

关于我国和东亚酸性物质的输送研究*

1. 三维欧拉污染物输送实用模式

王自发 黄美元 何东阳 徐华英 周 玲

(中国科学院大气边界层物理和大气化学国家重点实验室, 北京 100029)

摘 要 本文发展了一种三维欧拉型污染物长距离输送实用模式, 比较详细地考虑了源、输送、干、湿沉降、气、液相化学过程。用分裂解法对气相化学过程进行查表式处理, 颇具特色, 使用实测气象输入场, 节约了大量的计算机资源。通过模式的灵敏度试验, 模式具有较高的分辨率和灵敏度。根据与实测资料对比, 模式有较好的可信度, 能方便地计算长时间(月、季、年)的污染物沉降及远距离输送态势。

关键词 污染物 输送实用模式 分裂解法 灵敏度

1 引言

近年来, 化石燃料的大量燃烧而排放的硫、氮氧化物可导致形成各种酸性物质, 从而产生了诸如大气污染、酸雨等环境问题。继北美和欧洲之后, 东亚也成为全球酸雨区之一, 并且有进一步发展的趋势。我国南方地区酸雨问题比较严重, 随着经济的高速发展, 酸雨区在从南向北推移, 雨水酸度也在增加。酸性物质沉降到地面会改变土壤的物理和化学属性, 从而影响植被和作物的生长和发育并会引发众多的生态问题, 最终会制约经济的发展。

考虑到污染物可在大气中停留较长的时间而被输送到很远的距离, 因而污染物的跨国输送也就成为国家之间的敏感问题之一。加拿大和美国之间污染物跨国输送纷争长达十来年, 西欧各国之间的输送也引起有关政府和科学家的极大关注, 并且投入了很大的人力和财力进行这方面的研究。中、日、韩等国排放的 SO_2 的去向问题也引起了有关政府和科学家的极大兴趣。因此有必要深入了解我国和东亚酸性物质的沉降和输送规律。模式计算不仅有助于了解沉降的分布和跨边界输送态势, 而且可以预测未来的变化趋势并为经济可持续发展战略中控制污染源的排放提供科学依据。因而建立适合我国的输送模式就有着重要的作用和意义。

20年来, 关于硫沉降及其输送问题的数值模拟, 各国科学家做了大量的研究工作。通过大量的野外观测资料的积累, 科学家们已建立起一批全球或区域的酸沉降及输送模式, 但大多数应用在西欧和北美地区^[1~5]。这些模式主要有两类, 拉格朗日模式和欧拉模式。它们具有各自的优缺点。由于欧拉模式几乎可以考虑所有的物理和化学过

1996-01-11收到, 1996-04-19收到修改稿

* 本研究部分为“八五”科技攻关项目, 并得到大气科学和地球流体力学数值模拟国家重点实验室的资助

程,因而成为输送研究的一个主要工具。目前主要从两个方面应用该模式。一是详细的研究影响酸沉降及输送的物理和化学过程及酸沉降形成的机理,如 Chang 的模式^[1]、Carmichael 的模式^[5],另一种是简化考虑物理化学过程,如 Zlatev、Langner 的模式^[12]。关于这方面的全球研究不再赘述。

对我国和东亚地区酸沉降及输送的模式研究在国内外已有一些研究^[6~11]。这些研究主要集中在较详细的讨论物理化学过程的作用及酸沉降形成机理的探讨,并仅限于一些天气个例及短期的模拟,并未进行长期的气候平均状况的输送研究及我国各省、东亚各地区之间的相互输送量的研究。现有的模式要么相当复杂,用之进行相互输送量的研究使得计算机资源难以满足,要么考虑的过程太简单。因而需要建立综合两者优点且适合于我国的实用输送模式。

为此我们发展了一种三维欧拉型污染物输送模式,包括源、输送、干、湿沉降、气、液相化学过程。用分裂解法对气相化学过程进行查表式处理,使用实测的气象输入场,节省了大量的计算机资源。根据实测资料对比,模式能方便的计算长时间(月、季、年)的污染物沉降及远距离输送态势。用之计算出全年和各季节我国和东亚地区硫的空间分布、硫沉降量的分布特点、输送通量及我国各大区、各省(市)之间、东亚各地区之间的相互输送量,并预测了2010和2020年我国和东亚硫化物沉降及输送的变化趋势。本文主要介绍模式的动力框架,模式中各种物理化学过程的处理,模式的差分格式,输入资料的处理,模式的敏感性试验以及与实测资料的比较。

2 模式

2.1 模式的动力框架

采用地形追随的球坐标系,三维欧拉型污染物输送方程为

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t}(\Delta H \cdot C_i) + \frac{1}{R \cos \theta} \frac{\partial}{\partial \varphi} (u \cdot \Delta H \cdot C_i) + \frac{1}{R \cos \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} (v \cos \theta \cdot \Delta H \cdot C_i) + \frac{\partial}{\partial \sigma} (W \cdot C_i) \\ = \frac{K_\varphi}{R^2 \cos^2 \theta} \frac{\partial}{\partial \varphi} \left(\Delta H \cdot \frac{\partial C_i}{\partial \varphi} \right) + \frac{K_\theta}{R^2 \cos \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left(\Delta H \cdot \cos \theta \frac{\partial C_i}{\partial \theta} \right) + \frac{\partial}{\partial \sigma} \left(\frac{K_\sigma \partial C_i}{\Delta H \partial \sigma} \right) \\ + S \cdot \Delta H + P \cdot \Delta H - R_d \cdot \Delta H - W_{\text{ash}} \cdot \Delta H, \end{aligned} \quad (1)$$

