

# 大气酸沉降的自组织临界性

朱建林<sup>1,2</sup> 曾光明<sup>2</sup> 赵星<sup>2</sup> 黄国和<sup>2</sup> 蒋益民<sup>2</sup>

1 宁波大学建筑工程与环境学院, 宁波 315211

2 湖南大学环境科学与工程学院, 长沙 410082

**摘要** 运用概率分布函数、矩分析、功率谱分析和无趋势波动分析 (DFA) 方法, 分析了美国 1978~2001 年期间酸沉降数据, 发现大气酸沉降事件类似于沙堆模型中的崩塌事件, 具有自组织临界性 (SOC)。降水中氢离子沉降量 (WHD) 的频率分布符合双幂律分布, 即在由临界 WHD 所区分的两个区间内, WHD 的频率分布分别呈幂律分布; 双幂律分布及临界 WHD 刻画了酸沉降事件的宏观特征。WHD 时间序列具有  $1/f^\beta$  噪声特征, 在时域上具有长程相关性 (LRC)。降水中硝酸根离子和硫酸根离子沉降量与 WHD 表现为类似行为。此外, 将正常降水的酸度值或环境容量作为大气酸沉降的临界状态, 并以此类比为沙堆模型的临界稳态角度。因此, 酸沉降的演化符合具有自组织临界性的复杂系统的三个基本特征。据此, 作者认为酸沉降在频域上的幂律分布及在时域上的长程相关性是污染胁迫下大气自组织临界行为的标志, 自组织临界行为是控制酸沉降演化趋势的内在机制之一。

**关键词** 酸沉降 无趋势波动分析 功率谱分析 分形 幂律 自组织临界性

**文章编号** 1006-9895 (2007) 04-0708-09 **中图分类号** P401 **文献标识码** A

## Self-organized Criticality of Atmospheric Acid Deposition

ZHU Jian-Lin<sup>1, 2</sup>, ZENG Guang-Ming<sup>2</sup>, ZHAO Xing<sup>2</sup>, HUANG Guo-He<sup>2</sup>, and JIANG Yi-Min<sup>2</sup>

1 Faculty of Architectural, Civil Engineering & Environment, Ningbo University, Ningbo 315211

2 College of Environmental Science and Engineering, Hunan University, Changsha 410082

**Abstract** With empirical probability distribution function, moment, power spectrum and detrended fluctuation analysis (DFA), the data of National Atmospheric Deposition Program, USA, are analyzed to investigate the characteristics of self-organized criticality (SOC) of atmospheric acid deposition. It is shown that acid deposition events are analogous to many other relaxational processes in nature such as earthquakes and avalanches of granular piles, suggesting the existence of SOC in acid deposition. Under a wide variety of circumstances, frequency distributions of weekly hydrogen deposition (WHD) of precipitation are consistent with double power-law in two different regimes separated by a characteristic crossover WHD. The double power-law scaling of acid deposition together with its characteristic size scales characterizes the macroscopic properties of the size of avalanches of acid deposition in various atmospheric conditions. WHD series can be depicted as  $1/f^\beta$  noise with long-range correlations (LRC), implying that persistence of acid deposition may be one of the important factors inducing ecological changes of nature, and should be considered in the trend prediction of acid deposition evolutions. DFA shows that the scaling exponent for small time scale ranges from 0.64 to 0.76 ( $>0.5$ ), indicating LRC in temporal evolutions of acid deposition. However, the scaling exponent  $<0.5$  for low temporal resolution, indicating that LRC does not hold for large time scale. The switch in the WHD series reflects the different characteristics of correlation structure of WHD fluctua-

**收稿日期** 2006-02-14 收到, 2006-05-26 收到修改稿

**资助项目** 国家杰出青年科学基金 50225926、国家自然科学基金资助项目 70171055、50179011、高等学校博士学科点专项科研基金 20020532017, 国家 863 项目 2001AA644020、2003AA644010

**作者简介** 朱建林, 男, 1963 年出生, 博士生, 教授, 从事环境工程及复杂性研究。E-mail: jlzhu@yahoo.com.

tions for different temporal scales. Nitrate and sulphate depositions fluctuations in precipitation behave similarly to WHD. It is argued that the critical state of atmospheric acid deposition refers to the normal acidity of water in atmosphere, or the environmental capacity, which is analogous to the critical angle of repose in a sandpile model. It is believed, therefore, that acid deposition evolution is consistent with the three criteria of complex SOC systems, and that acid deposition events, with pollutants being continuously stored in the atmosphere and then suddenly released by bursts when the vapor condenses to water drops, do not look very different from avalanches from the point of view of SOC. It is thus suggested that SOC may be a possible mechanism for acid deposition evolution. The frequency-size power-law scaling and the temporal long-range correlations in acid deposition dynamics are considered to be indicators of SOC behavior of atmosphere under environmental pollution stress. The changes of crossover and the variations of power-law slopes of WHD may prove the influence of organization principles which refers to the differences of regional environmental characteristics of the system on the phenomenon of SOC.

**Key words** acid deposition, detrended fluctuation analysis, power spectrum analysis, fractal, power-law, self-organized criticality

## 1 引言

自组织临界性 (SOC, self-organized criticality) 是 Bak 等<sup>[1]</sup>提出的, 用以描述非平衡复杂系统的临界性、相关性和尺度不变性 (分形) 所产生的内在机制。这些系统的基本特征是, 能量连续而缓慢地注入系统并通过离散的“暴发”事件而耗散。SOC 试图解释自然界广泛存在的分形现象, 并被认为是很多复杂系统所表现的  $1/f^\beta$  噪声和频率分形分布的产生机制, 如地震、滑坡、森林火灾等<sup>[1~5]</sup>。基于不同的物理系统所作的大量研究表明, 具有多自由度的开放、耗散、非线性系统, 在其宏观时空演化过程中通过分形方式趋向于临界自组织状态; 组成系统的各单元之间通过局部相互作用而相关, 这种相关性扩展到整个系统并导致幂律分布<sup>[4,5]</sup>。通过某些刻画系统特征的非常简单的模型 (如细胞自动机模型<sup>[6]</sup>), 这些系统均可出现时域和频域上的幂律或分形特征; 在时域上表现为  $1/f^\beta$  噪声, 在频域上表现为幂律分布且具有尺度不变性<sup>[1~5]</sup>。因此, 如果一个系统具有以下三个特征, 即: (a) 趋向于近临界稳定态, (b) 事件大小分布是尺度不变的, (c) 时域上表现为  $1/f^\beta$  噪声 (粉红噪声、闪烁噪声) 并具有长程相关性, 那么便可认为该系统具有自组织临界性, 临界自组织行为便可能是该系统演化的内在机制<sup>[7]</sup>。为获取系统自组织行为的相关信息, 通常可采用三种标准的统计方法, 即功率谱法、概率分布函数法和矩分析法<sup>[7~9]</sup>。

