

中国地区硫酸盐气溶胶的分布特征

王体健 闵锦忠 孙照渤

李宗恺 金龙山

(南京气象学院, 南京 210044)

(南京大学大气科学系, 南京 210093)

摘要 建立了一个三维欧拉型排放/输送/转化/沉降模式, 其主要特点是采用独立的气相化学子模式计算各种不同条件下 SO_2 的转化速率, 建立转化率的数据库, 直接为欧拉模式调用, 并对液相化学和湿清除过程进行了参数化处理。这样使模式既考虑了大气化学过程的非线性, 又具有较高的计算效率, 能够方便地计算年(季)尺度的硫酸盐气溶胶 SO_4^{2-} 的浓度分布。利用中尺度气象模式 MM4 和欧拉输送模式模拟了中国地区硫酸盐气溶胶的时空分布, 其结果可以方便地应用到考虑硫酸盐气溶胶气候效应的气候模式中去。

关键词: 硫酸盐; 气溶胶; 气候效应

1 引言

中国是一个 SO_2 排放大国, 由此造成的大气污染和酸雨污染日趋严重。另一方面, 由 SO_2 转化形成的硫酸盐气溶胶在对流层的浓度日益增大, 并通过其直接和间接辐射强迫作用对气候产生影响。根据 IPCC 研究报告^[1,2], 全球平均人为硫酸盐气溶胶总的直接辐射强迫作用约 -0.5 W/m^2 , 北半球平均值约 -1.0 W/m^2 。硫酸盐的间接辐射强迫作用约 $0 \sim -1.5 \text{ W/m}^2$ 。而由于人类活动产生的 CO_2 、 CH_4 、 N_2O 等温室气体的增加引起的总的辐射强迫作用达 $2 \sim 2.5 \text{ W/m}^2$ 。由此可见, 硫酸盐引起的致冷作用在量级上可以和上述气体的温室效应相比, 尤其是在北半球工业区上空。为了定量研究硫酸盐气溶胶的气候效应, 首先必须弄清硫酸盐气溶胶的分布规律。模式计算是一种非常有效的手段, 国内这方面的研究工作已经开展。黄美元等^[3]、王自发等^[4]利用欧拉模式研究了东亚地区的硫输送和沉降, 给出了硫酸盐气溶胶的分布。钱云等^[5]根据工业 SO_2 排放资料和硫化物输送模式模拟了硫酸盐气溶胶的区域分布状况, 计算了其地对气系统的直接辐射强迫作用, 并用能量平衡模式模拟了对东亚和中国温度变化的影响。上述工作采用欧洲中心 7 层等压面气象资料, 时空分辨率较低, 且模式中计算 SO_2 转化率的气相化学模式比较复杂。本文设计了一个简化的欧拉输送模式, 并利用中尺度气象模式 MM4 提供的旬平均气象场和 1995 污染源资料, 模拟了中国地区硫酸盐气溶胶的时空分布, 所得结果可以直接为考虑硫酸盐气溶胶气候效应的区域气候模式所调用。

2 模式结构

2.1 气象模式

本研究采用的是美国 PSU/NCAR 的有限区域中尺度模式 (MM4)^[6], 许多研究

表明该模式对一般的尺度天气过程有一定的模拟能力, 且它的设计较利于污染物的研究。

水平网格距取为 50 km, 格点数 121×90 ; 模式顶气压 100 hPa, 垂直方向分为 10 层, 间隔是非均匀的, 相应的 σ 值为 0, 0.15, 0.3, 0.45, 0.6, 0.75, 0.85, 0.93, 0.97, 0.99, 1。采用 Blackadar 的高分辨边界层方案, 时间变化边界条件和 Anthes-Kuo 的深厚积云对流参数化方案。

利用 MM4 诊断得到的气象要素场提供给输送模式, 将一年分为 36 个旬, 每旬 10 天, 分别计算 36 个旬平均的气象场, 用它们的平均来代表年平均气象场。

