over North China. About 41.6% ozone in lower troposphere comes from net horizontal transport. As the height increases, wind speed rises, and the influence of net horizontal transport enhances. Nearly 81.5% ozone in the middle troposphere comes from net horizontal transport.

Constrained by simulating ability for sub-grid processes, the model tends to overestimate ozone concentration in upper troposphere and near the tropopause over middle to high northern latitudes. Modeling for sub-grid processes such as stratosphere-troposphere exchange (STE) should be improved to comprehend mechanism of ozone in the whole troposphere in depth.

Key words: lower and middle troposphere; ozone; budget analysis; photochemical reaction; transport