近年来, 非平稳复杂大系统的研究受到了广泛

关注, 并且在自然界及社会现象中发现的众多的频率分布尺度不变性和长程相关性均与 SOC 有关。表现出 SOC 的现象包括地震<sup>[1, 2]</sup>、森林火灾<sup>[3]</sup>、气候<sup>[10]</sup>、大气湍流<sup>[11]</sup>及降水<sup>[8, 9, 12~14]</sup>等。这些看起来互不相关的自然现象在复杂性特征上表现出惊人的相似性, 即都可在 SOC 的概念框架内得到解释<sup>[1~14]</sup>。

大气降水及与其相关的云系、迳流及土壤湿度的 SOC 特性近来得到广泛研究。研究表明, 降水量及其他水文变量均表现出 SOC 行为<sup>[8~9, 12~14]</sup>。Peters 等<sup>[9]</sup>认为, 降水类似于自然界中很多能量释放过程 (如地震和崩塌等), 并认为 SOC 是降水发生与演化的内在机制。Aegerter<sup>[6]</sup>发现, 降水事件完全可以用沙堆模型来模拟。这些研究注重于降水事件本身的非线性物理动态, 为探讨降水发生和演化机制提供了全新的思路, 但均未涉及降水化学特征 (诸如酸度等) 的 SOC 问题。

酸沉降 (酸雨) 是全球范围内人类社会普遍面临的重大环境问题之一, 因其对生态环境及社会经济的可持续发展构成严重威胁而受到普遍关注。多年来, 环境学界基于大气化学、大气物理等方法提出了众多理论和模型, 用以研究、模拟和预测酸沉降形成与演化动态<sup>[15~19]</sup>。这些模型大致可分为两种类型: 其一是 Eulerian 型模型, 如 STEM、RADM 和 EMEP 等, 其特点是综合考察大气系统中复杂的多相传输、化学及沉降过程来详细模拟各种大气过程, 适合于模拟短时酸沉降过程; 其二是 Lagrangian 型模型, 如 ATMOS、CRIEPI、CAL-PUFF、FRAME、RAINS-ASIA 等, 其特点是运用

简化的一步或两步化学反应来模拟硫氧化物和氮氧化物转化为硫酸和硝酸等化学过程,主要用于模拟酸沉降的长期行为<sup>[15~17]</sup>。这些模型试图通过尽可能多地研究每一种化学成分的性质以及成分之间的化学反应机制和物理传输机制而实施酸沉降动态模拟和预测,其所涉及的大气化学成分(物种)多达数十种,涉及的化学反应方程数百个<sup>[15~17]</sup>。尽管这些模型所基于的理论及其功能有较大差异,但所暗含的基本假设都是:只要知道了所有影响因子及其作用机制,就可以对酸沉降作出确定性预测。因此,所涉及的物种众多、方程繁杂,相应的监测分析、数据计算、参数估计等工作量巨大。然而,由于影响因素的复杂性,人们对酸沉降时空演化的动态过程并没有得到满意的解释<sup>[15~18]</sup>。研究表明,降水酸度与导致环境质量变化的众多因素有关,诸如污染物排放、气象条件等,表现为不规则、非线性变化并具有时空依赖性<sup>[17~20]</sup>。从复杂性理论来看,酸沉降作为开放、耗散的大气系统在人为污染作用下的复杂现象,其形成与演化所表现的是宏观、整体的行为。关于对其构成影响的所有单个因素及其作用机制的充分认识,并不一定能有效地把握其整体的格局与过程,而从复杂系统角度探讨酸沉降现象,有可能加深对酸沉降机制、格局与过程的认识。因此,本文将酸沉降现象理解为开放、耗散的大气系统在人为污染胁迫下的复杂行为,采用概率分布函数分析、矩分析、功率谱分析及无趋势波动分析等方法进行研究,发现酸沉降表现为事件频率幂律分布及  $1/f^\beta$  噪声,与地震、沙堆崩塌、森林火灾等自然现象具有相似规律。此外,我们认为正常降水的酸度或环境容量可作为降水酸度临界值。因此,酸沉降事件满足 SOC 系统的主要特征, SOC 可能是酸沉降形成与演化的内在机制之一。

## 2 数据

本文所引数据来源于美国国家酸沉降项目(NADP, <http://nadp.sws.uiuc.edu/>) 数据库<sup>①</sup>。该数据库包含 1978 年至今的所有测站每周降水的降水量、pH 值以及相关的  $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{Cl}^-$ 、

$\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ 、 $\text{K}^+$ 、 $\text{Na}^+$ 、 $\text{NH}_4^+$  等离子的浓度。降水中  $\text{H}^+$  的浓度是降水中各种离子相互作用并共同对降水酸度产生影响的综合反映,因此本文采用  $\text{H}^+$  浓度进行分析。我们利用其中 184 个监测持续时间  $T \geq 500$  (周) 的测站的降水 pH 值序列  $h(i, j)$  及降水量序列  $v(i, j)$  作为研究数据。其中  $i$  为测站序号,  $i=1, 2, \dots, N$ ,  $N$  为测站数且  $N=184$ ;  $j$  为时间(周), 且  $j=1, 2, \dots, T$ 。为检验酸沉降的 SOC 行为,我们将 pH 值及降水量数据转换为每周氢离子沉降量(WHD, weekly hydrogen ion deposition)<sup>[18]</sup>:

$$x(i, j) = 10^{6-h(i, j)} v(i, j),$$

$$i = 1, 2, \dots, N; j = 1, 2, \dots, T \quad (1)$$

式中,  $x(i, j)$  为测站  $i$  在时间  $j$  的 WHD (单位:  $\text{mol}/\text{km}^2$ ), 且 WHD 定义为  $1 \text{ km}^2$  面积上每周氢离子沉降量;  $v(i, j)$  为周降水量(单位:  $\text{mm}$ );  $h(i, j)$  为降水的 pH 值。