2.2 输送模式

模式考虑了 SO_2 和 SO_4^{2-} 在对流层大气中的排放、输送、转化和沉降过程, 是一个欧拉型的三维模式。 SO_2 和 SO_4^{2-} 的浓度守恒方程为

$$\begin{aligned} \frac{\partial c_i^*}{\partial t} + m^2 \left[\frac{\partial (uc_i^* / m)}{\partial x} + \frac{\partial (vc_i^* / m)}{\partial y} \right] + \frac{\partial (\sigma c_i^*)}{\partial \sigma} \\ = m \left[\frac{\partial (mK_x \partial c_i^* / \partial x)}{\partial x} + \frac{\partial (mK_y \partial c_i^* / \partial y)}{\partial y} \right] \\ + \left(\frac{g}{p^*} \right)^2 \frac{\partial (\rho^2 K_z \partial c_i^* / \partial \sigma)}{\partial \sigma} \\ + Q + D + W + G + A, \end{aligned} \quad (1)$$

式中, $c_i^* = c_i p^*$, $p^* = p_s - p_t$, $\sigma = (p - p_t) / (p_s - p_t)$, c_i 是 SO_2 或 SO_4^{2-} 的浓度, p_s 是模式底层气压, p_t 是模式顶层气压, p 是 σ 层上的气压, σ 是 σ 坐标系中的垂直速度, m 代表 Lambert 地图投影因子, Q 是源强, D 、 W 、 G 、 A 分别代表干沉降、湿沉降、气相化学和液相化学过程所造成的物种浓度变化。

顶边界和侧边界设为

$$\begin{cases} n \cdot (Vc_i - \tilde{K} \nabla c_i) = n \cdot Vc_{i,b}, & n \cdot V < 0, \\ n \cdot (\tilde{K} \nabla c_i) = 0, & n \cdot V > 0, \end{cases} \quad (2)$$

底边界条件取为

$$n_{in} \cdot (\tilde{K} \nabla c_i) = Q_{i,a} + V_{i,d} c_i. \quad (3)$$

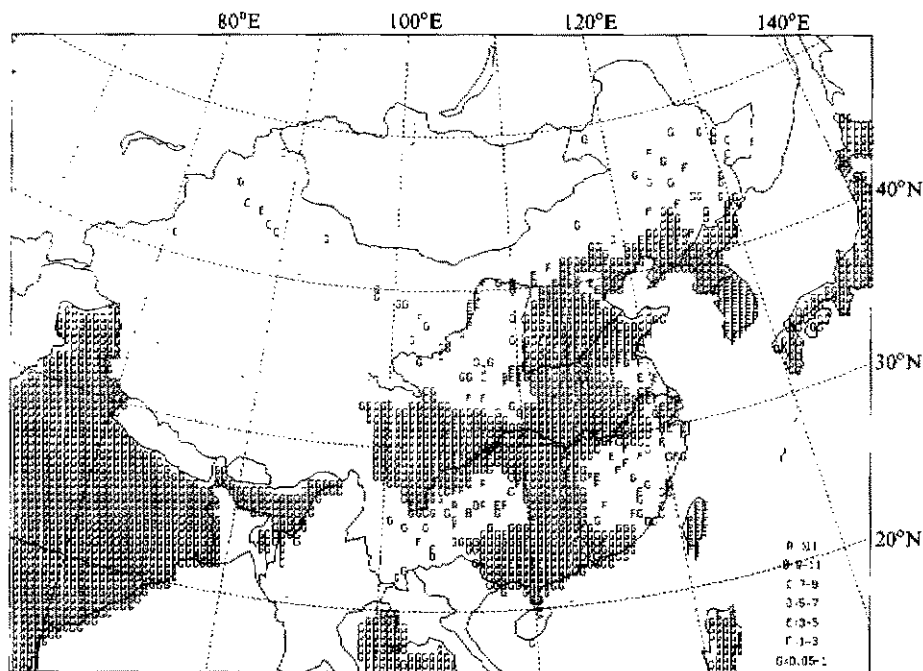
上两式中, n 和 n_{in} 分别是外法向矢量和垂直于地表指向内的矢量, $\tilde{K}$ 代表湍流扩散率张量, $c_{i,b}$ 表示背景浓度, $Q_{i,a}$ 面源源强, $V_{i,d}$ 是干沉积速度。

