

欧拉型区域硫沉降模式研究^{*}

高会旺 黄美元 徐华英 周 玲

(中国科学院大气物理研究所, 北京 100029)

摘 要 建立了一个三维硫沉降欧拉模式, 模式中比较全面地考虑了硫沉降过程中的物理、化学机制。包括平流、扩散、干湿沉降和积云的垂直输送作用等物理过程, 气相化学、液相化学和气溶胶表面的非均相化学等化学过程。其中非均相化学和积云的垂直输送参数化在国内外同类模式中尚不多见。模式结果与实测及其他模式结果的对比表明, 该模式能够较好地模拟出 SO_2 的水平和垂直分布及 SO_4^{2-} 在降水中的浓度。

关键词 硫沉降 欧拉模式 干湿沉降 物理过程 化学过程

1 引言

多年来, 人们对酸雨进行了多方面的观测分析和模拟研究, 取得了丰硕的成果。这些研究主要包括云和降水酸度及化学成分的测定分析^[1,2]和酸雨的数值模拟研究。随着计算技术和计算机的发展, 酸沉降模式的研究受到了人们的重视。近年来发展了一批欧拉酸沉降模式, 其中比较著名有: RADM^[3], STEM^[4], ADOM^[5]。我国也发展了一些模式, 如秦瑜等^[6], 雷孝恩等^[7], 贾新媛^[8], 黄美元等^[9]。这些模式各有其特点, 分别对美国及我国或东亚的酸沉降问题进行了研究, 取得了很有意义的研究成果。

中国大陆和台湾、香港以及日本、朝鲜等国家和地区是世界上少有的重酸雨污染区域之一, 有不同于欧美的特点。主要与这一地区 SO_2 和气溶胶的高浓度有关。由于酸雨形成的复杂性和地域特殊性, 尽管对酸雨及沉降问题进行了多方面的研究, 但对其机制和特点的认识仍有待于进一步的深入。国际上虽有像 RADM 等比较好的模式, 但由于我国酸雨污染的特点和计算条件的限制, 模式并不能得到很好的应用。我国也有不少研究者用欧拉模式对酸沉降问题进行了模拟, 但一些模式中对气相化学及干、湿沉降的处理过于简单, 限制了模式的模拟能力。近年来的一些研究表明^[10,11], 非均相化学过程对酸性污染物的分布和沉降起着重要作用。一般来讲, 大尺度场是污染物被垂直输送的主要机制, 然而大气中这种作用比较缓慢。与之相比, 积云等对流天气则可能是污染物被输送到对流层中上部的快捷而有效的途径。80年代中后期进行的几项系统观测获得了对流垂直输送的有力证明^[12~14]。因此积云也是影响硫沉降的重要机制。本模式的主要特点是在欧拉型酸沉降模式中引入了非均相化学过程和积云的垂直输送作用, 这在国内外同类模式中尚不多见。

1996-02-05 收到, 1996-04-25 收到修改稿

^{*} “八五”国家科技攻关项目, 同时得到中国科学院大气物理研究所大气边界层物理和大气化学国家重点实验室的资助

2 硫沉降模式

2.1 气象场模式

考虑到我国陡峭地形和东亚地形的复杂性, 选用了宇如聪^[15]设计的考虑陡峭地形的 E 网格有限区域数值预报模式 (LASG-REM) 作为酸沉降过程的气象场模式, 并对其做了改进, 在模式中引入了高分辨率的边界层处理和云雨的微物理过程, 及积云对污染物垂直输送的参数化, 以满足对边界层内污染物行为的描述和液相化学过程的需要。

LASG-REM 基本方程组以 IAP GCM 的动力框架为基础, 对边界层的处理采用了整体边界层参数化方案, 这种方案计算简单, 但无法给出边界层内合理的气象场分布。我国的污染物大多是低烟囱排放, 其扩散过程主要集中在一千米、甚至几百米以下的大气边界层中。要描写这种过程就必须有比较详细的边界层气象场, 因此, 在 LASG-REM 中引入高分辨率的边界层模式是非常必要的。把 Blackadar^[16], Zhang 和 Anthes^[17]设计并发展的高分辨边界层模式加以简化和改造, 使其适合 LASG-REM 的需要, 并实现了与模式 LASG-REM 的耦合。

LASG-REM 中对云和降水的处理比较简单而得到了合理的降水预报, 然而这样的处理不能满足长距离输送模式中液相化学过程及清除过程的需要, 为此改进了 LASG-REM 中对云和降水过程的处理, 得到了更详细的云和降水的微物理信息和积云对物质的垂直输送通量, 从而为输送模式中液相过程提供了必需的条件。对 LASG-REM 中云雨过程的处理的改进包括两个方面, 一是对大尺度降水引入了水汽、云水和雨水的预报方程; 二是设计了一个较复杂的积云参数化方案, 方案用参数化方法表示了积云上升和下沉引起的空气质量通量。