此外,为考察降水中  $\text{NO}_3^-$  以及  $\text{SO}_4^{2-}$  沉降量的变化,我们以  $\text{NO}_3^-$  及  $\text{SO}_4^{2-}$  沉降量进行了相同计算。每周每平方公里的  $\text{NO}_3^-$  及  $\text{SO}_4^{2-}$  离子沉降量数据 ( $\text{kg}/\text{km}^2$ ) 以下式得出:

$$x(i, j) = c(i, j) v(i, j),$$

$$i = 1, 2, \dots, N; j = 1, 2, \dots, T \quad (2)$$

式中,  $c(i, j)$  为  $\text{NO}_3^-$  或  $\text{SO}_4^{2-}$  浓度 ( $\text{mg}/\text{L}$ )。

## 3 方法

### 3.1 频率幂律分布

频率的幂律分布是 SOC 行为最显著的标志之一,通常描述为事件发生的频率随事件大小而呈幂指数下降。事件的累积概率分布函数由式(2)给出<sup>[2~5]</sup>:

$$P(x > X) \propto X^{-\gamma}, \quad (3)$$

式中,  $x$  为事件大小的某种测度(如本文中的 WHD),  $P(x > X)$  为大于某一阈值  $X$  的事件的累积概率分布函数,  $\gamma$  为标度指数。如果系统幂律分布成立,则在双对数图上,式(3)为一直线,指数  $\gamma$  则为由普通最小二乘法(OLS)所给出的直线的斜率。

指数  $\gamma$  可通过矩  $\mu_k$  进行检验:

① National Atmospheric Deposition Program (NRSP-3)/National Trends Network, NADP Program Office, Illinois State Water Survey, 2204 Griffith Drive, Champaign, IL 61820, 2002

$$\mu_k \equiv \langle |g|^k \rangle_T, \quad (4)$$

式中,  $g$  为标准化后的信号,  $\langle \dots \rangle_T$  为信号序列值的均值,  $k$  为矩的阶数。从式 (3) 可以推论, 阶数  $k$  等于或大于  $\gamma$  时,  $k$  阶矩将发散<sup>[7, 8]</sup>。

### 3.2 功率谱分析与无趋势波动分析

功率谱  $S(f)$  是时间序列分形研究的标准方法之一<sup>[7, 8]</sup>。若全部或部分区间内的功率谱服从幂律:

$$S(f) = f^{-\beta}, \quad (5)$$

式中,  $f$  为频率,  $\beta$  为标度指数, 则数据在此区间内具有标度性质。

具有长程相关性的 SOC 系统时间序列的傅里叶功率谱与频率  $f$  通常呈  $1/f^\beta$  性质, 即其功率谱随频率的增大而呈幂律减小, 且  $\beta$  值接近于 1。与此相对应, 随机“白噪声”序列的  $\beta$  值为 0, 而随机行走序列的  $\beta$  值为  $2^{[1, 7\sim 8]}$ 。本文采用快速傅里叶变换法 (FFT) 进行功率谱分析<sup>[11~14]</sup>。

功率谱分析假定时间序列是平稳的, 而这一假定对于大多数实测序列是难以满足的<sup>[11~14]</sup>。无趋势波动分析 (DFA, detrended fluctuation analysis) 法是近年提出来研究非平稳时间序列标度性质的有效方法, 其算法简述如下<sup>[21]</sup>。设  $\{x(t)\}$  ( $t=1, 2, \dots, T$ ) 为一长度为  $T$  的时间序列。首先, 对序列值作逐渐累加, 得累加序列  $Y(t)$ :

$$Y(t) = \sum_{i=1}^t (x(i) - \langle x \rangle_T), \quad i = 1, 2, \dots, t \leq T \quad (6)$$

式中,  $\langle x \rangle_T$  为序列  $\{x(t)\}$  的均值; 再将累加序列划分为时间长度为  $n$  的等间隔的  $\text{int}(T/n)$  个子区间; 对于长度为  $n$  的每一个子区间, 对其中的  $Y(t)$  拟合一条直线线段,  $Y_n(t) = at + b$ , 用以代表该子区间内的局部趋势, 其中  $a$  和  $b$  为由 OLS 所拟合的参数; 然后, 对每个子区间, 以  $Y(t)$  减去其局部趋势  $Y_n(t)$ ; 对于某一给定的区间长度  $n$ , 其数据波动的大小描述为

$$F(n) = \left[ \sum_{i=1}^{\text{int}(T/n)} (Y(i) - Y_n(i))^2 / T \right]^{1/2}. \quad (7)$$

对所有可能的时间尺度  $n$  重复以上过程, 则可得出  $F(n)$  与  $n$  的相互关系。典型情况下,  $F(n)$  与  $n$  呈如下标度行为:

$$F(n) \propto n^\alpha, \quad (8)$$

式中,  $\alpha$  为标度指数。在双对数图上, 如果  $\lg F(n)$  与  $\lg n$  呈现直线关系, 则表明存在标度行为, 即具

有尺度不变性: 小区间的波动与大区间的波动之间呈幂律上升关系。

DFA 的结果解释取决于  $\alpha$  值的大小。白噪声  $\alpha = 0.5$ , 而布朗运动  $\alpha = 1.5$ 。如果  $1.5 > \alpha > 0.5$ , 则序列为分形布朗运动, 且序列具有长程相关性 (LRC)。研究表明, 与功率谱法比较, DFA 法可以检测非稳定时间序列中内在的自相似性, 且功率谱法的  $\beta$  指数与 DFA 法的  $\alpha$  指数呈如下关系<sup>[21]</sup>:

$$\alpha = (1 + \beta) / 2. \quad (9)$$

因此, 可以通过式 (8) 对功率谱法与 DFA 法的结果进行比较。

## 4 结果

### 4.1 WHD 的频率幂律分布

图 1 显示了测站 FL41 的 WHD 的频率幂律分布。在双对数坐标上, WHD 的概率密度  $p(X)$  随其相应的尺度大小  $X$  而显示两个标度区间: 在较小的 WHD 区间内,  $p(X)$  呈幂律增加; 而在较大的 WHD 区间内,  $p(X)$  呈幂律减小; 在两区间交界处有一  $p(X)$  的峰值, 表明存在一临界 WHD, 即  $X_c$  (图 1a)。与此相应, 其累积概率  $P(x > X)$  同样表现出两个具有显著不同标度指数的区间 (图 1b), 表明 WHD 在两个区间内分别表现幂律行为。此外可以看到,  $X < X_c$  区间包含至少 4 个数量级且其标度指数很小 ( $\gamma_1 = 0.04$ ), 而  $X > X_c$  区间仅不到 1 个数量级且其标度指数大得多 ( $\gamma_2 = 1.04$ )。因此, 以累积概率  $P(x < X)$  而不是  $P(x > X)$  来显示 WHD 的幂律行为应更为合理。图 1c 显示了图 1a 中的  $P(x < X)$ , 在  $X < X_c$  区间同样可以看到鲁棒性很好的线性关系。矩分析 (图 1d) 表明, 当阶数  $k > \gamma_2$  时  $\mu_k$  迅速发散, 证实图 1b 中标度指数是可靠性的。

4 个典型测站 WHD 的频率分布均显示出良好的幂律特征 (图 2)。此外, 由于数据区间是按幂指数增长方式划分的, 在  $X > X_c$  区间仅有 2 个数据点 (图 2)。为更清楚地显示其幂律关系, 我们将每一序列划分为两部分: 一部分为  $x < X_c$  而另一部分为  $x > X_c$ , 然后分别计算其累积概率分布 (图 3)。由图 3 可见,  $x < X_c$  区间的  $P(x < X)$  (图 3a) 及  $x > X_c$  的  $P(x > X)$  (图 3b) 均表现出极为明显的幂律特征。

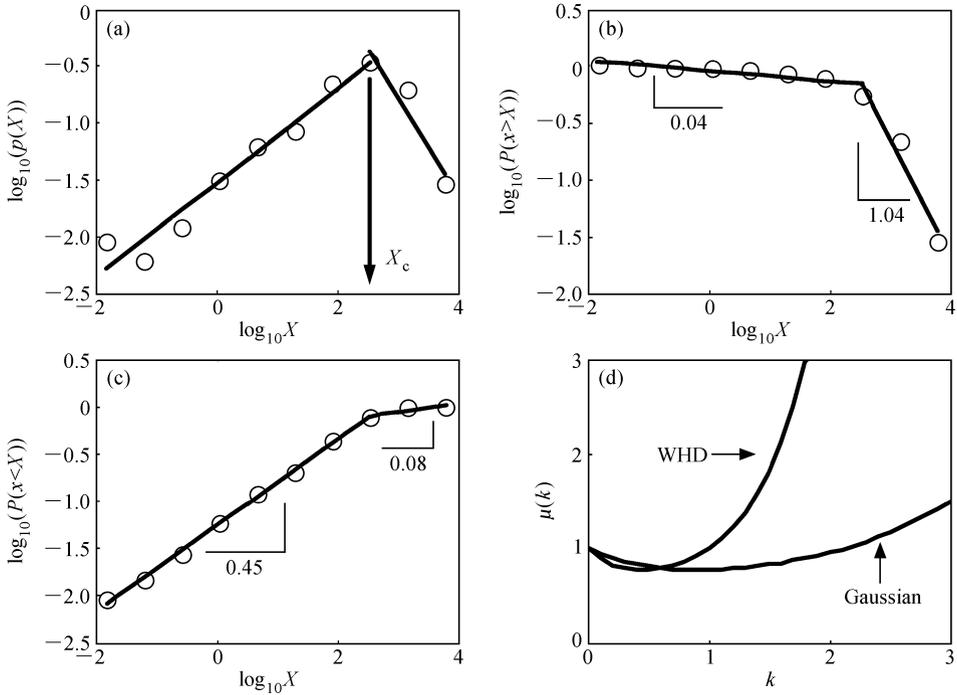


图1 测站FL41的WHD频率双幂律分布: (a) 非累积概率密度, 峰值所在横坐标为临界WHD  $X_c$ ; (b) 累积概率函数  $P(x>X)$  随  $X$  的变化, 左边部分  $\gamma_1=0.04$ , 右边部分  $\gamma_2=1.04$ ; (c) 累积概率函数  $P(x<X)$  随  $X$  的变化; (d) 标准化后 WHD 的矩  $\mu(k)$  随阶数的变化  
Fig. 1 Double power-law scaling of WHD for site FL41: (a) Non-cumulative histogram of WHD (The peak indicates  $X_c$ ); (b) cumulative probability function  $P(x>X)$  as a function of  $X$  (The left part  $\gamma_1=0.04$ , and the right part  $\gamma_2=1.04$ ); (c) cumulative probability function  $P(x<X)$  as a function of  $X$ ; (d) moment  $\mu(k)$  of normalized WHD compared with that of Gaussian noise as a function of orders  $k$