SO_2 的初始浓度取为其在混合层内达到均匀混合时的值, SO_4^{2-} 的初始浓度取为 0。

2.2.1 排放

模式考虑的大气污染排放物是 SO_2 及其转化产物 SO_4^{2-} , 采用 1993 和 1995 全国污染源统计资料, 该资料提供了模拟区域内所有省份、主要城市和电厂 SO_2 的年排放总量。模拟区域还包括了中国周围一些国家或地区, 它们的排放源资料来自文献[7]。

图 1 给出了 1995 年 SO_2 源强分布。1995 年全国 SO_2 排放总量约为 2 449 万 t, 源强最大值出现在重庆, 为 14.3 kg/s 。

图 1 模拟区域 1995 年 SO_2 源强分布单位: kg/s

2.2.2 输送

(1) 平流输送

平流项采用 Smolarkiewicz 的有限正定上游差分方法, 该方案具有形式简单、数值扩散小和计算效率高的优点^[8]。

(2) 湍流输送

湍流扩散系数的取值同文献[9]。垂直扩散项采用 Crank-Nikson 方案, 水平扩散项中心差方案。

2.2.3 转化

(1) 气相化学

根据独立的气相化学子模式^[10], 计算了不同条件(温度、水汽、光强、云及初始物质浓度)组合下 SO_2 的气相化学转化率, 得到了转化率的数据库, 直接由模式调用, 这样使问题得到大大简化, 既节省了计算时间, 又能满足计算精度要求。

(2) 液相化学

参照国内外的一些工作, SO_2 的液相化学转化率取为 $10\%/\text{h}$ ^[11], 这样, SO_2 的化学转化率 K_c 可表示成:

$$K_c = (1 - N_z)K_{cg} + N_z K_{ca}, \quad (4)$$

其中, N_z 表示总云量, K_{cg} 、 K_{ca} 分别代表气相化学转化率、液相化学转化率。

2.2.4 沉降

(1) 干沉降

采用干沉积速度 v_d 来描述干沉积过程。由于现有 v_d 的实际资料非常有限,远不能满足区域模式的时空分辨要求,本文利用常规气象资料和地表状况资料来计算区域干沉积速度分布,详见文献[12]。

(2) 湿沉降

模式将湿清除处理成线性过程,引入湿清除速率 K_w , 以下的经验公式^[11]表示

$$K_w = aP_r^b, \tag{5}$$

其中, P_r 为降水率 (mm/h), a 、 b 为经验常数, 对于 SO_2 和 SO_4^{2-} , a 、 b 值见表 1。

表 1 SO_2 和 SO_4^{2-} 湿清除速率公式中的 a 、 b 值

季节	$a (\text{SO}_2)$	$b (\text{SO}_2)$	$a (\text{SO}_4^{2-})$	$b (\text{SO}_4^{2-})$
夏	0.14	0.12	0.39	0.06
春、秋	0.036	0.53	0.091	0.27
冬	0.009	0.70	0.021	0.70

2.3 浓度场的计算

根据旬平均气象场计算 SO_2 、 SO_4^{2-} 的旬平均浓度 c_i , 通过算术平均得到相应的年均浓度 c_y , 计算公式如下:

$$c_y(\text{SO}_2) = \frac{1}{36} \sum_{i=1}^{36} c_i(\text{SO}_2), \tag{6}$$

$$c_y(\text{SO}_4^{2-}) = \frac{1}{36} \sum_{i=1}^{36} c_i(\text{SO}_4^{2-}). \tag{7}$$

3 模式验证

利用地面大气污染物浓度资料和酸沉降监测资料对所建立的区域输送模式进行检验, 进一步与目前西方的模式作比较, 保证所建立模式的合理性和可靠性。结果表明, 就 SO_2 浓度、降水中 SO_4^{2-} 浓度而言, 实测值和计算值的相关系数分别达到 0.70、0.78; 就硫沉降而言, RAIS-ASIA^[9]和本模式的计算结果的相关系数达 0.67。