其中 C_i 为第 i 种污染物浓度, t 为时间, q, j 为纬度、经度, R 为地球半径, $K_\theta, K_\varphi, K_\sigma$ 为经向、纬向、垂直湍流扩散系数, u, v 为水平风速, P 为化学转化项, S 为源排放速率, R_d 为干沉降项, W_{ash} 为湿清除项,地形对污染物输送有一定的影响,在模式中采用地形坐标是必要的, σ 为地形坐标,满足

$$\sigma(\theta, \varphi) = \frac{z - h(\theta, \varphi)}{H(\theta, \varphi) - h(\theta, \varphi)} = \frac{z - h}{\Delta H}, \quad (2)$$

其中 $H(\theta, \varphi)$ 为对流层高度, $h(\theta, \varphi)$ 为地形高度。在地形坐标下,上下边界条件比较好处理,同时地形坐标下低层水平面是一个地形面,对于讨论污染物的分布是非常方便的。(1)式中的 W 为等效垂直运动速度,由空气质量守恒方程得出

$$W = \omega - \frac{u}{R \cos \theta} \left(\frac{\partial h}{\partial \varphi} + \sigma \frac{\partial \Delta H}{\partial \varphi} \right) - \frac{v}{R} \left(\frac{\partial h}{\partial \theta} + \sigma \frac{\partial \Delta H}{\partial \theta} \right). \quad (3)$$

模式的各个物理过程见图 1。

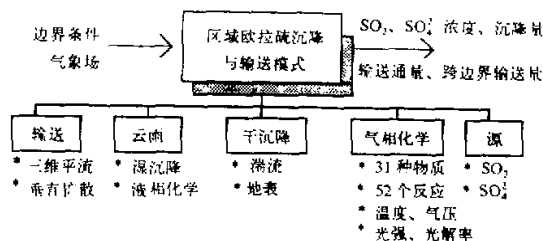


图 1 模式构成的物理框图

2.2 模式中各种过程的考虑及参数的选取

2.2.1 化学过程的耦合

SO_2 氧化为 SO_4^{2-} 是其汇的一个重要方面，其氧化率的大小直接影响 SO_4^{2-} 沉降量的大小。目前硫沉降与输送模式中主要有两种方法处理 SO_2 的气相氧化率，一是直接在格点上耦合光化学模式进行计算，二是取为简单的常数。第一种方法计算量太大，在目前计算条件下，用之研究诸多地区之间的相互输送量问题难以实现；第二种方法却不能很好地反映实际情况。因而我们采用折中的参数化方法，在何东阳模式^[12]的基础上加上了有关硫的化学反应^[13]，建立一个包括硫化物的气相化学子模式，模式包括了 31 种物质，52 个化学反应，考虑了温度、水汽、光强、云雾及各种物质浓度对气相转化率的影响。通过对该模式的数值试验，找出了一些影响 SO_2 气相氧化率的主要因子（如光强、温度、湿度、 SO_2 浓度等），根据一定的标准（如对氧化率的改变不大于 0.1% / h），把这些因子（在输送模式中可以直接得到的物理及化学参量）分为不同的档，然后应用气相化学模式计算各种分档不同组合情况下 SO_2 的气相转化率，得出一张气相转化率的查算表。在输送模式中不用解光化学方程，直接根据不同的条件，用查表法从该表中得出 SO_2 气相转化率。

表 1 给出了气相化学模式计算的 SO_2 气相转化率的部分数据，由表 1 可见 SO_2 气相转化率随 SO_2 浓度的增大而减少，随相对湿度、温度的增大而增大。太阳高度角越小，氧化率越大。表 2 给出了云的层次对 SO_2 氧化率的影响，由表 2 可见云层之上气相氧化率比云层之下要大。可见模式可以较好地反映 SO_2 光化学转化率的变化。这种处理方法的精度主要取决于选择的因子和分档的粗细，通过与实测对比，该方法比取为简单的常数要合理些。这样处理既使问题简化，节省了计算时间，又抓住了问题的本质，使模拟与实际相符。

MacCrachen 用 Luther 等的辐射传输模式为基础决定光解率常数^[3]。辐射传输模式考虑了气溶胶的散射与吸收、雷诺散射、臭氧的吸收。光解率常数使用 Woolf 的算法。低层大气（5~10 km）光化性辐射通量随高度而增加，导致光解率的增加。Demerjian 的研究表明， NO_2 和 HCHO 的光解率随高度显著增加^[3]。如 0.98 km 高度

表 1 SO_2 浓度、湿度、温度、太阳高度角对 SO_2 氧化率及 H_2O_2 和 O_3 的影响

云量 40%, 相对湿度 90%, 温度 10							
SO_2 浓度	1.0	10.0	20.0	30.0	50.0	80.0	180.0
氧化率	1.4	1.4	1.4	1.4	1.3	1.3	1.1
H_2O_2	6.1	6.0	6.0	5.9	5.8	5.7	5.4
O_3	56.0	55.9	55.8	55.7	55.6	55.3	55.3
云量 20%, 浓度 30.0, 温度 5							
相对湿度	10%	30%	50%	70%	90%		
氧化率	0.9	1.3	1.8	2.3	2.9		
H_2O_2	2.9	5.3	7.4	8.8	10.0		
O_3	56.0	55.0	53.4	50.1	47.0		
云量 40%, 浓度 30.0, 相对湿度 30%							
温度	-30	-20	-10	0	5	10	15
氧化率	0.7	0.8	0.9	1.0	1.3	1.5	1.9
H_2O_2	2.6	3.0	3.4	4.6	5.3	6.6	7.4
O_3	57.7	57.1	56.1	55.7	55.0	53.7	50.8
云量 40%, 浓度 30.0, 相对湿度 40%, 温度 5							
高度角	60	50	45	40	35	30	25
氧化率	1.4	1.5	1.6	1.6	1.7	1.7	1.7
H_2O_2	5.6	6.2	6.4	6.6	6.8	7.0	7.1
O_3	54.1	54.3	54.5	54.6	54.7	54.8	54.9