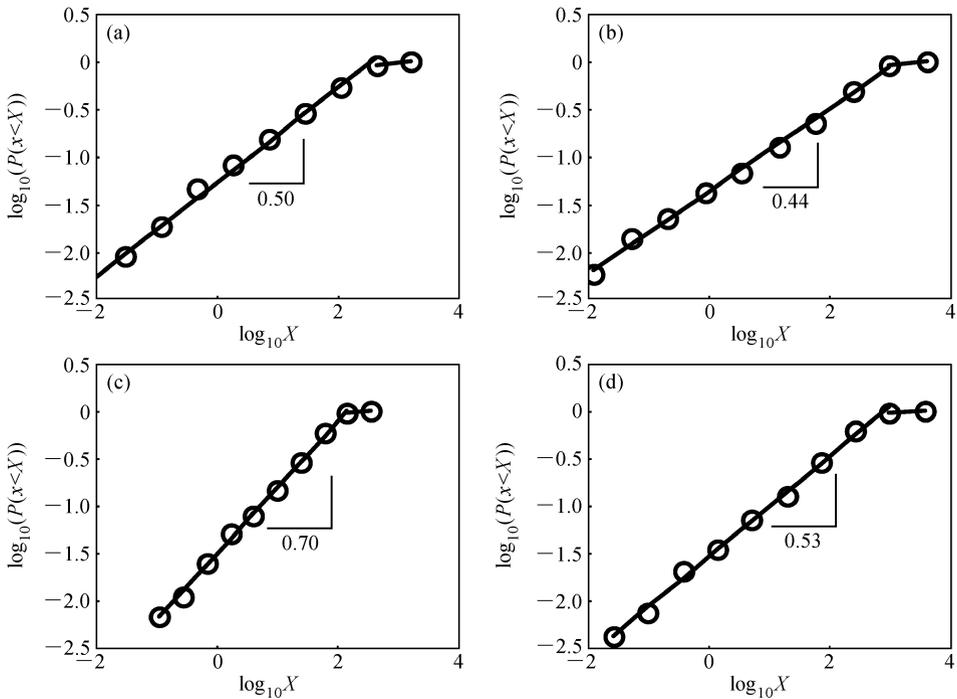


图2 四个测站 WHD 的累积概率函数  $P(x<X)$  随  $X$  的变化: (a) AR27; (b) MI26; (c) MT97; (d) TX10  
Fig. 2 Cumulative probability function  $P(x<X)$  of WHD as a function of  $X$  for four sites: (a) AR27; (b) MI26; (c) MT97; (d) TX10

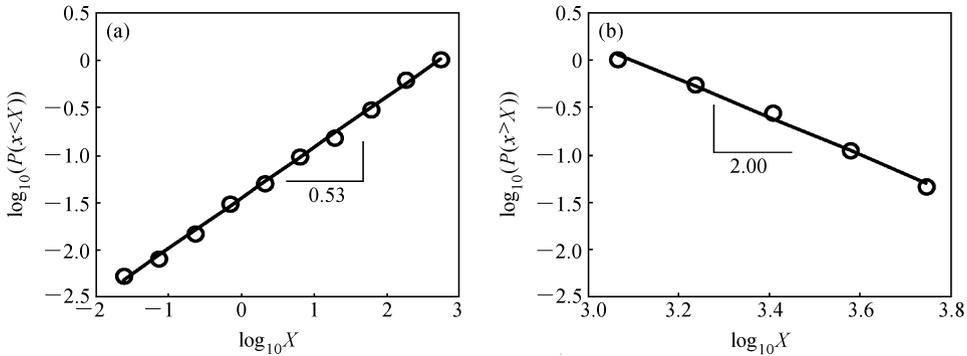


图3 测站TX10的WHD序列 ( $x < X_c$  及  $x > X_c$ ) 的累积概率分布函数: (a)  $x < X_c$ 部分的  $P(x < X)$ ; (b)  $x > X_c$ 部分的  $P(x > X)$

Fig. 3 Power-law scaling of cumulative frequency-size distribution of WHD for site TX10 (The WHD series is divided into two parts:  $x < X_c$  and  $x > X_c$ ). (a)  $P(x < X)$  for  $x < X_c$ ; (b)  $P(x > X)$  for  $x > X_c$

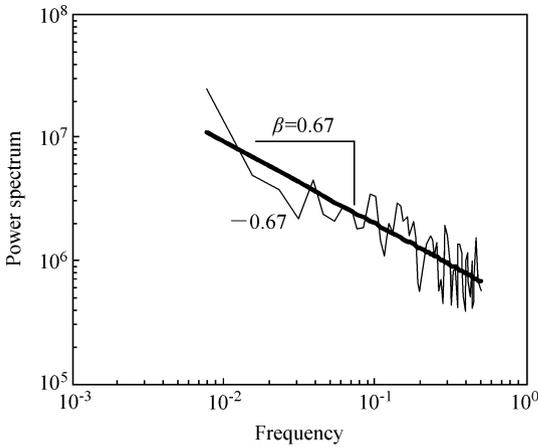


图4 MT97测站WHD的功率谱  $S(f)$  随频率  $f$  的变化。直线为  $S(f) = 1/f^\beta$

Fig. 4 Power spectrum  $S(f)$  of WHD for site MT97 as a function of frequency  $f$ . The solid line is  $S(f) = 1/f^\beta$

#### 4.2 WHD的功率谱分析与DFA分析

图4在双对数坐标上显示了MT97测站WHD的功率谱  $S(f)$  随频率  $f$  (单位: 周<sup>-1</sup>) 的变化。很明显,  $S(f)$  与  $f$  存在式(4)所示的幂律形式, 即  $S(f)$  随  $f$  增高而呈幂律下降; 其标度指数  $\beta = 0.67$ , 表明WHD具有  $1/f^\beta$  噪声特征并具有长程相关性。

图5显示了4个测站WHD的DFA分析结果, 表明  $F(n) \propto n^\alpha$  关系分别存在于由时间尺度临界值  $n_c$  所区分的两个标度区间, 即  $n < n_c$  区间及  $n > n_c$  区间, 其  $\alpha$  指分别为数  $\alpha_1$  和  $\alpha_2$ , 并且我们注意到  $n_c \approx 52$  (周)  $\approx 1$  (年)。指数  $\alpha_1 = 0.64 \sim 0.76 > 0.5$ , 表明当时间尺度小于1年时WHD序列具有长程相关性; 但  $\alpha_2 < 0.5$ , 表明当时间尺度大于1年时

WHD序列不存在长程相关性, 甚至存在反相关性 (anti-persistence)。因此, 不同时间尺度下WHD的波动具有不同的结构特征; 但在由时间尺度临界值  $n_c$  所区分的两个标度区间内部, 其波动分别具有尺度不变性。此外, 我们注意到  $\alpha_1$  和  $\alpha_2$  的值较式(8)给出的估计值要低。其可能原因是, 功率谱分析要求数据序列是平稳序列, 而WHD不是严格的平稳序列。

