**一**

论文写作还有一些问题，文字需进一步整理润色，特别是摘要和第一章。

√（1）摘要中存在很多语病和介绍不清楚的地方。建议研究的**重要方法、使用数据、研**

**究区域、针对对象在摘要中要简要介绍清楚；**要增强行文逻辑性，不要罗列发现；不

能突然冒出一个结论，需要有出处，基于什么得到这个结论。

重新撰写了摘要。

#### 深对流云是大气垂直输送的主要载体，能够在短时间内将污染气体从边界层输送至对流层上层甚至平流层下层，从而影响区域和全球的大气环境和气候。此外，闪电氮氧化物（LNOx）是对流层上层氮氧化物（NOx）的主要来源，但目前对于 LNOx 产率及其对臭氧（O3 ）的影响仍存在较大的不确定性。传统的气球探空和飞机观测等试验具有较大的难度，而卫星遥感技术的发展为定量LNOx 排放提供了新的方法。本研究基于上述背景，通过卫星数据反演、数值模拟和臭氧探空试验，确定了污染和清洁地区闪电二氧化氮（LNO2 ）和LNOx 的产率，并对比分析了观测和模拟的二氧化氮（NO2 ）与O3的垂直分布，揭示了深对流中动力输送和化学反应对 O3 浓度变化的贡献。

#### 首先，本研究利用对流层观测仪（TROPOMI）和臭氧监测仪（OMI）的遥感观测资料，开发了适用于污染和清洁地区 LNO2 和LNOx 柱浓度的反演算法。为了与前人的星载观测研究相比，本研究选择了广泛开展观测的北美地区进行反演算法开发和对比。结果表明，本算法详细考虑了LNOx 垂直分布和云属性，具有更好的普适性。结合该算法所得的柱浓度产品和地基闪电观测数据，得到了北美大陆地区在对流旺盛时 LNO2 和 LNOx 的产率，分别为 32*±*15 mol NO2 每闪电和 90*±*50 mol NOx 每闪电。除了前人普遍研究的旺盛对流外，该反演算法还适用于对流的初始和消散阶段，弥补了 TROPOMI在对流旺盛处因饱和效应而缺失数据的不足。为证明该方法的可行性，本研究进一步选择了与北美同纬度的中国东部污染地区和高纬度的北极清洁地区进行拓展研究。其中， TROPOMI 在北极地区连续过境的特性也为将来静止化学监测卫星的应用提供了依据。结果表明，在中国东部污染地区对流消散期间 LNOx 的产率为 60*±*33 mol NOx 每闪电。在清洁北极陆地地区，LNO2 产率为 2.0 mol 每闪击，与中纬度污染地区的 LNO2 产率相当。而北极海洋地区 LNO2 的产率是北极陆地地区的 6 倍，总体而言，北极夏季的 LNOx 排放量相当于该地区人为 NOx 排放的 5%。

#### 其次，本研究利用上述算法得到的云上 NO2 产品，结合云切片算法，探究了不同高度层对流云的 NO2 浓度特征，为计算对流云内 NO2 的垂直分布提供了新的视角。针对中低纬度的对流观测，本研究得到了对流层顶至 330 hPa、330 至 450 hPa、450 至 570 hPa、570 至 670 hPa、670 至 770 hPa 和 770 至 870 hPa 各高度层 NO2 和 O3 的平均浓度，并揭示了中低纬度对流云内的“C”型 NO2 垂直分布。具体而言，在陆地地区，对流层顶至 330 hPa 高度间的 NO2 浓度约为 450 至 570 hPa 高度间的 2 倍，570 hPa 高度以下 NO2 浓度随高度的降低而增加，这表明在对流层上层，NO2 中LNO2 占主导地位，而在对流层下层则是人为排放的 NO2 占主导地位。此外，通过将全球模式模拟结果与本研究的观测结果进行对比，发现全球模式低估了 LNO2 排放和人为源 NO2 的垂直输送，导致对流层上层 NO2 浓度在模拟中偏低 10% 至 50%。因此，TROPOMI 观测所获得的廓线信息可用于模式评估，并指导参数化方案的开发。本研究进一步对比了有云和晴空条件下的 TROPOMI O3 观测数据和全球模式资料。结果显示，有云时，中纬度地区对流层上层O3 平均浓度下降了 26%，低纬度海洋地区下降了 17%，而非洲中部由于生物质燃烧的影响升高了 20%。