积云对大气层结和降水有着重要的影响。在污染气象的研究中, 积云的另一作用也不可忽视。积云对流中, 上升气流和下沉气流质量通量比大尺度的质量通量大得多, 造成上层空气与下层空气强烈交换, 因此, 在污染物输送模式中考虑积云的这种作用是很必要的。然而在中尺度模式中, 同时详细地描述积云降水、云内垂直气流、积云外诱发运动及积云对中尺度过程的影响等一些现象, 无论现在和将来都是比较困难的事情。所以, 用参数化方法来描述积云上升气柱中净质量通量则是一个有效的解决办法。

积云内云底到云顶各高度上质量通量 M_{CV} 随高度的变化则由下式求出:

$$\frac{dM_{CV}}{dP} = E_U - D_U, \quad (1)$$

其中, E_U 为上升气流卷入量, D_U 为上升气流夹出量, 而 E_U 和 D_U 都由两部分组成, 即与大尺度相联系的动力部分和在云周围湍流交换的湍流部分:

$$E_U = E_U^{(1)} + E_U^{(2)}, \quad (2)$$

$$D_U = D_U^{(1)} + D_U^{(2)}. \quad (3)$$

湍流卷入和夹出表示如下:

$$E_U^{(1)} = \varepsilon_U \cdot M_U,$$

(4)

$$D_U^{(1)} = \delta_U \cdot M_U,$$

(5)

式中 ε_U 和 δ_U 为两个常数, $\varepsilon_U = \delta_U = 0.001 \text{ hPa}^{-1}$ [18]。在积云中下部, 即最大上升速度以下, 大气一般是辐合的, 辐合量 $-\frac{\bar{\rho}}{q} \nabla \bar{V} q > 0$, 即

$$E_U^{(2)} = \frac{A \cdot \bar{\rho}}{q} \nabla \bar{V} q,$$

(6)

$$D_U^{(2)} = 0.$$

(7)

在积云中上部, 大气一般是辐散的, 辐合量 $-\frac{\bar{\rho}}{q} \nabla \bar{V} q < 0$, 即

$$E_U^{(2)} = 0,$$

(8)

$$D_U^{(2)} = -\frac{A \cdot \bar{\rho}}{q} \nabla \bar{V} q,$$

(9)

A 为有对流发展网格的网格面积。

2.2 硫污染物的质量守恒方程

一个完整的欧拉型酸沉降模式要处理污染物的输送、扩散、化学转化及干、湿清除过程。污染物遵循的质量守恒方程为

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = -\nabla \cdot (C_i \bar{V}) + \nabla \cdot (K \cdot \nabla C_i) + S - D + P - Q,$$

(10)

式中, C_i 表示污染物 i 的浓度。上式右端第一项为平流项, 第二项为扩散项, 第三项为源, 第四项是干沉降项, 第五项是化学转化项, 包括气相化学、液相化学及非均相化学转化过程, 第六项为云和降水作用项, 包括污染物的湿清除及云和降水引起的污染物的再分布。

本模式以 LASG-REM 气象场模式为基础, 采用与气象场模式相同的水平网格分布, 浓度场与风场交错分布。LASG-REM 中垂直坐标为 η 坐标, 模式低层由于地形的差异而不连续, 这为讨论污染物在某些垂直层上的分布和输送造成了困难, 为了解决这一问题, 在长距离输送模式中选用了 σ 坐标为其垂直坐标形成, 其实这样做并不会带来太大困难, 只需要将 LASG-REM 得到的气象要素垂直插值到输送模式 σ 坐标层上即可, 而水平网格及变量的分布形式不变, 模式中按 σ 值不等距地分为 8 层, 模式最高层为第一层, 相应的气压值为 100 hPa, 模式各层对应的 σ 值如表 1。

表 1 输送模式垂直各层的 σ 值

垂直分层	1	2	3	4	5	6	7	8	地面
σ 值	0.0	0.2	0.4	0.6	0.78	0.89	0.96	0.99	1.0
高度	12000	7000	4500	2500	1200	700	300	30	0.0

目前在模式中仅把 SO_2 和 SO_4^{2-} 气溶胶作为输送物质, 研究其在东亚地区的输送、转化及清除机制, 所包含的主要物理机制有: 污染源, 平流扩散, SO_2 的气相化学转化和液相化学转化, SO_2 和 SO_4^{2-} 的干沉降和湿清除 (云内和云下清除), SO_2 在气溶胶表面的氧化, 积云对 SO_2 和 SO_4^{2-} 的垂直输送。

3 硫沉降模式中的物理和化学过程

3.1 干沉降

干沉降过程是影响污染物浓度时空分布和长距离输送的重要过程, 越来越多的污染物质量和传输模式考虑了干沉降的作用。一些污染物输送和沉降模式中, 假定各种污染物具有相同的干沉降速度, 而且干沉降速度不随大气条件和下垫面变化而取为常数。对气体和粒子干沉降速度的观测研究表明, 干沉降速度的大小随大气状态、污染物种类及下垫面类型的不同出现很大变化。为解释这种不同, 发展了一系列干沉降模型, 多数都以阻力模型为基础。其理论基础是假定污染物的干沉降速度与其在干沉降过程中受到的阻力成反比,

$$V_d = (r_a + r_b + r_s)^{-1}, \quad (11)$$

其中, $r_a + r_b$ 合称为大气阻力, 表示了大气状态对沉降物的作用, r_a 为空气动力学阻力, 主要由大气边界层内表面层以上湍流混合作用引起, r_b 称为附加边界层阻力 (副层阻力), 由表面层内的湍流混合和分子扩散共同作用引起, r_s 为表面阻力 (覆盖层阻力), 由沉降物及下垫面的化学、物理及生物特征共同决定。