注: 表中 SO_2 、 O_3 、 H_2O_2 浓度单位为 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 满云量为 100%, 温度为摄氏度, 氧化率为 %/h

表 2 云的层次对 SO_2 氧化率的影响

云层	云量	湿度	温度	SO_2 浓度	氧化率	H_2O_2	O_3
云上	-	0.3	5.0	30.0	1.4	5.6	55.3
云中	40%	0.3	5.0	30.0	1.3	5.3	55.0
云下		0.3	5.0	30.0	1.0	4.1	53.4

注: 表中 SO_2 、 O_3 、 H_2O_2 浓度单位为 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 满云量为 100%, 温度为摄氏度, 氧化率为 %/h

的光解率比相应的地面值高 20%~70%。本化学子模式考虑的与光强和云有关的光化学反应的转化率进行如下参数化处理^[3]。对有云格点的光解率为

$$j = j_{\text{clear}}[1 + \alpha(F_{\text{cld}} - 1)], \quad (4)$$

其中 α 为云覆盖率, F_{cld} 为云天和晴天光解率系数比, 随格点的南北向位置而不同, 对于太阳高度角 $X_0 \leq 60^\circ$,

$$\begin{cases} F_{\text{cld}} = 1 + \alpha_i(1 - t_r)\cos X_0, & \text{云顶以上,} \\ F_{\text{cld}} = 1.4\cos X_0, & \text{云内,} \\ F_{\text{cld}} = 1.6t_r\cos X_0, & \text{云下,} \end{cases} \quad (5)$$

对于 $X_0 \leq 60^\circ$, F_{cld} 取 $X = 60^\circ$ 的值。 α_i 的取值见表 3。根据 Joseph 的 delta-Eddington 理论, t_r 为普通光强下能量传输系数,

$$t_r = (5 - e^{-1}) / [4 + 3\tau(1 - f)], \quad (6)$$

表 3 模式计算光解率使用的系数 α_i

光化学反应物种	α_i
NO_2	1.2
$\text{O}_3(\Rightarrow \text{O}_1\text{D})$	0.7
NO_3	1.3
H_2O_2	1.0
$\text{HCHO} \Rightarrow \text{HO}_2\text{-CO}$	1.0
$\Rightarrow \text{H}_2\text{-CO}$	1.1

其中 $f=0.86$, τ 为云光学厚度,

$$\tau = 3I_{\text{con}} \Delta z_{\text{cid}} / 2\rho_{\text{H}_2\text{O}} r, \quad (7)$$

I_{con} 为云中平均液态水含量, Δz_{cid} 为云层的平均厚度, $\rho_{\text{H}_2\text{O}}$ 为云水的密度, r 为平均云滴半径。

由于液态氧化过程涉及的许多物质模式中未进行计算, 参照国外的一些文献,

SO_2 液相氧化率取为常数, 由于南方的温度高于北方, 氧化率取值南北有些差异, 取每小时南方为 15%, 北方为 12%。

对云覆盖率为 α 的网格点总的 SO_2 氧化转化率为

$$K_c = \alpha \cdot K_{\text{cq}} + (1 - \alpha) \cdot K_{\text{cg}}, \quad (8)$$

其中 K_{cq} 为液相氧化速率, K_{cg} 为气相氧化速率。

2.2.2 干沉降过程

对大气污染物的输送与扩散过程中, 沉降是主要的机制之一, 也是污染物的最终清除过程。在没有降水的条件下, 由于重力、湍流运动、热运动、惯性力和静电力的作用, 污染物尤其是粒子污染物在大气中输送扩散时, 随时都会被地面滞留, 形成连续不断的由大气向地面的质量迁移的过程。这就是干沉降过程。由于其作用时间长、地域广, 效果也就很重要。沉降速度是描述该过程的重要参数, 定义为向下通量除以浓度, 沉降速度随大气稳定度、植被、风场等因素而变化。输送模式中干沉降速度的处理有许多方法。一些模式简单的取为常数。本文在输送模式中耦合了一个考虑这些因素的计算硫化物干沉降速率的子模式, 根据不同条件下的测量结果采用经验参数化的方法模拟干沉降速度, 硫化物沉降速度与三个停留因子的和成反比, 可以用下式表示:

$$V_g = \frac{k(z) dC(z)}{C(z) dz} = (r_a + r_b + r_s)^{-1}, \quad (9)$$

其中动力停留因子 r_a 由表面层湍流混合的强度决定,

$$r_a = \int_0^{50} K(z)^{-1} dz,$$

根据 Businger 给定近地层 $K(z)$ 廓线, r_a 可以由下式确定:

$$r_a = (ku_*)^{-1} (\ln z / z_0 - \varphi_r),$$

其中

$$\begin{cases} \varphi = \exp\{0.598 + 0.39 \ln(z/L) - 0.09 [\ln(-z/L)]^2\}, & L < 0, \\ \varphi = -5z/L, & L > 0. \end{cases}$$