#### 最后，本研究综合运用 TROPOMI 观测数据、WRF-Chem 模拟和O3 探空试验数据，在中国东部污染地区这个人口密集、对流研究资料匮乏的区域，选择了不同类型的对流系统，分析了动力输送、化学反应和化学反应速率对 O3 时空变化的影响。结果表明，虽然动力输送项在对流旺盛期间主导了 O3 浓度变化，但在整个生命周期中化学反应对 O3 的贡献可达动力输送项的 5–10 倍。这一结论解释了臭氧探空在对流发生后观测到对流层上层 O3 浓度增大的现象。此外，敏感性试验表明，LNOx 导致对流层上层 O3 化学累积生成速率降低了 4%，累积消耗速率增加了 23%，从而导致 O3 平均浓度降低了 25%。将对流分为核心区和层云区后，研究发现核心区动力输送对 O3 的贡献为层云区的 2 倍，而层云区中的 O3 浓度变化则受到核心区输送的控制。虽然 LNOx 使核心区的 O3 化学产量增加了 125%，但导致 O3 的净产量下降了 21%。

#### 以上结果揭示了不同区域 LNOx 产率的差异性，同时分析了深对流活动对对流层 NO2 和O3 浓度变化的影响机制。因此，在全球气候变暖的背景下，需建立更为完善的评估系统，结合多种卫星平台和模式，以更深入地了解深对流活动及其影响。

√（2）第一章1.1节逻辑性差，极为混乱，有些还有矛盾。比如，“每年大约发生90次

由对流引起的边界层大气垂直输送事件”和“对流每天以约8% 的速率向对流层上层输

送”;“就气候辐射强迫而言，对流层O3 是第三大重要的温室气体”和上下文完全没

有关系;“对流输送可改变高层污染气体和气溶胶在区域和全球大气中的循环（Clari

sse et al., 2011），并通过云和降水过程改变边界层气溶胶浓度来调节全球气候（

Taylor et al., 1997）”表述特别别扭;“除此以外……”这一段基本是想到哪里写

到哪里，没有围绕选题的研究意义这个中心思想展开。**建议从闪电氮氧化物的重要性**

**、深对流和闪电活动关系密切、深对流影响污染物垂直分布**等方面有条理的展开论述

。

围绕闪电氮氧化物的重要性和深对流影响污染物垂直分布重新撰写了绪论1.1部分。

#### 氮氧化物 [NOx = 一氧化氮（NO）+ 二氧化氮（NO2 ）] 是地球大气中重要的痕量气体，对于调节臭氧（O3 ）以及其他痕量气体浓度起着至关重要的作用。在平流层中， NOx 的主要来源是通过 N2 O 的光解作用，这对 O3 的消耗起着催化作用。而在对流层中，人为排放的 NOx 约为 48 Tg 氮每年（[Miyazaki et al.](#_bookmark313), [2017](#_bookmark313)），自然来源主要包括土壤排放和闪电放电产生的 NOx（[Finlayson-Pitts, Barbara J. et al.,](#_bookmark220) [2000;](#_bookmark220) [Vinken et al.,](#_bookmark400) [2014](#_bookmark400)）。然而，自然源 NOx 的排放量存在较大的不确定性，其中闪电排放的 NOx（LNOx）的全球总产量约为 2–8 Tg 氮每年（[Schumann et al.](#_bookmark373), [2007](#_bookmark373)）。

#### 具体而言，闪电放电在高温条件下分解氧分子（O2 ）和氮分子（N2）生成 NO，随后 NO 会迅速氧化为 NO2 并达到平衡状态（[Zel’dovich et al.](#_bookmark428), [1967](#_bookmark428)）。尽管 LNOx 相对于总 NOx 的贡献较小，但是由于其寿命相对较长且对流层上层 NOx 背景浓度较低，因此 LNOx 对控制对流层上层 O3 和 OH 自由基的含量起着关键作用，进而对大气层甚至全球气候产生重要的影响（[Levy et al.](#_bookmark288), [1996](#_bookmark288)）。在亚热带和热带地区，LNOx 约占自由对流层 NOx 的 70%，在高纬度地区夏季也可达到 20% 以上（[Jourdain et al.](#_bookmark268), [2001;](#_bookmark268) [Martin et al.](#_bookmark305), [2002;](#_bookmark305) [Galloway et al.](#_bookmark233), [2004;](#_bookmark233) [Allen et al.](#_bookmark152), [2010](#_bookmark152)）。由于 NO2 在对流下风向的晴空区可发生强烈的光解，所以 500–300 hPa 之间的O3 浓度可增加 10–20 ppbv （[DeCaria et al.,](#_bookmark204) [2005;](#_bookmark204) [Hauglustaine et al.](#_bookmark249), [2001](#_bookmark249)）。如果全球化学模式中 LNOx 的产量从 5 Tg 氮每年翻倍至 10 Tg 氮每年，则计算得到的全球对流层 O3 增加 7–12 % （[Brasseur et al.,](#_bookmark181) [1996;](#_bookmark181) [Labrador](#_bookmark278) [et al.,](#_bookmark278) [2005](#_bookmark278)）。若全球 LNOx 产量增加 4 倍（2.5 至 10 氮每年），则热带对流层上层 O3 增加高达 60%，从而导致 O3 在对流层顶处的平均净辐射通量增加 3 倍。由于 O3 是第三大重要的温室气体，准确的气候预测需要详细考虑 LNOx 对 O3 的贡献作用。