我们对输送模式中干沉降模型的设计, 力求简洁而又包括主要的物理过程, 也选用了阻力模型。参照 RADM 中对干沉降的处理及 Voldner^[19]的工作, SO_2 气体和 SO_4^{2-} 气溶胶粒子干沉降过程中受到的阻力如下。

3.1.1 SO_2 气体干沉降过程中受到的阻力

$$r_a = \frac{\ln(Z/Z_0) - \psi_c}{\kappa u_*}, \quad (\text{陆地和冰冻地表}) \quad (12)$$

$$r_b = \frac{5Sc^{2/3}}{u_*}, \quad (\text{非雪面、非水体}) \quad (13)$$

$$r_a + r_b = \frac{\ln(\kappa u_* Z/D) - \psi_c}{\kappa u_*}, \quad (\text{水体}) \quad (14)$$

$$r_b = 2.0, \quad (\text{雪盖、冬季的草地和耕地}) \quad (15)$$

u_* 是摩擦速度, κ 为卡曼常数, Sc 为施米特数, D 为分子扩散率, ψ_c 为污染物稳定度相关函数, r_s 为常数, 其值随季节、昼夜和下垫面类型不同。

3.1.2 SO_4^{2-} 干沉降过程中受到的阻力

r_a 同 SO_2 的 r_a 。 r_b 为常数, 其值随季节、昼夜和下垫面类型不同, 见文献[19]。
 $r_s = 0$ 。

3.2 气相化学

气相化学在成酸过程中的作用十分重要, 有人估计, 大气中的 SO_2 有百分之几是

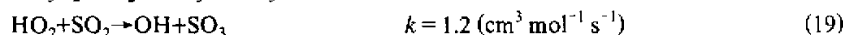
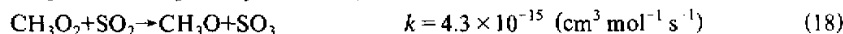
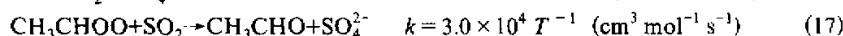
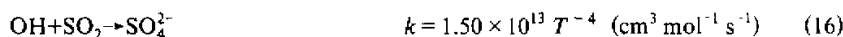
通过气相氧化过程而去除的, 同时, 许多在液相化学中起着重要作用的氧化剂, 如 H_2O_2 、 O_3 等都与气相化学过程密切相关。显然, 一个完整的酸沉降输送模式应该包括气相化学过程, 而且气相化学模式的好坏直接影响着液相化学过程。

何东阳等^[20]在 Atkinson^[21]模式 (CBM IV) 的基础上简化得到一个光化学反应模式, 该模式包含 28 个物种, 46 个化学方程。模式节省了计算工作量, 而模拟结果与 CBM IV 结果的对比表明, 该模式能够模拟出大气中主要的化学过程及物质的浓度变化。模式是为研究大气中 O_3 的变化而设计的, SO_2 并不是模式所关心的物质。我们在何东阳等^[20]工作的基础上加入了 SO_2 在大气中的主要氧化机制, 并对模式中光化学反应及对光强的依赖性做了更明确的描述, 建立了一个新的气相化学机制用以研究大气中 SO_2 的气相氧化问题。该机制包括 52 个化学反应方程, 31 个物种。下列反应是对流层中 SO_2 气相氧化的主要机制。气相化学模式中主要物质的初始浓度如表 2。

表 2 气相化学模式中主要物质的初始浓度

 10^{-9}

物质名称	NO	NO_2	HNO_2	HNO_3	OH	HO_2	H_2O_2	O_3	CO
初始浓度	75.0	25.0	12.0	1.0×10^{-2}	0.407×10^{-6}	0.813×10^{-3}	1.0×10^{-8}	30.0	1961.0
物质名称	HCHO	RCHO	CH_3O_2	ALK	ETHEN	OLE	CH_3CHOO	SO_2	SO_4^{2-}
初始浓度	50.0	30.0	1.0×10^{-8}	400.0	50.0	100.0	1.0×10^{-8}	20.0	1.0×10^{-5}



3.3 液相化学及 SO_2 和 SO_4^{2-} 的湿清除

当有云水和雨水存在时发生的液相化学反应是 SO_2 转化成 SO_4^{2-} 的有效途径, 与之相伴的 SO_2 和 SO_4^{2-} 等污染物从大气中的去除过程称为湿清除。湿清除过程是 SO_2 气体和 SO_4^{2-} 气溶胶清除的重要机制。