3.1 实测资料验证

利用 1993 年 SO_2 年均地面浓度和降水中 SO_4^{2-} 浓度验证所建立的欧拉输送模式。对于 SO_2 地面浓度来说, 由于模式结果代表了 $50 \text{ km} \times 50 \text{ km}$ 网格上的平均浓度, 而实测站点分布在排放源集中的城市地区, 它们的观测值代表了小范围高浓度污染的平均值, 因此模式计算结果小于观测值, 直接比较两者数值的大小是没有意义的, 但可以从相关系数上分析两者的符合程度。表 2 给出了 SO_2 年均地面浓度的观测值和计算值及相关系数。可见, 二者相关系数达到 0.70, 表明模式的预测值和实测值的变化趋势符合较好。

表 3 为降水 SO_4^{2-} 浓度的实测结果和计算结果, 可以看出两者的变化趋势大体一致, 实测值和计算值的相关系数达到 0.78。

3.2 模式对比验证

由于目前中国的酸沉降监测资料尚不充分, 本文进一步将所建立的模式与亚洲酸雨

表 2 SO_2 年均地面浓度的计算值和观测值的比较 $\mu\text{g}/\text{m}^3$

城 市	计算值	观测值	计算值/观测值	城 市	计算值	观测值	计算值/观测值
广 州	26.7	59.0	0.45	河 池	14.4	100.0	0.14
深 圳	2.5	15.0	0.16	梧 州	11.0	134.0	0.08
韶 关	12.2	123.0	0.10	北 海	1.2	34.0	0.03
汕 头	5.3	35.0	0.15	玉 林	8.2	54.0	0.15
珠 海	2.7	17.0	0.16	百 色	4.6	86.0	0.05
河 源	9.3	18.0	0.52	柳 州	23.8	216.0	0.11
梅 州	3.0	35.0	0.09	安 顺	19.6	402.0	0.05
惠 州	3.1	15.0	0.21	贵 阳	49.7	475.0	0.10
中 山	5.3	32.0	0.17	六 盘 水	6.9	54.0	0.13
江 门	2.7	44.0	0.06	遵 义	28.5	304.0	0.09
湛 江	4.6	39.0	0.12	思 茅	1.6	3.0	0.52
茂 名	1.7	15.0	0.11	玉 溪	8.2	56.0	0.15
肇 庆	13.4	47.0	0.29	大 理	1.4	39.0	0.04
清 远	11.2	16.0	0.70	昆 明	6.6	52.0	0.13
阳 江	4.7	15.0	0.32	东 川	1.5	18.0	0.08
挂 林	10.8	72.0	0.15	个 旧	12.1	114.0	0.11
南 宁	7.0	85.0	0.08	楚 雄	3.4	52.0	0.06
相关系数 0.70				总测点数 93			

表 3 降水中 SO_4^{2-} 浓度的计算值和观测值的比较 mg/L

城 市	计算值	观测值	计算值/观测值	城 市	计算值	观测值	计算值/观测值
广 州	1.76	5.84	0.30	百 色	0.87	5.05	0.17
汕 头	0.67	5.43	0.12	北 海	0.32	5.05	0.06
韶 关	1.56	7.80	0.20	贵 阳	9.60	35.36	0.27
茂 名	0.36	5.49	0.07	遵 义	7.29	20.68	0.35
南 宁	1.02	6.83	0.15	思 茅	0.51	2.68	0.18
挂 林	1.73	5.14	0.34				
相关系数 0.78				总测点数 29			

模式 RAINS-ASIA^[9]作比较, 两个模式计算得到的硫沉降列于表 4 中, 表中列出了部分城市硫沉降的计算值。可见, 本模式的预测结果和 RAINS-ASIA 模式的预测结果在量级上大体一致, 两者的相关系数为 0.67。另外, 由于 RAINS-ASIA 模式采用的是 1990 年的源排放资料且水平网格距为 $1^\circ \times 1^\circ$, 而验证本模式采用的是 1993 年的源资料, 水平网格距为 $50 \text{ km} \times 50 \text{ km}$, 所以本模式结果略大于 RAINS-ASIA 模式结果。