$k=0.35$, $z=50$ m, 粗糙度长度随季节和地表而变化。Monin-Obukhov 长度 L 及摩擦速度 u_* 的计算参考了 Egmond 的算法。 r_b 决定于向地表的分子和湍流扩散过程, 取为 $70 \text{ s} \cdot \text{m}^{-1}$ 。

Wesely 提出了基于稳定度和摩擦速度的地表层硫酸根粒子的地表停留因子 r_s 的参数化方案^[14]。 SO_2 的地表停留因子 r_s 与地表类型有关,随季节、地点、物种而变化。

2.2.3 湿清除过程

由于我国近地层大气无论污染气体还是气溶胶的浓度都较高,因而雨滴的冲刷对雨水中的离子浓度的影响很大。把雨水的冲刷过程定为

$$W_A = W_a \cdot C_i,$$

W_A 为冲刷量, C_i 为污染物浓度, W_a 为冲刷系数,与雨强、雨滴谱分布及各种污染物的浓度有关,对硫酸盐的冲刷还与气溶胶的粒子谱及化学成分有关。根据文献[15,16]可得

$$W_{\text{SO}_2} = (4.3 + 0.78 \ln C_{\text{SO}_2}) + (0.14 - 0.019 \ln C_{\text{SO}_2}) R,$$

$$W_{\text{SO}_4} = 0.33 R^{0.83},$$

其中 R 为雨强, C 为污染物的浓度。

2.2.4 扩散系数

长距离污染物输送中,水平湍流扩散项远小于水平输送项,有些模式中干脆就略去水平扩散项,但垂直扩散是重要的,特别是在边界层大气中具有重要作用。扩散系数的大小反映了大气湍流过程对污染物在水平和垂直方向的输送能力。其既取决于大气的状态(如平均风、风切变、温度直减率、大气稳定度等),又与考虑的尺度有关。理论上湍流扩散可以利用 K 理论计算出来,计算时必须用到反映边界层结构特性的各种参数。由于气象资料的限制,模式未对边界层湍流进行参数化处理,故只能对扩散系数进行简化处理,取为常数。参考了文献[17],水平扩散系数 $K_H = 45 \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$,垂直扩散系数从高度上分为两层,1000 m 以下 $K_V = 10 \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$,之上取为 $12 \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$,其中它包含了一部分对流活动的贡献。模式的垂直分层是不等距的,在下层每层厚度在0.1~1.0 km 之间,上层厚度较大,约在1.5~2.5 km 之间。这样取值计算结果水平扩散项比垂直扩散项小3个量级,高层的垂直扩散项也比低层小。这是符合实际湍流特征的。

2.3 计算方法、模拟区域及边界的处理

选择污染物输送方程的差分格式必须满足质量守恒关系。特别是平流项的差分方法不适当很容易引起模式的计算不稳定。为了满足质量守恒关系,我们采用交错网格,网格垂直方向不等距地分为8层,地形坐标 σ 的取值见表4。高度 ΔH 与浓度 C 分布在同一点上,垂直速度分布在两层的交界面上,其他变量分布在每一层的中间,变量在空间格点上的分布见图2。

输送项的差分写成如下形式:

$$\frac{1}{R \cos \theta} \times \left[\frac{(Q_i - Q_{i-1})}{\Delta \varphi} + \frac{(Q_j - Q_{j-1})}{\Delta \theta} \right] + \frac{(Q_k - Q_{k-1})}{\Delta \sigma}.$$

表4 垂直分层 σ 值

N	0	1	2	3	4	5	6	7	8
σ	0.00	0.03	0.08	0.15	0.25	0.40	0.55	0.75	1.00

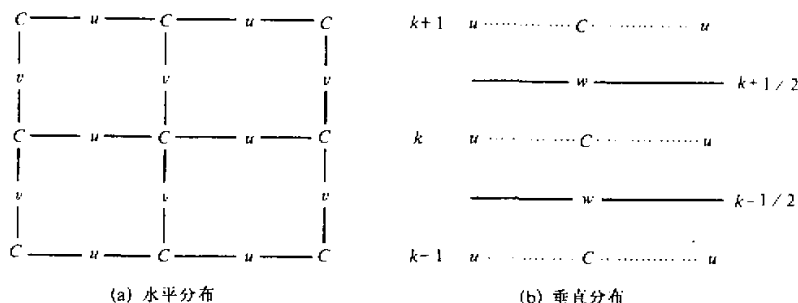


图2 变量在格点上的分布

$$Q_i = \begin{cases} \Delta H_i \cdot U_i \cdot C_i, & \text{当 } U_i \geq 0 \text{ 时,} \\ \Delta H_i \cdot U_i \cdot C_{i-1}, & \text{当 } U_i < 0 \text{ 时,} \end{cases}$$

其中 Q_i 、 Q_j 、 Q_k 分别代表经向、纬向和垂直方向上的输送通量,这3个方向上通量的计算是根据网格点上下、左右、前后的风向确定。

相应地,

$$Q_j = \begin{cases} \Delta H_j \cdot V_j \cdot \cos\theta \cdot C_j, & \text{当 } V_j \geq 0 \text{ 时,} \\ \Delta H_j \cdot V_j \cdot \cos\theta \cdot C_{j-1}, & \text{当 } V_j < 0 \text{ 时,} \end{cases}$$

$$Q_k = \begin{cases} W_k \cdot C_k, & \text{当 } W_k \geq 0 \text{ 时,} \\ W_k \cdot C_{k+1}, & \text{当 } W_k < 0 \text{ 时.} \end{cases}$$