云滴、雨滴吸收污染气体并发生液相化学反应, 这一过程包括溶解、离解和化学反应三个步骤。溶解过程和电离过程是可逆过程, 在一定的温度下达到平衡, 存在一个溶解平衡常数 H 或电离平衡常数 K 。不可逆化学反应是 SO_2 在液相中氧化成 SO_4^{2-} 的实现过程。 SO_2 的液相氧化包括 O_3 、 H_2O_2 和 O_2 的催化氧化。云水和雨水中的 H_2O_2 和 O_3 是比 O_2 重要得多的氧化剂, 而 H_2O_2 尤为重要, 虽然大气中 H_2O_2 的浓度很低, 平均只有 10^{-9} 左右, 但 H_2O_2 是高水溶性物质, 当达到平衡时, 液相中的 H_2O_2 浓度几乎比液相中 O_3 浓度高 6 个数量级。大量的研究表明, 在酸性条件下, H_2O_2 可迅速氧化水中的 S(IV) 生成 S(VI) , 此反应可在云内发生也可在雨滴下落过程中进行。模式中包括了 SO_2 在液相中被 H_2O_2 和 O_3 氧化的不可逆化学反应。有关化学反应及常数^[22]列于表 3。

污染气体和大气气溶胶的湿清除过程都可分为云内过程和云下过程, 两种过程分别洗脱大气中不同层次上的气体和气溶胶。对气体而言, 其湿清除过程是从云滴形成时开始的。云滴形成以后, 它们也吸收大气中的微量气体, 降水发生时, 这些微量气体被带

表 3 液相化学反应及其常数

化学反应方程	平衡 / 速度常数 (mol / L ⁻¹) ⁿ
$(\text{CO}_2)_g \rightleftharpoons (\text{CO}_2)_l$	$H_{\text{CO}_2} = 3.918 \times 10^2 \times \frac{1}{T} \exp \left[2423 \left(\frac{1}{298} - \frac{1}{T} \right) \right]$
$(\text{SO}_2)_g \rightleftharpoons (\text{SO}_2)_l$	$H_{\text{SO}_2} = 9.907 \times \frac{1}{T} \exp \left[3120 \left(\frac{1}{298} - \frac{1}{T} \right) \right]$
$(\text{H}_2\text{O}_2)_g \rightleftharpoons (\text{H}_2\text{O}_2)_l$	$H_{\text{H}_2\text{O}_2} = 1.256 \times 10^{-4} \times \frac{1}{T} \exp \left[6600 \left(\frac{1}{298} - \frac{1}{T} \right) \right]$
$(\text{O}_3)_g \rightleftharpoons (\text{O}_3)_l$	$H_{\text{O}_3} = 1.060 \times 10^3 \times \frac{1}{T} \exp \left[2560 \left(\frac{1}{298} - \frac{1}{T} \right) \right]$
$\text{H}_2\text{O} \rightleftharpoons \text{H}^+ + \text{OH}^-$	$K_{\text{H}_2\text{O}} = 1 \times 10^{-14} \times \frac{1}{T} \exp \left[6716 \left(\frac{1}{298} - \frac{1}{T} \right) \right]$
$\text{CO}_2 \rightleftharpoons \text{H}^+ + \text{HCO}_3^-$	$K_{\text{CO}_2} = 4.3 \times 10^{-7} \times \frac{1}{T} \exp \left[913 \left(\frac{1}{298} - \frac{1}{T} \right) \right]$
$\text{SO}_2 \rightleftharpoons \text{H}^+ + \text{HSO}_3^-$	$K_{\text{SO}_2} = 1.7 \times 10^{-2} \times \frac{1}{T} \exp \left[-2090 \left(\frac{1}{298} - \frac{1}{T} \right) \right]$
$\text{HSO}_3^- \rightleftharpoons \text{H}^+ + \text{SO}_3^{2-}$	$K_{\text{HSO}_3^-} = 6 \times 10^{-8} \times \frac{1}{T} \exp \left[-1120 \left(\frac{1}{298} - \frac{1}{T} \right) \right]$
$\text{O}_3 + \text{SO}_2 \xrightarrow{k_1} 2\text{H}^+ + \text{SO}_4^{2-}$	$K_1 = 5.9 \times 10^2$
$\text{O}_3 + \text{SO}_3^{2-} \xrightarrow{k_2} \text{SO}_4^{2-}$	$K_2 = 2.2 \times 10^9$
$\text{O}_3 + \text{HSO}_3^- \xrightarrow{k_3} \text{SO}_4^{2-} + \text{H}^+$	$K_3 = 3.1 \times 10^5$
$\text{H}_2\text{O}_2 + \text{HSO}_3^- + \text{H}^+ \xrightarrow{k_4} 2\text{H}^+ + \text{SO}_4^{2-}$	$K_4 = 7.3 \times 10^1$