以上资料验证和模式对比的结果表明本文建立的欧拉输送模式具有较好的模拟性能, 可以用来进行硫酸盐气溶胶分布的模拟。

4 模拟结果

根据研究的需要, 确定研究区划以中国行政区为界, 周边向外拓宽 $500 \sim 1000 \text{ km}$ 以考虑地区间大气污染物和酸沉降的相互影响。模拟区域覆盖面积为 $6000 \text{ km} \times 4450 \text{ km}$, 网格结构与气象模式一致。

4.1 硫酸盐浓度年均分布

图 2 是模拟得到的不同高度的 SO_4^{2-} 年均浓度分布。从图 2 可以看出, SO_4^{2-} 浓度分布相对比较均匀, 在城市和电厂附近的下风方向存在一些高值中心。城市所在地区的网格平均浓度在 $3 \sim 11 \mu\text{g}/\text{m}^3$, 最大值 $11 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 出现在重庆。远离城市的地方浓度较小, 一般低于 $3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 。从不同高度 SO_4^{2-} 浓度分布来看, SO_4^{2-} 大部分集中在边界层以内, 边界层以上浓度已经很小, 且高度越向上, 浓度分布越趋向均匀。在高空, SO_4^{2-} 受西风气流引导的痕迹非常明显。图 3 反映的是模拟区域内 317 个城市平均 SO_4^{2-} 浓度随高度的分布, 可以看出 3000 m 以下, SO_4^{2-} 浓度有两个极值中心; 3000 m 以上, SO_4^{2-} 浓度迅速减小并趋向均匀。