湍流扩散项的差分采用中央差,写成

$$\begin{aligned} & \frac{K_\omega}{R^2 \cos^2 \theta_j} \cdot \frac{\Delta H_i (C_{i+1} - C_i) - \Delta H_{i-1} (C_i - C_{i-1})}{\Delta \varphi^2} \\ & + \frac{K_\theta}{R^2 \cos \theta_i \cdot \Delta \theta^2} \cdot [\Delta H_i \cdot \cos \theta_j (C_{j-1} - C_j) - \Delta H_{j-1} \cdot \cos \theta_{j-1} \cdot (C_i - C_{i+1})] \\ & + \left[\frac{K_\sigma}{\Delta H} \cdot \frac{(C_{k+1} - C_k)}{\Delta \sigma_k} + \frac{K_\sigma}{\Delta H} \cdot \frac{(C_k - C_{k-1})}{\Delta \sigma_{k-1}} \right] / \Delta \sigma_k. \end{aligned}$$

由于模式的边界对模拟的结果有一定的影响,模式的侧边界应该尽可能离我们感兴趣的区域远一些,并且最好在侧边界附近没有污染源的存在,这样在处理边界条件时,就可以选取背景值作为边界条件。模式选取的水平范围为东经 98°E 至 146°E,北纬 16°N 至 50°N,水平网格距为 $1^\circ \times 1^\circ$,可见在边界所通过的地区基本上是边远地区或海洋。侧边界为单向面,允许物质流出但不许流入,取硫化物浓度的背景值。上边界为封闭面,下边界为吸收边界。下边界(地面)主要的物理过程包括排放源和干沉降,其边界条件写为

$$-\frac{K_z}{\Delta H} \cdot \frac{\partial C}{\partial z} = V_d \cdot C + S,$$

其中 V_d 为干沉降系数,从干沉降系数子模式计算得到, S 为排放源强。

2.4 输入资料及相关处理

本模式使用的气象资料来自中国科学院大气物理研究所资料中心提供的欧洲中心 7 层等压面资料 (1000, 850, 700, 500, 300, 100 hPa), 时段为 12 小时, 网格距为 $2.5^{\circ} \times 2.5^{\circ}$ 。这是经过各种订正的实测资料, 资料有风的水平分量 u, v 、垂直分量 w 、温度 T 和相对湿度 H_r 。资料读出后, 先将各要素水平插值到的 $1^{\circ} \times 1^{\circ}$ 网格点上, 在垂直方向上用样条插值法把等压面的气象要素插值到等 σ 面上。由于污染物输送方程对质量守恒的要求, 舍弃资料中的垂直速度, 而采用地形坐标下的连续方程 (式(3)) 计算垂直速度。降水量 R 利用全国各台站 (336 个) 及韩国、日本的台站的 10 年每旬实测资料用平方反比权重的方法内插成 $1^{\circ} \times 1^{\circ}$ 格点资料。

云雾对硫化物的影响是多方面的。在云雾内部, 云雾吸收气态 SO_2 , 并且随着液相氧化过程的消耗而不断进行, 使得 SO_2 浓度减少。其次, 云雾天气下光强减弱而影响气相化学过程。由于云中的液相氧化速率大大高于气相氧化, 必须准确的模拟出云量。当然, 这存在不少困难, 云雾过程的尺度常常小于本模式网格距 ($1^{\circ} \times 1^{\circ}$), 由于形成各种类型云雾的条件很复杂, 只好采用经验公式的办法。采用毛节秦使用的经验公式^[16], 根据相对湿度的资料较合理地估计出网格中云的比例, 云量 α 为

$$\alpha = \frac{H_r - H_{r,c}}{100 - H_{r,c} C}, \quad (H_r > H_{r,c})$$

H_r 为格点上相对湿度 (%), $H_{r,c}$ 为临界相对湿度, 随高度和季节而变化 (表 5)。这种方法有效性还是较好的^[15]。

表 5 夏季各高度临界相对湿度

N	1	2	3	4	5	6	7	8
σ	0.015	0.055	0.115	0.200	0.325	0.475	0.65	0.875
$H_{r,c} / \%$	95	80	75	65	60	50	50	40

中国大陆采用中国国家环保局公布的排放源资料 (1991 年, 1992 年), 其他地区采用 1987 年 Akimoto 的排放源资料^[18] (见图 3)。资料的处理办法也类似于 Akimoto 的方法处理。由于日本的火山对硫沉降的影响很大, 加入了日本火山源资料。

地面植被资料采用卫星遥感所得资料按照 MM4 的分类法分为 8 类: 城市、农作物、草原、森林、灌木、沙漠 (荒原)、水面、农草混合下垫面。

式(3)中对流层高度 $H(\theta, \varphi)$ 随季节、纬度而变化, 一般来说, 低纬地区对流层顶高, 高纬

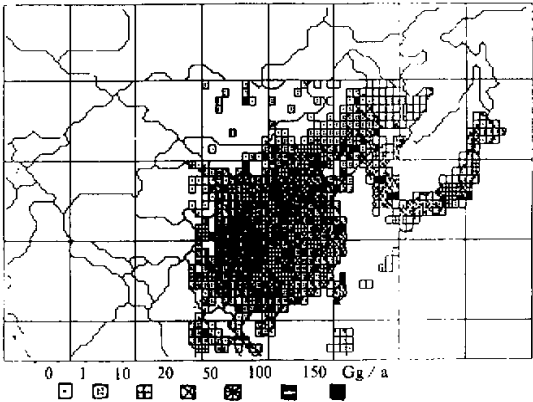


图 3 源排放量及模式的计算区域

地区对流层顶低。据此,取 $H(\theta, \varphi)$ 随纬度线性变化,模式南端取 11 km,北端取 9 km。地形资料来自中国科学院大气物理研究所计算机室的平均地形资料。