到地面，这个过程叫做微量气体的雨冲刷湿清除。降水滴在下降过程中还将继续吸收云下的气体并把它们带到地面，这个过程为微量气体的水冲刷湿清除过程。由于气体的性质不同，其被清除的量及过程也不相同，如果被清除的气体不与云滴或雨滴内的其他物质发生化学反应或只发生快速平衡可逆反应，则问题比较简单，这种气体的清除量完全由它们在水中的溶解度决定。但是，在实际大气中有许多气体能与液滴中的其他物质发生相互作用，其清除过程也就复杂化了。就 SO₂ 气体的湿清除而言，不仅要考虑 SO₂ 溶入液滴中的质量传输，也要考虑在液滴中的溶解、电离和氧化反应。SO₂ 溶于水后一部分被氧化成 S(VI)，另一部分仍以 S(IV) 的形式存在于液滴中。这就是说 SO₂ 一部分是以 S(VI) 的形式被清除的，另一部分则以 S(IV) 的形式被清除。

气溶胶粒子 (SO₄²⁻) 的湿清除与气体有很大的不同，气溶胶粒子的湿清除效率与其粒径有关。大气中气溶胶粒子尺度跨度非常大，难于统一考虑，故在模式中分三段处理：爱根核 (0.001 μm ≤ r ≤ 0.1 μm)，大核 (0.1 μm < r < 1.0 μm) 和巨核 (1.0 μm < r ≤ 10.0 μm)。那么气溶胶粒子的质量守恒方程为

$$\frac{dM_1}{dt} = -M_b - M_{h1},$$

(20)

$$\frac{dM_2}{dt} = -M_{h2} - M_{p2},$$

(21)

$$\frac{dM_3}{dt} = -M_{h3} - M_{p3}, \quad (22)$$

M_1 、 M_2 和 M_3 分别表示爱根核、大核和巨核的浓度, M_b 为扩并下沉项, M_h 为核化作用项, M_p 为碰并作用项。假定云滴谱服从赫尔吉安-马逊分布, 雨滴谱服从 Marshall-Palmer 分布。半径小于 $0.1 \mu\text{m}$ 的爱根核段气溶胶粒子服从 Gamma 分布, 其谱表示为

$$N(r) = A r \exp(-40r), \quad (23)$$

$N(r)$ 表示半径为 r 的气溶胶粒子的数密度, A 为常数。大核和巨核谱段的谱分布假定为 Junge 分布, 谱表示为

$$N_i(r) = \frac{C_i}{r^3}, \quad (24)$$

$i=2, 3$ 分别表示大核和巨核。 C 为无量纲常数。

在以上的谱假定下, 可以求出方程(20)~(22)右端的具体表达式, 解方程得到由于湿清除引起的气溶胶浓度的变化。

3.4 非均相化学

尽管关于在气溶胶表面上发生的非均相反应对 NO_x 和 SO_2 的氧化的贡献也进行了一些研究, 但是, 由于实验方法, 颗粒物试样及模拟方法的不同, 所得的结论差别较大, 而且有些还是相互矛盾的。关于大气中气溶胶对 SO_2 转化成 SO_4^{2-} 的模式研究的工作还不多, 我们把气相化学反应、液相化学反应和气溶胶谱模型结合起来, 设计了一个气溶胶表面上 SO_2 氧化的非均相化学反应模型, 并把该模型引入长距离输送模式, 期望对气溶胶表面上的非均相反应增加一些认识。

模式设计的思路是这样的, 大气中可溶性气溶胶在一定的温度和湿度条件下, 发生潮解, 即在气溶胶表面形成一层薄薄的水层, 环境大气中的 SO_2 气体和氧化剂 O_3 、 H_2O_2 等通过气溶胶吸附和分子扩散作用进入水中形成溶液。在溶液中进行液相化学反应, 生成的 S(IV) 被吸附在气溶胶表面, 这样在潮解的气溶胶表面上不断地有 S(IV) 被氧化成 S(VI) 。气溶胶表面上吸附气态物质的量的多少与气溶胶的物理化学特性、其表面的潮湿程度及气相中的物质浓度有关。在气溶胶表面上单位时间内 S(VI) 生成量的多少则取决于液相反应的机制和速率。

气溶胶尺度分布也假定为前文中的三段谱即 Gamma-Junge 谱分布。求取各段气溶胶的平均半径分别为 r_1 , r_2 , r_3 。根据 Kohler 公式和气溶胶谱, 可得到一定温度、湿度和气溶胶浓度时单位体积大气中凝结在气溶胶表面上的液水总量, 进而结合气相化学和液相化学各模式而得到了描述无降水发生时气溶胶表面非均相化学反应模型。

联立以上各物理和化学模块即可建立完整的硫沉降模式。

4 硫沉降模式的检验

模式检验是建立模式的重要组成部分, 也是模式性能面临的挑战。目前, 虽然国内

外已建立了一些欧拉输送模式,然而,各模式尤其是时变模式(气象场为非平均场)并没有得到很好的检验,而是被认为是合理的。而这的确也是无可奈何的,一是因为缺少系统的大范围地面和高空污染物监测资料,二是模式结果给出的是空间平均、时间平均的污染物浓度分布,而监测浓度资料给出的是局地、瞬时的污染物浓度,或者是局地长时间(月、季或年)平均的污染物浓度。两者缺乏可比性。对多数模式,验证或检验也只能是定性或不全面的。就目前的一些模式给出的结果来看,较好的模式得到的地面浓度分布趋势可与实测比较一致,而就其浓度值来讲,模式结果比监测结果要小几倍,甚至一个量级。同样由于条件的限制,这里也只能给出模式定性的检验。