因为所有WHD序列DFA分析中均存在1年左右的时间尺度临界值  $n_c$ , 所以我们以时间尺度  $n < n_c$  及  $n > n_c$  两个区间分别估计  $\alpha$  值。区间一对应于1个月 (图6中第一点) 至1年, 区间二对应于1年至5年 (图6中最后一个点)。图6给出了所有测站DFA分析所得  $\alpha$  值的频率分布。所有  $\alpha_1$  均大于0.5,  $\alpha_1$  和  $\alpha_2$  的均值分别为0.68和0.45, 因此时间尺度小于1年时, WHD波动符合幂律且具有长程相关性。

#### 4.3 NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 和 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 沉降量频率分布与DFA分析

测站MT97的NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 和SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 沉降量频率分布与DFA分析结果见图7。由图7可见, 与WHD类似, NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 和SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 沉降量的累积概率  $P(x < X)$  同样表现出两个具有显著不同标度指数的区间 (图7a、b), 表明NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 和SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 沉降量在两个区间内分别表现幂律行为, 且各区间跨度可均达2~3个数量级; 其DFA分析表明 (图7c、d), NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 和SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 沉降量同样存在  $F(n) \propto n^\alpha$  关系, 且有约一年左右的临界时间尺度。因此NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 和SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 沉降量与WHD表现为类似行为。

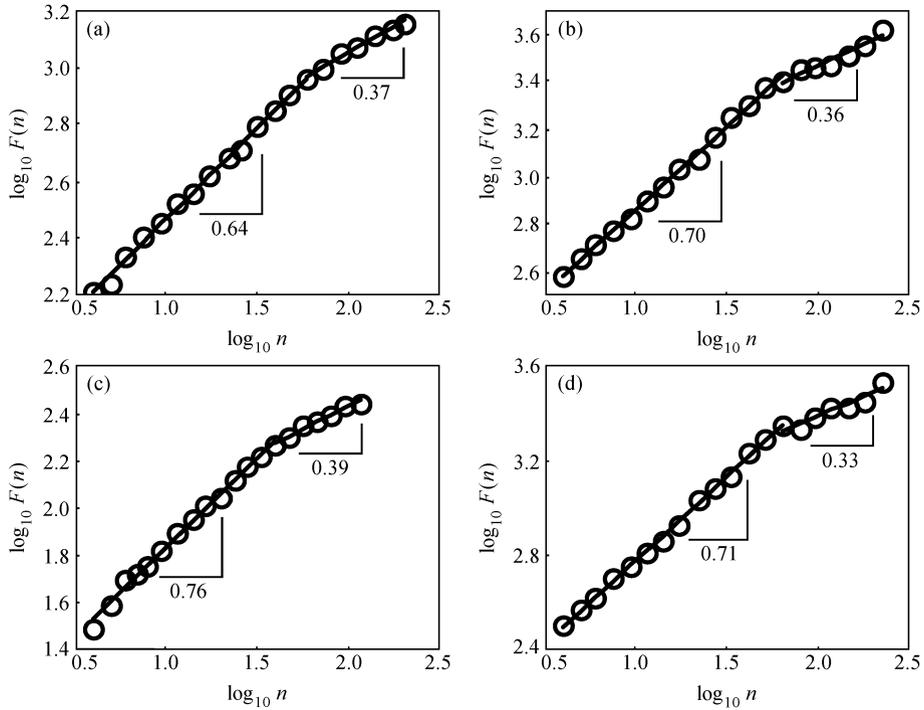


图 5 四个测站 WHD 的 DFA 分析结果, 显示  $F(n) \propto n^\alpha$  行为。图中数据为相应的  $\alpha$  值。左、右两部分标度指数分别为  $\alpha_1$  和  $\alpha_2$

Fig. 5 Composite of  $F(n) \propto n^\alpha$  scaling behaviors of WHD series for the four sites in double-log scale. The numbers are the corresponding  $\alpha$  values. The left part scales with exponent  $\alpha_1$  and the right part scales with exponent  $\alpha_2$

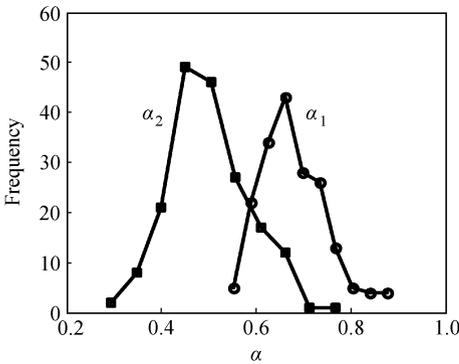


图 6 所有 184 个测站 WHD 的 DFA 分析结果  $\alpha$  值的频率分布。 $\alpha_1$  和  $\alpha_2$  的均值分别为 0.68 和 0.45

Fig. 6 Frequency distribution of  $\alpha$  values of DFA of WHD for all the 184 sites. The mean values of  $\alpha_1$  and  $\alpha_2$  are respectively 0.68 and 0.45

## 5 讨论

在引言部分已经提到, 如果系统 (a) 趋向于近临界稳定态, (b) 事件大小分布是尺度不变的, (c) 时域上表现为  $1/f^2$  噪声并具有长程相关性, 那么便可认为该系统具有自组织临界性。以上结果表明, 酸沉降满足条件 (b) 和条件 (c)。然而, 条件

(a) 意味着什么, 并且酸沉降的幂律 (分形) 行为又是怎样与 SOC 相联系的?