3 模式的敏感性试验

为了试验模式的性能,探讨各种物理过程对硫化物及其沉降的空间分布以及输送的影响,我们选择了 1989 年 7 月份月平均气象资料作为输入场,通过对相关输入参数的改变验证模式输出结果对参量变化的敏感程度。模式基本参数见表 6。

表 6 敏感性试验的主要变化参数

组别	基本参数	变化参数
水平扩散系数	$45 \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$	$450 \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$
垂直扩散系数	1000 m 以下 12, 以上 $10 \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$	1000 m 以下 15, 以上 $1.13 \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$
湿沉降系数 SO_2	0.005	0.01
干沉降系数 SO_4^{2-}	0.01	0.02
SO_2 气相转化率	1% / h	2% / h
SO_2 液相转化率	8% / h	16% / h
湿清除系数	$0.33R^{0.83}$ (R 为雨强)	$0.50R^{0.93}$

在其他参数不变的情况下,分别改变各组参数值进行敏感性试验,主要得出以下几点结果:

(1) 水平扩散系数对污染物的浓度、沉降量的影响很小。垂直扩散系数对空气中污染物的浓度以及沉降量均有影响。垂直扩散系数增大(表 6),边界层硫化物的浓度减少 10%~20%,自由对流层浓度增大 20%~30%。

(2) SO_2 干沉降系数增大 1 倍, SO_2 干沉降量增大 20%~40%, SO_4^{2-} 的干沉降量减少 10%~20%,低层 SO_2 浓度减少 20%~50%, SO_4^{2-} 的浓度减少 10%~20%。并且北方的变化量大于南方,近海的变化大于内陆(图 4)。 SO_4^{2-} 干沉降系数的改变仅对 SO_4^{2-} 的浓度和沉降产生影响,而且变化的幅度要小。

(3) SO_2 气相转化率增大一倍, SO_2 沉降量大陆上减少 5%~10%,海洋地区减少 20%~40%, SO_4^{2-} 的沉降量增加 30%~60%,而且北方增大量大于南方

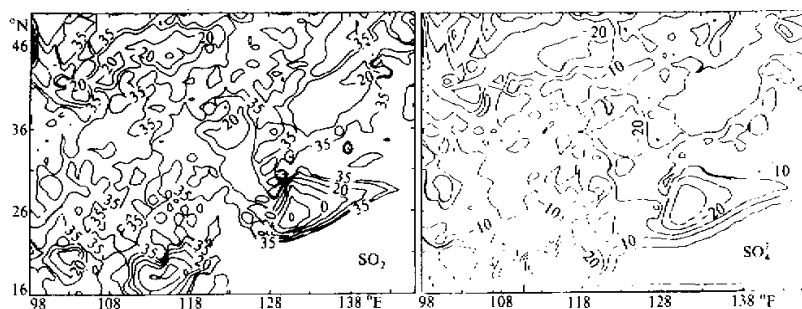


图 4 SO_2 干沉降系数增大 1 倍, 硫化物干沉降量的变化率(%)

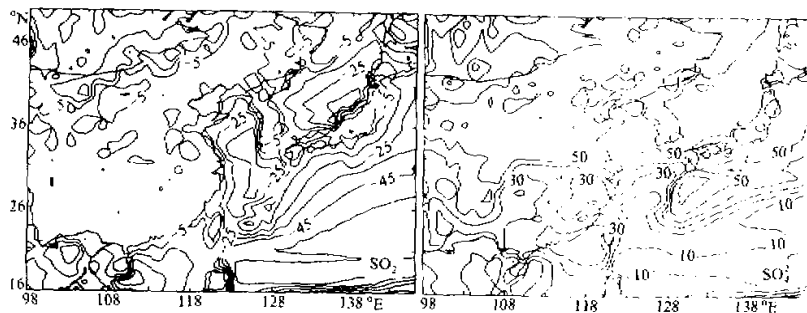


图 5 SO_2 气相转化率增大, 硫化物沉降量的变化率(%)

(图 5)。对 SO_2 、 SO_4^{2-} 浓度的影响与对沉降的趋势类似, 浓度的改变幅度稍大。湿清除系数的改变 (向加快方向), 使得干沉降减少, 湿沉降增大。

(4) SO_2 液相转化率加快一倍, 空中 SO_2 浓度降低 10%~30%, 源强大或降水大的区域影响大, SO_4^{2-} 的浓度普遍增大, 幅度高于 SO_2 的改变。 SO_2 的沉降量减少 5%~7%。 SO_4^{2-} 的沉降量增大 40%~50%, 南方增幅比北方大。

(5) 排放源包括人为源和自然源, 人为源有一定的不确定性, 而自然源的不确定性就更大。排放源强改变 15%, 污染物的浓度和沉降量大约变化 10%~25%。日本火山源的加入使得该地区空中 SO_2 和 SO_4^{2-} 的浓度比不计火山源时高出很多。