模式包括液相化学和云、雨的湿清除过程,为体现模式的整体性能,选取了模式区域有降水的 2 个天气实例,所选个例为 1992 年 6 月 13 日 08 时~6 月 14 日 08 时和 1993 年 7 月 2 日 08 时~7 月 3 日 08 时。污染源资料取自国家环保局发布的 1990 年工业废气排放资料。模式分别模拟了 24 h,得到了 SO_2 日均近地面浓度分布和降水中的 SO_4^{2-} 浓度分布。

4.1 SO_2 近地面浓度分布

图 1 和图 2 给出了两个个例 SO_2 的日均近地面浓度分布,单位是 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 。由图

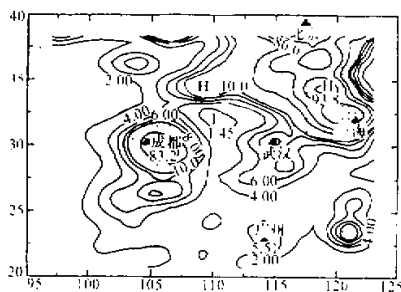


图 1 1992 年 6 月 13 日~14 日 SO_2 日均近地面浓度分布 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

图中浅阴影区表示浓度大于 $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 的区域,深阴影区为浓度大于 $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 的区域

可见,不同天气条件下, SO_2 的浓度分布不同。然而,从其分布的趋势上,可以看出,对两个例都存在两个明显的大值中心,一个在上海一带,另一个在四川盆地,三个次大值中心,分别为台湾、广州和西安一带。这和污染源的分布一致。

图 3 给出了黄美元等^[9]用实用型欧拉模式在相同源条件下,计算得到的 7 月份平均的近地面 SO_2 浓度分布。比较本模式与图 3 的结果可见,本模式的计算结果与实用型模式的结果分布趋势是一致的。在数值上本模式的计算结果较实用模式为大,原因在于实用模式计算的是月平均,在时间上的平均可使浓度变小。图 4 给出的是 1993 年全国

SO_2 年日均浓度分布。本模式的结果与该图的分布也较一致,只是数值偏小,这是由于模式的结果是格点内的三维平均。

4.2 降水中的 SO_4^{2-} 的浓度

对于 SO_4^{2-} 来说,由于降水的尺度较大,其对 SO_4^{2-} 的冲刷作用就观测值来讲,在较大区域内已做了平滑。因此,比较降水中的 SO_4^{2-} 的浓度,也是对模式较好的检验。图 5 和图 6 给出了两个个例降水中的 SO_4^{2-} 的浓度分布。图 5 中最大 SO_4^{2-} 浓度为 14.5 mg/L ,图 6 中最大 SO_4^{2-} 浓度为 5.38 mg/L , SO_4^{2-} 的浓度范围在 $1.0 \sim 15 \text{ mg/L}$ 。图 7 为中国和日本 1992 年 7 月份降水中 SO_4^{2-} 浓度的观测结果。由图可见,降水中实测的 SO_4^{2-} 浓度一般为 $0.5 \sim 20 \text{ mg/L}$ 。这里模拟的结果与观测结果在数值上也取得了比

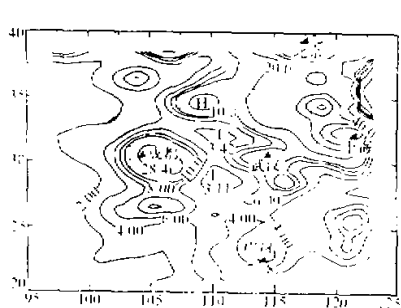


图2 1993年7月2日~3日SO₂日均近地面浓度分布(µg/m³)
图中浅阴影区表示浓度大于10 µg/m³的区域,深阴影区为浓度大于40 µg/m³的区域

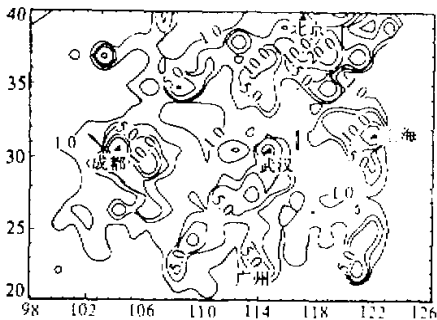


图3 实用型欧拉模式计算得到的7月份SO₂日均近地面浓度分布(µg/m³)

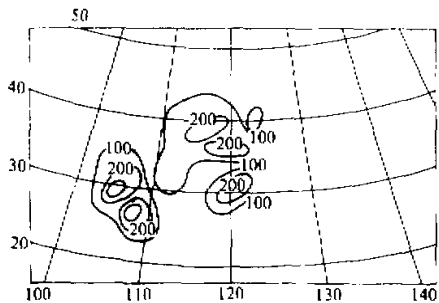


图4 1993年全国SO₂年日均浓度分布(µg/m³)