表现为 SOC 行为的典型实例是沙堆模型<sup>[1~6, 9]</sup>。当沙粒随机、缓慢地滴落在沙堆时, 沙堆的倾斜角度将最终达到相对稳定的状态 (即临界值)。继续增加沙粒时, 沙堆的倾斜角在临界值附近波动。如果沙堆的角度小于其临界值, 沙粒的增加将会增大沙堆的角度; 如果沙堆的角度大于其临界值, 继续新增沙粒则有可能引起沙堆的“塌方”, 使得沙堆倾角重新回到其临界值。每一次“塌方”的大小可以是任意的, 但其大小的概率分布符合幂律规则, 并且其大小在时域上具有长程相关性, 即每一次“塌方”的大小与其以前一定时间内的“塌方”大小有关, 并且其波动轨迹具有自相似性。显然, 沙堆模型中的临界状态指的是沙堆的临界角度, 沙堆通过“塌方”方式维持其临界状态的相对稳定性。在 SOC 概念框架内, 不同的研究对象有不同的临界状态<sup>[1~14]</sup>。我们认为, 大气酸沉降的临界状态应是大气中微小水滴的正常酸度值 (pH 值为 5.0 或 5.6) 或环境容量值。

Peters 等<sup>[9]</sup>报道, 降水事件表现为频率幂律分

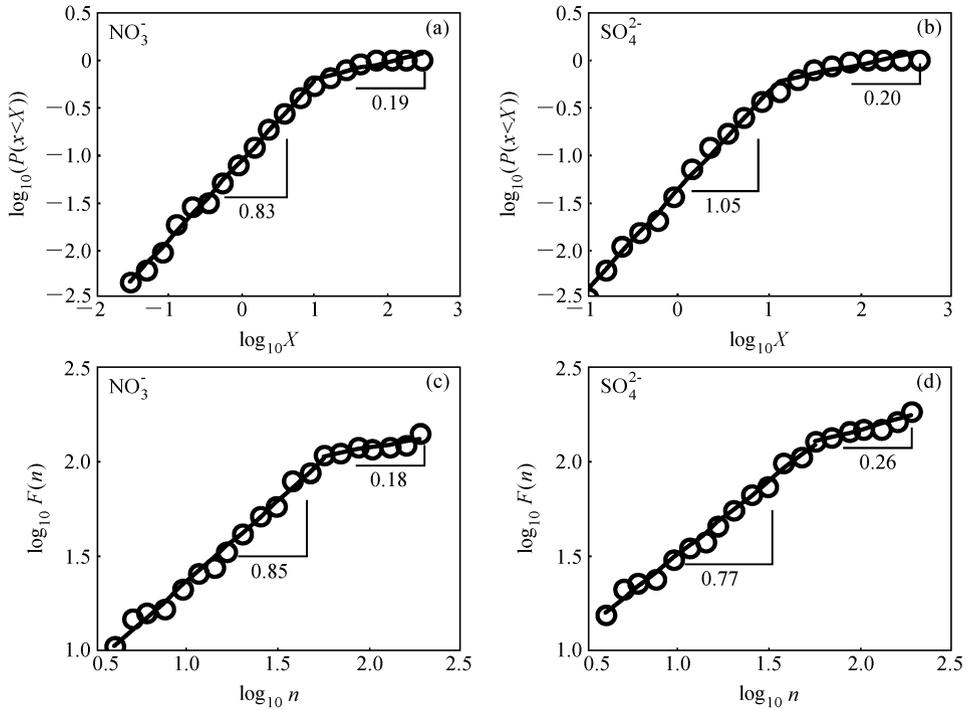


图 7 测站 MT97 的  $\text{NO}_3^-$  和  $\text{SO}_4^{2-}$  沉降量频率分布(a、b)与 DFA 分析结果(c、d)

Fig. 7 Frequency power-law distribution (a, b) and DFA (c, d) of  $\text{NO}_3^-$  and  $\text{SO}_4^{2-}$  deposition for site MT97

布, 并认为是 SOC 过程。能量以水汽方式持续不断地贮存于大气中, 并当水汽凝结成水珠时突然以降水方式沉降, 因此从 SOC 观点来看, 降水事件与地震和塌方事件并无本质差别。类似地, 污染物持续不断地进入并贮存于大气中, 并随降水而突然沉降, 这种过程与地震和塌方事件同样具有相似性。我们认为, 酸沉降频域上的频率双幂律分布和时域上的  $1/f^\beta$  噪声特性, 是污染胁迫下大气自组织临界行为的标志。

区域性酸雨的形成、发展和演化实质上是在污染胁迫下大气环境中各种相关因素相互作用、相互影响的结果。从复杂性理论来看, 区域性大气酸沉降表征为多因素局部相互作用所导致的宏观效应。就某一特定区域而言, 酸沉降表现为该区域特定的区域污染排放和自然环境特征, 即具有一定程度上的确定性; 但另一方面, 大气是一个开放的耗散系统, 影响酸沉降的各种因素及其相互作用并不是确定性的, 因而酸沉降在时空上表现为不规则、非线性变化, 具有复杂系统的基本特征。

通常认为, 酸沉降主要是由排入大气中的  $\text{SO}_2$  和  $\text{NO}_x$  等致酸气体氧化所致; 另一方面, 进入大气中的土壤和其他粒子中的  $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{Na}^+$ 、 $\text{Mg}^{2+}$  等碱

性金属离子又对降水酸度具有中和作用。区域酸沉降不仅与大气污染物的排放(种类、数量、排放方式等)有关, 而且深受区域自然条件(气候、地形地貌、土壤、太阳辐射、降水等)的影响。各种因素之间相互作用、相互影响, 并共同对酸沉降最终产生影响, 即形成具有一定区域特征的酸沉降格局。这种区域性格局即是复杂系统在一定条件下所形成的具有某种确定性的“有序”结构, 即本文中由标度指数  $\alpha$ 、 $\beta$ 、 $\gamma$  及临界尺度  $X_c$ 、 $n_c$  所表征的酸沉降的宏观特征。

由于大气中  $\text{CO}_2$  的影响, 正常状态下, 降水的 pH 值稳定于 5.0~5.6 之间。受大气污染的影响, 降水的 pH 值往往高于或低于正常 pH 值。我们可以将大气系统类比为沙堆, 以持续排放的污染物类比为持续滴落的沙粒, 以降水酸度的临界值 pH 值为 5.6 (或 5.0) 类比为沙堆的临界倾斜角。当污染物在大气中聚集时, 大气以降水方式将污染物沉降地球表面, 以维持大气中水质酸度的稳定性。这正如沙堆以“塌方”方式将多余的沙粒排除掉, 以维持其倾斜角的稳定性。持续累积的水汽并不产生持续不断的“毛毛雨”, 相反却产生大小按尺度不变性分布的降水事件。类似地, 大气中持续而缓慢