#### 然而由于闪电与复杂的对流活动关系密切，所以雷暴内部和附近的 O3 变化范围较大。受限于观测技术，目前很难将O3 的变化与雷暴中的LNOx 排放和地表 NOx 排放区分开（[Schultz et al.](#_bookmark371), [2004](#_bookmark371)）。例如，在偏远未受污染的海洋区域，边界层低 O3 浓度的空气块受对流影响而向对流层上层输送，导致雷暴出流区中 O3 浓度几乎为零（[Kley et al.,](#_bookmark272) [1996;](#_bookmark272) [Folkins et al.,](#_bookmark225) [2002](#_bookmark225)）。在大陆污染地区，边界层内排放的 O3 前体物可通过上升气流进入自由对流层，和 LNOx 一起参与生成O3 的光化学反应，引起雷暴出流区中 O3 浓度升高 100 ppbv（[Pickering et al.,](#_bookmark337) [1990,](#_bookmark337) [1996;](#_bookmark340) [Bond et al.,](#_bookmark178) [2002;](#_bookmark178) [Huntrieser et al.,](#_bookmark262) [2016](#_bookmark262)）。此外，热带海洋和雨林地区的电晕放电可导致对流空气块中O3 浓度高达 2000 pbv（[Zahn](#_bookmark427) [et al.,](#_bookmark427) [2002;](#_bookmark427) [Minschwaner et al.,](#_bookmark312) [2008;](#_bookmark312) [Bozem et al.,](#_bookmark180) [2014;](#_bookmark180) [Kotsakis et al.,](#_bookmark275) [2017](#_bookmark275)）。另一方面，过冲云顶所引起的平流层 O3 入侵亦可导致 O3 浓度的升高（[Homeyer et al.](#_bookmark255), [2014](#_bookmark255)）。

#### 因此，虽然闪电放电是对流上层 NOx 和O3 的一个重要源，但需要考虑到其他多种因素的影响，才能全面理解和评估其对大气化学的贡献。鉴于 O3 是强氧化剂和紫外线吸收剂（[Myhre et al.,](#_bookmark317) [2013](#_bookmark317)），深入了解 LNOx 的排放及其对O3 的影响机理，对于理解大气污染物的远距离输送、与云和辐射的相互作用，以及对空气质量和气候变化的影响具有重要意义。本研究将开发针对对流条件下 LNOx 和 O3 的卫星反演算法，并结合探空观测和数值模拟，深入探究对流系统对 NO2 和O3 垂直分布的影响，并对模式中LNOx的生成模块进行改进，提高对流和空气质量的模拟效果，为对流影响的研究提供更为合理的理论依据。

√（3）第一章1.2节，文中只是罗列前人研究，缺少整理、分析。建议围绕1.3展开文献

调研，分析进展、指出问题，无**关文献该删就删**。

在各节末尾处指出问题，删除统计前人观测试验的2页表格。

√（4）第二章，建议增加本文使用数据和模型的用途，2.2中需说明究竟使用了哪些数

据。

添加了卫星数据所使用的产品和模式用途。

√（5）第六章，6.2节需要好好提炼总结，不要浪费了本文这么好的工作。

更改如下：

6.2 论文特色与创新

(1) 开发了具有普适性(同时适用于污染和清洁地区)的高分辨率大气成分卫星 遥感反演LNO2 柱浓度的算法。

(2)首次在国内开展了针对对流前后对流层O3 浓度变化的探空观测试验，并利 用WRF-Chem模式探究了O3 浓度明显升高的成因，量化了对流旺盛期间的动力输送 效应，揭示了整个对流过程中化学反应对O3 浓度正贡献的重要作用。