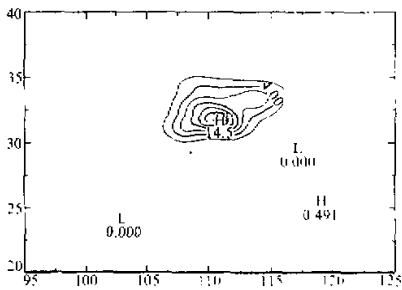


图5 1992年6月13日~14日模式计算降水中的SO₄²⁻浓度分布(mg/L)

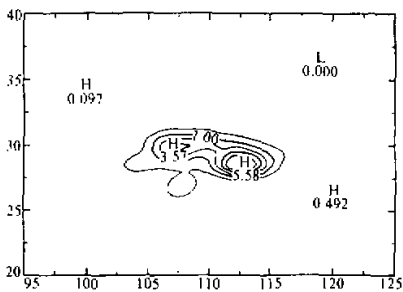


图6 1993年7月2日~3日模式计算降水中的SO₄²⁻浓度分布(mg/L)

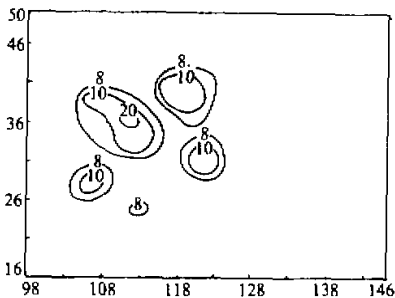


图7 1992年7月中国和日本降水中的SO₄²⁻浓度观测值(mg/L)

较好的一致。

4.3 SO₂浓度垂直分布

SO₂日均近地面浓度和降水中SO₄²⁻的浓度对比检验,说明了模式对污染物分布近

地面特征的模拟能力,垂直廓线对比验证则可揭示模式对污染物空间分布三维特征的模拟能力。“八五”期间,酸雨课题组曾在我国南方和东部地区进行了 SO_2 浓度的飞机航测,在飞机起降过程中得到了个别城市的 SO_2 浓度垂直分布,图 8 和图 9 给出了上海、青岛城市地区 SO_2 浓度垂直分布的观测值和相同时刻的模式计算结果。

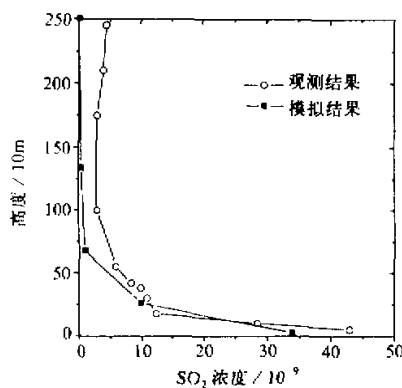


图 8 1993 年 5 月 25 日下午上海地区的 SO_2 垂直分布

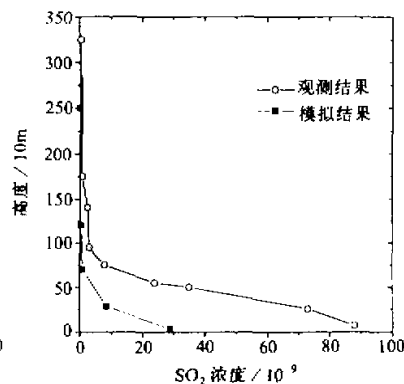


图 9 1993 年 5 月 26 日上午青岛地区的 SO_2 垂直分布

由图可见,上海和青岛地区的浓度垂直分布与观测结果的分布趋势都比较一致, SO_2 浓度由低层到高层呈指数递减, 500~1000 m 之间 SO_2 浓度的变化出现一个转折点。但就其值大小而言,模式结果比观测值偏小,这是由于模式结果代表了较大水平范围内的平均结果,而观测值则代表了较小区域的垂直分布状况。

以上从几个方面对模式进行了对比验证,虽然说验证还比较粗略,但就其总体上来看,模式能够给出 SO_2 、 SO_4^{2-} 浓度水平分布及垂直分布的特点,与观测结果也取得了比较好的一致。长期系统的观测资料将对模式作出进一步的检验。

5 结论和讨论

本文以 LASG-REM 数值预报模式的预报结果作为气象场,耦合硫沉降过程中比较详细的物理和化学过程,建立了一个三维欧拉型硫沉降模式。模式中包括了平流、扩散、干湿沉降和积云的垂直输送作用等物理过程,气相化学、液相化学和气溶胶表面的非均相化学等化学过程。选用两个天气实例,模式计算了 SO_2 的日均近地面浓度分布和降水中 SO_4^{2-} 的分布,与实测和其他模式的对比表明,本模式能够较好地模拟出 SO_2 和 SO_4^{2-} 浓度的分布及其特点。模式计算的 SO_2 浓度的垂直分布与观测也取得了比较好的一致。