(6) 通过对模式参数的灵敏性试验以及物质守恒性试验, 模式有较高的分辨率及守恒性。

4 模式的验证与比较

把模式输出的结果与实测资料进行比较对于验证模式的性能是很重要的。我们主要有两种实测资料, 一是降水中 SO_4^{2-} 离子的浓度, 另一种是年平均的 SO_2 浓度。由于各测站为环境监测站, 大多分布在城市地区, 并且是污染相对大的区域, 容易受城市的局地源排放的影响。而模式的网格点很大, 远大于城市的尺度, 接近 10000 km², 计算输出的结果为大范围的时间及空间的平均效果。因而不进行一些处理在两者之间直接比较是较困难的。对于 SO_2 的浓度来说, 晴天和雨天的值差别很大, 并且随着空间、时间变化较大。在城市测点上, 模式的平均效果必然使得计算值小于观测值。对于 SO_4^{2-} 来说, 由于降水的尺度比较大, 其对 SO_4^{2-} 的冲刷作用在较大的区域内是比较平滑的, 因而用降水中的 SO_4^{2-} 的浓度进行比较相对要好。我们利用 1992 年 7 月份的气象场资料模拟了该月的降水中 SO_4^{2-} 浓度及沉降量分布, 并与同月的实际观测值进行比较。图 6 采用中国和日本 7 月份湿沉降中 SO_4^{2-} 实测值与计算值比较的点聚图 (A、B、C 分别为中国、日本和总的情况)。中国和日本分别有 70 和 141 个测站。由于日本测站很密, 每个网格点上的多个测站取平均值。可以看出两者的相关系数分别可达 0.84、0.72、0.79, 平均误差为 22%、16%、20%。虽然日本等国的排放源资料与计算使用的气象

场资料不匹配,但日本近年来硫化物的排放量接近零增长。考虑到计算值和观测值所代表的水平尺度不同,应该说计算的结果是比较符合实际的。图 7 为中国和日本降水中 SO_4^{2-} 浓度的实测水平分布与计算结果的比较。两者的分布形势大体相同,以重庆为中心的四川盆地、上海、北京等地均为高值中心。

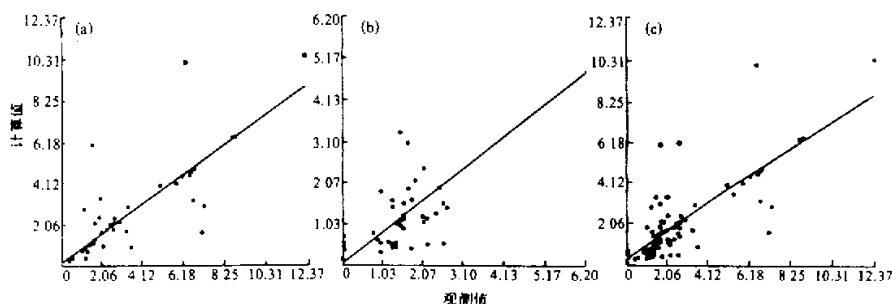


图 6 中国和日本 7 月份湿沉降中 SO_4^{2-} 实测值与计算值比较的点聚图
(a)、(b)、(c)分别为中国、日本和总的情况

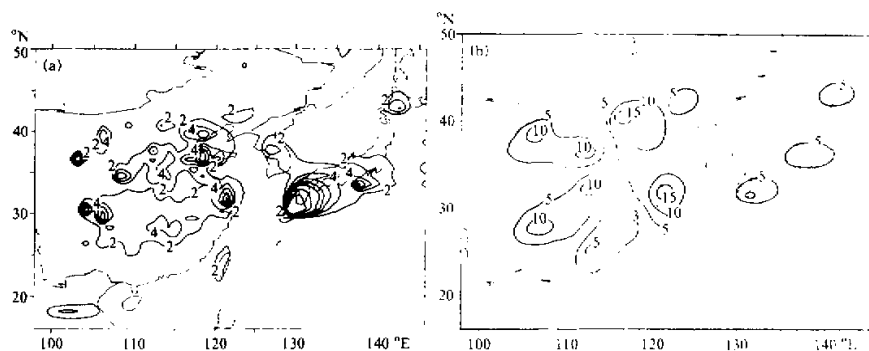


图 7 中国和日本降水中的 SO_4^{2-} 浓度的实测水平分布与计算结果的比较
(a) 降水中硫酸根浓度分布模式计算值(1992 年 7 月), (b) 降水中硫酸根浓度分布观测值(1992 年 7 月)

模式利用 1989 年 7 月份的逐日气象场进行了逐日计算,其结果与用平均气象场计算的对比如图 8。图中为各水平格点上沉降量的点聚图,横坐标为平均场,纵坐标为逐日场。两者的相关性还是比较好的,相关系数为 0.86,平均误差在 30% 左右。平均场的干沉降量小于逐日场,湿沉降量反之。平均场的总沉降量也大于逐日计算的量,说明平均场的降水平均效果使得湿沉降的比例偏大,干沉降的比例偏小。 SO_2 和 SO_3^{2-} 也是有一些差别的。逐日平均场和平均气象场计算的沉降高低值中心分布形势是很一致的。