累积的污染物并不产生持续不断的酸沉降, 相反却产生按尺度不变性分布的酸沉降事件<sup>[15]</sup>。因此, 从复杂性观点来看, 酸沉降可以理解为大气系统的自组织临界行为, 而其幂律分布和  $1/f^\beta$  噪声特性, 则是自组织临界行为的标志。图 2 及图 5 中不同测站酸沉降标度指数的变化, 反映了自组织过程中自组织原则的影响<sup>[4]</sup>, 即不同区域环境特征的影响, 诸如气象条件、污染物种类与排放强度等。而标度指数  $\alpha$ 、 $\beta$ 、 $\gamma$  及临界尺度  $X_c$ 、 $n_c$  刻画了酸沉降自组织过程的宏观数值特征。

## 6 结论

综上所述, 我们发现酸沉降事件的频率分布分别在两个区间内遵从幂律分布, 具有尺度不变性并在时域上具有  $1/f^\beta$  噪声特性。此外, 我们将大气中水汽的正常酸度或环境容量作为酸沉降的临界状态。因此酸沉降符合自组织临界系统的三个基本特征, 酸沉降事件实质上是大气维持其临界状态的一种方式, 自组织临界性是酸沉降形成与演化的内在机制之一。正如自然灾害的幂律(分形)分布为其风险评估提供了重要信息并被用于减灾研究<sup>[3]</sup>, 酸沉降自组织临界性为理解酸沉降的形成、发展与演化提供了一种新的思路, 并为研究其预测与控制提供了有效工具。此外, 因酸沉降在时域上表现为  $1/f^\beta$  性质, 长程相关性应该是酸沉降趋势预测中必须考虑的重要因子。

## 参考文献 (References)

- [1] Bak P, Tang C, Wiesenfeld K. Self-organized criticality: An explanation of  $1/f$  noise. *Phys. Rev. Lett.*, 1987, **59** (4): 381~384
- [2] Bak P, Tang C. Earthquakes as a self-organized critical phenomenon. *J. Geophys. Res.*, 1989, **94** (11): 15635~15637
- [3] Malamud B D, Morein G, Turcotte D L. Forest fires: An example of self-organized critical behavior. *Science*, 1998, **281**: 1840~1842
- [4] Nunes A L, Buldyrev S V, Havlin S, et al. Power-law scaling for a system of interacting units with complex internal structure. *Phys. Rev. Lett.*, 1998, **80**: 1385~1388
- [5] Stanley H E, Amaral L A N, Gopikrishnan P, et al. Scale invariance and universality: Organizing principles in complex systems. *Physica A*, 2000, **281**: 60~68
- [6] Aegerter C M. A sandpile model for the distribution of rainfall? *Physica A*, 2003, **319**: 1~10
- [7] Svensson C, Olsson J, Berndtsson R. Multifractal properties of daily rainfall in two different climates. *Water Resour. Res.*, 1996, **32**: 2463~2472
- [8] Plotnick R E, Sepkoski J J. A multiplicative multifractal model for originations and extinctions. *Paleobiology*, 2001, **27** (1): 126~139
- [9] Peters O, Hertlein C, Christensen K. A complexity view of rainfall. *Phys. Rev. Lett.*, 2002, **88** (1): 018701
- [10] 仪垂祥, 伍荣生. 一个自组织气候模型. *大气科学*, 1994, **18** (2): 129~140  
Yi Chuixiang, Wu Rongsheng. A self-organization climate model. *Chinese Journal of Atmospheric Sciences (Scientia Atmospherica Sinica)* (in Chinese), 1994, **18** (2): 129~140
- [11] 胡非, 洪钟祥, 雷孝恩. 大气边界层与大气环境研究进展. *大气科学*, 2003, **26** (4): 712~728  
Hu Fei, Hong Zhongxiang, Lei Xiaoen. Recent progress of atmospheric boundary layer physics and atmospheric environment research in IAP. *Chinese Journal of Atmospheric Sciences (in Chinese)*, 2003, **26** (4): 712~728
- [12] Olsson J, Niemczynowicz J, Berndtsson R. Fractal analysis of high-resolution rainfall time series. *J. Geophys. Res.*, 1993, **98** (D12): 23265~23274
- [13] Over T M, Gupta V. A space-time theory of mesoscale rainfall using random cascades. *J. Geophys. Res.*, 1996, **101** (D21): 26319~26331
- [14] D'Odorico P, Rodríguez-Iturbe I. Space-time self-organization of mesoscale rainfall and soil moisture. *Adv. Water Res.*, 2000, **23** (4): 349~358
- [15] 王体健, 李宗恺, 南方. 区域酸性沉降的数值研究 I 模式. *大气科学*, 1996, **20** (5): 606~614  
Wang Tijian, Li Zongkai, Nan Fang. Numerical modeling of regional acid deposition. Part I: Model. *Chinese Journal of Atmospheric Sciences (Scientia Atmospherica Sinica)* (in Chinese), 1996, **20** (5): 606~614
- [16] Olendrzynski K, Berge E, Bartnicki J. EMEP Eulerian acid deposition model and its applications. *European Journal of Operational Research*, 2000, **122**: 426~439
- [17] Han B, Kim J, Cho S. A numerical simulation of acid deposition in East Asia. *Water, Air, and Soil Pollut.*, 2001, **130** (1): 487~492
- [18] Zhu J, Liu Z. Long-range persistence of acid deposition. *Atmos. Environ.*, 2003, **37**: 2605~2613
- [19] Klemm O, Lange H. Trends of air pollution in the Fichtelgebirge Mountains, Bavaria. *Environ. Sci. Pollut. Res.*, 1999, **6**: 193~199
- [20] Windsor H L, Toumi R. Scaling and persistence of UK pollution. *Atmos. Environ.*, 2001, **35**: 4545~4556
- [21] Matsoukas C, Islam S, Rodriguez-Iturbe I. Detrended fluctuation analysis of rainfall and streamflow time series. *J. Geophys. Res.*, 2000, **105** (D23): 165~172