非均相化学过程和积云对污染物的垂直输送作用的引入是本模式不同于其他模式的主要特点。这两种过程的引入对污染物的分布和输送都有较大的影响,将在以后文章中

给予详细讨论。

致谢: 本文得到字如聪博士和余方群硕士的热情帮助, 特此致谢。

参 考 文 献

- 1 Hegg, D. A. and P. V. Hobbs and L. F. Radke, 1984, Measurements of the scavenging of sulfate and nitrate in clouds, *Atmos. Environ.*, **18**, 1939~1946.
- 2 黄美元等, 1988, 重庆地区云水和雨水酸度及其化学组分的观测分析, *大气科学*, **12**, 389~395.
- 3 Chang, J. S., R. A. Brost, I. S. A., Isaksen, S. Madronich, P. Middleton, W. R. Stockwell and C. J. Walcek, 1987, A three-dimensional Eulerian acid deposition model: physical concepts and formulation, *J. Geophys. Res.*, **92**, 14682~14700.
- 4 Carmichael, G. R. and L. K. Peters, 1984a, An Eulerian transport/transformation/removal model for SO₂ and sulfate, I: model development, *Atmos. Environ.*, **18**, 937~951.
- 5 Venkatram, A., Karamchandani, P. K. and Misra, P. K., 1988, Testing a comprehensive acid deposition model, *Atmos. Environ.*, **22**, 737~747.
- 6 秦瑜等, 1992, 一个欧拉型污染物沉降的中尺度模式, *北京大学学报*, **28**, 30~41.
- 7 雷孝恩等, 1993, 一个高分辨对流层物质交换模式, *气象学报*, **51**, 75~86.
- 8 贾新媛, 1993, 区域酸沉降模式, *大气科学*, **17**, 732~740.
- 9 Huang Meiyuan et al., 1995, Modeling studies of sulfur deposition and transport in east Asia, *Water Air and Soil Pollution*, **85**, 1921~1926.
- 10 Luria, M. and Sievering, H., 1991, Heterogeneous and homogeneous oxidation of SO₂ in the remote marine atmosphere, *Atmos. Environ.*, **25**, 1489~1496.
- 11 Zhang Yang et al., 1994, Photochemical oxidant processes in the presence of dust: An evaluation of the impact of dust on particulate nitrate and ozone formation, *J. Appl. Meteorol.*, **33**, 813~824.
- 12 Dickerson, R. R. et al., 1987, Thunderstorm: An important mechanism in the transport of air pollutants, *Science*, **235**, 460~465.
- 13 Pickering, K. E. et al., 1991, Photochemical ozone production in tropical squall line convection during NASA Global Troposphere Experiment/Amazon Boundary Layer Experiment 2A, *J. Geophys. Res.*, **96**, 3099~3144.
- 14 Scala, J. R. et al., 1990, Cloud draft structure and trace gas transport, *J. Geophys. Res.*, **95**, 17015~17030.
- 15 字如聪, 1989, 陡峭地形有限区域数值预报模式设计, *大气科学*, **13**, 139~149.
- 16 Blackadar, A. K., 1979, High resolution models of the planetary boundary layer, in: *Advance in Environmental and Science Engineering, Vol. 1*, (Ed. by J. R. Pfafflin and E. N. Ziegler), Gordon and Breach, New York, 50~85.
- 17 Zhang, D. L. and R. A. Anthes, 1982, A high-resolution model of the planetary boundary layer sensitivity tests and comparisons with SESAME-79 data, *J. Appl. Met.*, **21**, 1594~1609.
- 18 Tiedtke, K., 1989, A comprehensive mass flux scheme for cumulus parameterization in large-scale models, *Mon. Wea. Rev.*, **117**, 1779~1800.
- 19 Voldner, E. C. et al., 1986, A literature review of dry deposition of oxides of sulfur and nitrogen with emphasis on long-range transport modeling in north America, *Atmos. Environ.*, **20**, 2101~2123.
- 20 何东阳等, 1992, 一个适用于对流层光化学模拟的大气化学模式, *环境科学学报*, **12**, 182~192.
- 21 Atkinson, R., Lloyd, A. C. and Wings, L., 1982, An updated chemical mechanism for hydrocarbons/NO_x/SO₂ photo-oxidation suitable for inclusion in atmospheric simulation model, *Atmos. Environ.*, **16**, 1341~1355.
- 22 雷恒池、黄美元, 1992, 对流云中酸化的数值模拟, I. 模式建立和初步结果, *环境科学学报*, **12**, 415~426.

A Study of Eulerian Regional Sulfur Deposition Model

Gao Huiwang, Huang Meiyuan, Xu Huaying and Zhou Ling

(Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029)

Abstract A three-dimensional sulfur deposition model is developed. In this model detailed physical and chemical processes, such as transport, diffusion, dry and wet deposition, transportation in cumulus cloud, gas phase chemistry, aqueous phase chemistry and heterogeneous aerosol chemistry are considered. The main characteristics of our model is the adoption of heterogeneous aerosol chemical process and transportation of pollutants in cumulus cloud. The model is evaluated against observations and results of other models. Model performs well in explaining distribution of SO_2 in the surface, concentrations of SO_4^{2-} in rain water and vertical profiles of SO_2 .

Key words sulfur deposition Eulerian model dry and wet deposition physical process
chemical process