5 结论

本文建立了一个适合于我国和东亚地区的硫化物长距离输送欧拉实用模式,利用实

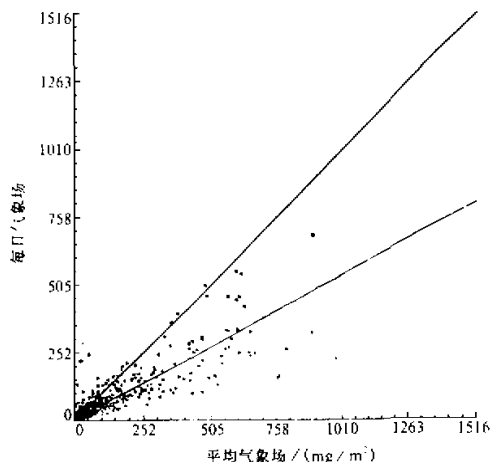


图 8 各网格点逐日计算的月降水量与用平均气象场计算的结果对比
横坐标 x 为月平均气象场计算平均值, 纵坐标 y 为每日气象场计算平均值,
其相关关系为 $y = 7.14 + 0.53x$ 、相关系数 $R = 0.86$ 、平均误差为 -33.17

测气象场, 采用分裂查表法处理化学过程, 既反映了大气中的真实情况, 又节省了计算时间, 使得该模式可以在现有计算机条件下进行长时间多地区之间污染物的输送研究。通过对参数的敏感性试验, 模式可以较好地反映大气中的物理化学过程。通过与实测资料对比, 模式可以较好地模拟出东亚酸沉降的分布及输送特征。但模式在边界层参数化及液相化学过程等方面处理过于简单, 今后需进一步完善。

参 考 文 献

- 1 Zlatev, Z., Christensen, J. and Hov, O., 1992, A Eulerian air pollution model for Europe with nonlinear chemistry, *Journal of Atmospheric Chemistry*, **15**, 1~37.
- 2 Langner, J. and Rodhe, H., 1991, A global three-dimensional model of the tropospheric sulfur cycle, *Journal of Atmospheric Chemistry*, **13**, 225~263.
- 3 Chang, J. S., Brost, R. A., Isaksen, I. S., Madronich, S., Middleton, P., Stockwell, W. R. and Walcek, C. J., 1987, A three dimensional Eulerian acid deposition model: physical concepts and formulation, *Journal of Geophysical Research*, **92**, No. D12, 14, 681~700.
- 4 Eliassen, A. and Saltbones, J., 1983, Modeling of long-range transport of sulfur over Europe: A two-year model run and model experiment, *Atmos. Environ.*, **17**, 1457~1473.
- 5 Carmichael, G. R., L. K. Peters and T. Kitada, 1986, A second-generation model for regional scale transport / chemistry / deposition, *Atmos. Environ.*, **20**, 173~188.
- 6 Murao, N., Katatani, N., Sasaki, Y., Okamoto, S., Koobayashhi, K., 1993, A modeling study on acid rain in east Asia, International Conference on Regional Environment and Climate Changes in East Asia, 305~309.
- 7 Kotamarthi, V. R. and Carmichael G. R., 1990, The long range transport of pollutants in the Pacific Rim Region., *Atmos. Environ.*, **24A**, 1521~1524.
- 8 雷效恩等, 1993, 一个高分辨对流层物质交换模式, *气象学报*, **51**, 75~86.
- 9 贾新媛, 1993, 区域酸沉降模式, *大气科学*, **17**, 732~740.
- 10 Huang Meiyuan, Wang Zifa, He Dongyang, Xu Huaying, Zhou Ling, 1995, Modeling studies on sulfur deposi-

- tion and transport in East Asia. *Water, Soil and Air Pollution*, **85**(4), 1921~1926.
- 11 黄美元、王自发、何东阳、徐华英、周玲, 1996, 我国冬夏硫化物沉降与输送研究, *科学通报*, **41**(11), 1013~1016.
- 12 何东阳、黄美元, 1992, 一个适用于区域性大气环境模拟的大气光化学模式, *环境科学学报*, **12**(2), 182~192.
- 13 Wang Zifa, Huang Meiyuan, He Dongyang, Xu Huaying, Zhou Ling, 1996, Sulfur distribution and transport studies in East Asia using eulerian model, *Advances in Atmospheric Sciences*, **13**(3), 399~409.
- 14 Wesly, M. L. and Hicks B.B., 1979, Dry deposition and emission of small particles at the surface of the earth, *Proc. Fourth Symp. on Turbulence Diffusion and Air Quality*, Am. Meteor. Soc., Boston, MA, 510~513.
- 15 彭红、秦渝, 1992, 气溶胶湿清除过程的参数化, *大气科学*, **16**(5), 622~631.
- 16 徐玲、秦渝, 1992, 云下气体清除过程的参数化, *环境化学*, **11**(1), 1~10.
- 17 毛节泰, 1992, 广东、广西地区酸沉降统计模式的研究, *环境科学学报*, **12**(1), 28~36.
- 18 Akimoto Hajime, 1994, Distribution of SO_4^{2-} , NO_3^- and CO_2 emissions from fuel combustion and industrial activities in Asai with SO_4^{2-} resolution, *Atmospheric Environment*, **28**, 213~225.

Studies on Transport of Acid Substance in China and East Asia Part I: 3-D Eulerian Transport Model for Pollutants

Wang Zifa, Huang Meiyuan, He Dongyang, Xu Huaying and Zhou Ling

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

Abstract A practical 3-D Eulerian transport model for pollutants is developed. It considers in details the emission, transport, gas-phase and aqueous chemical process, dry deposition, rainout and washout processes. It deals with gas-phase chemical process with look-up table or splitting method. The model has good resolution and sensitivity by the study of response with parameters. Through the comparison with observations, it is reliable and able to calculate conveniently the deposition and long range transport of contaminant for long time (e.g., for month, season and year).

Key words pollutants practical transport model splitting method sensitivity