**二**

本文总体思路清晰，方案可行，但是涉及较多的研究手段和对象，逻辑表达较为混乱

，主要工作和创新点缺乏清晰性和条理性，修改建议如下：

? 1、**题目**可以更加明确，目前大气环境领域较多关注夏季平流层臭氧对对流层的入侵污

染、闪电产生的对流层内NOx的排放量等内容，**本文主要研究对流和闪电导致的大气污**

**染物向大气上层的传输**，容易与前者混淆；

如果换为“基于卫星遥感的闪电和对流输送对二氧化氮和臭氧垂直分布的影响研究”，中文标题会有点拗口，且英文翻译会别扭。

√ 2、内容需要符合逻辑，在绪论中作者强调我国的相应研究较少，在结论中又有北美大

陆的研究，**主要的研究区域**是我国的华南还是哪个区域？

绪论最后改为强调对流观测和相关研究较少且零散，而不是单单强调中国区域。

√ 3、摘要部分应重新梳理，结论部分比摘要更有条理些，作为一篇博士论文，应该在**摘**

**要部分简明清晰的阐述当前研究存在的不足和问题，本文解决了哪些关键难点，与已**

**有研究相比，主要的创新性是什么？**建议主要工作和创新点以1、2、3的小点逻辑递进

表达；

重新撰写了摘要。

√ 4、6.2部分的创新点提到开发了普适性的LNO2遥感算法，6.1的结论中只提到了采用消

散阶段的数据，对已有算法的**改进之处在哪，还是主要在采用了不同的观测时段？作**

**为本文的重要创新点，应当在摘要和结论在清晰阐述**；

将改进之处在结论中详细列出。

鉴于目前 LNOx 的反演及应用多限定于清洁地区，因此本研究首先针对北美大陆的

对流旺盛系统，利用WRF-Chem模拟的高分辨率NO2 结果定义了LNO2 和LNOx的大气质量因子，从而同时适用于反演清洁和污染地区的LNO2 柱浓度。

。。。。。。。。。

然而TROPOMI的像素饱和效应常引起对流旺盛处无法反演NO2 柱浓度的问题。 本研究将开发的反演算法应用于消散阶段的观测数据，并成功计算出LNO2 的柱浓度。

√ 5、摘要和结论偏总结性，难以区分哪些是本文要解决的新问题、新发现或新结论，对

流和闪电影响下的大气成分交换和转换是大气探测和大气环境研究的热点和难点问题

，相比已有研究，本论文在**研究手段和科学现象上到底有哪些创新点**应当认真梳理并

清晰阐述；同时，论文中的估算结果又有哪些不确定性，也应定量和客观分析讨论。

重新撰写了摘要。

**三**

？1、论文的**题目**无法体现第三章以及第四章闪电二氧化氮反演算法及其应用的内容，建

立的**反演算法**是本文的一个关键创新点；

√ 2、第三章和第四章的内容与**第五章内容之间的关联性**在文中体现得不够清晰，建议在

第五章的开头部分更为清晰地进行阐述。

强调第三章和第四章得到的为柱浓度，第五章得到垂直廓线分布。

√3、建议在2.1.1小节说明这部分**臭氧探空观测数据将用于论文哪部分的研究**，或者用

于支撑论文中哪个结论。

已添加使用到的章节信息

**四**

√1. 4.1节中污染地区（中国东南部）名称不太准确，东南部指的是江苏、上海、浙江

、

福建、台湾、江西、安徽、广东、广西、海南等地，图4-1中地理位置包括了华中、华

北，核心区是长三角地区。建议用**中国东部地区**较好。

更改为中国东部地区

√2. 论文选择清洁地区（北极）作为和污染地区（中国东部）进行对比，为什么不用同

纬度的海洋地区作为清洁地区？建议**增加选择北极作为清洁地区的一些解释或说明**。

在章节介绍和结论中增加了解释。

章节介绍：由于LNO2不仅存在于对流旺盛期，也可在对流初生和消散阶段出现NO2高值，因此本章在第三章开发的LNO2反演算法基础之上，计算并比较污染地区（中国东部）和清洁地区（北极）不同阶段对流的LNO2产率。其中TROPOMI在北极地区的连续过境特性，可为将来静止化学监测卫星在LNO2的研究中提供可靠的依据。

结论：由于未来五年将有不同类型的静止化学监测卫星投入使用，因此本研究选择了TROPOMI连续过境的北极清洁地区，来探究新的LNO2产率计算方法。

此外，北极地区近年来闪电活动有所增多，为研究该地区的LNO2提供了条件。

√3. 创新点2需进一步凝练，进一步给出通过观测试验和数值模拟得到的科学上的新认

识

详细列出了现象及研究结果

“首次在国内开展了针对对流前后对流层O3浓度变化的探空观测试验，并利用WRF-Chem模式探究了O3浓度明显升高的成因，量化了对流旺盛期间的动力输送效应，揭示了整个对流过程中化学反应对O3浓度正贡献的重要作用。”