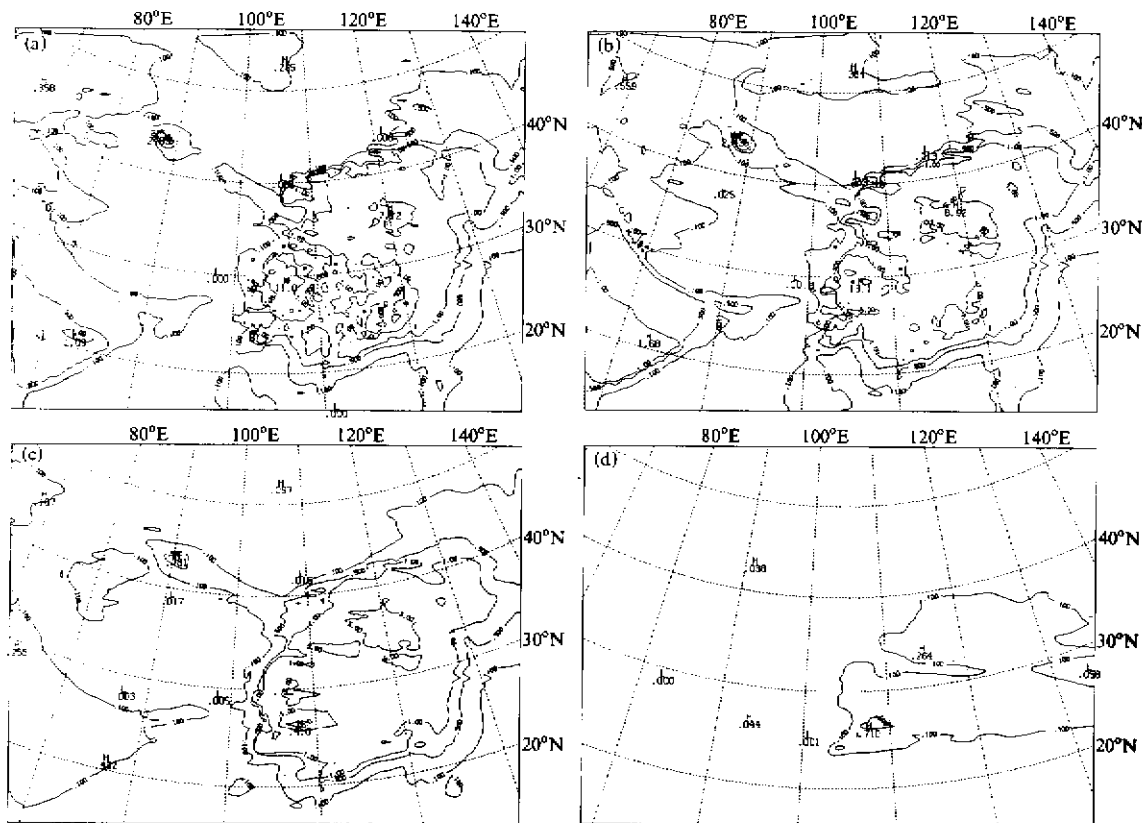


图 2 1995 年不同高度 SO_4^{2-} 平均浓度分布。单位: $\mu\text{g}/\text{m}^3$
(a) $H=40 \text{ m}$; (b) $H=400 \text{ m}$; (c) $H=1700 \text{ m}$; (d) $H=4600 \text{ m}$

为了进一步分析 SO_4^{2-} 浓度的总量特征, 图 4 给出了 SO_4^{2-} 柱浓度的分布。定义柱浓度为

$$c_{\text{y,v}}(\text{SO}_4^{2-}) = \int_0^Z c_{\text{y}}(\text{SO}_4^{2-}) dz, \quad (8)$$

式中, Z 表示模式顶高。

从图 4 可以看出, SO_4^{2-} 柱浓度分布为中国东半部高, 西部地区很低。四川、贵州、陕西、山东等省覆盖着浓度大值区, 并且可以看出西风气流引导的痕迹。在重庆有一个大值中心, 其值约为 26 mg/m^2 。 SO_4^{2-} 输送距离相对较远, 3 mg/m^2 等值线已经过日本半岛。

4.2 硫酸盐浓度季节变化

图 5 为春夏秋冬四个季节 SO_4^{2-} 柱浓度的分布, 可以看出, SO_4^{2-} 柱浓度具有明显的季节变化特征, 春秋季浓度小, 冬夏季浓度大, 反映了降雨量和 SO_2 转化速率的共同影响。冬季气温低, SO_2 的转化速率较小, 形成的 SO_4^{2-} 浓度也低, 但由于降雨量小, SO_4^{2-} 的湿

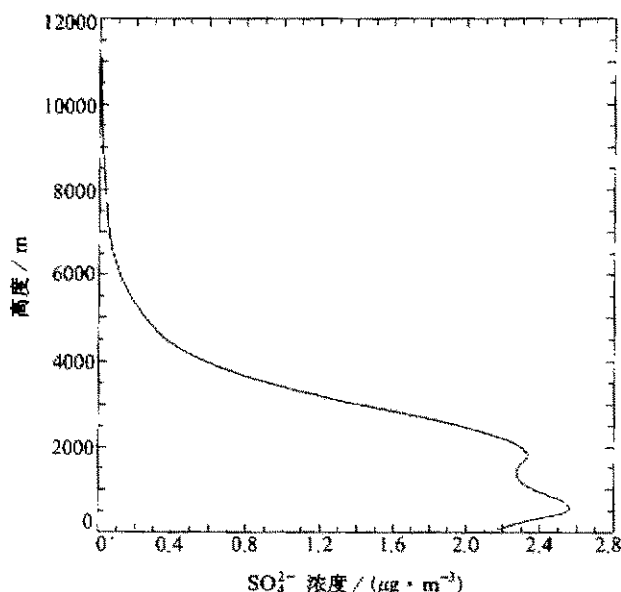


图 3 城市年平均 SO_4^{2-} 浓度随高度的分布
单位: $\mu\text{g}/\text{m}^3$

表 4 本模式和 RAINS-ASIA 模式计算的硫沉降

$\text{g} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{a}^{-1}$

城 市	本模式	RAINS-ASIA	本模式 / RAINS-ASIA	城 市	本模式	RAINS-ASIA	本模式 / RAINS-ASIA
广 州	4.99	1.90	2.62	河 池	3.15	1.00	3.15
深 圳	0.61	1.90	0.32	梧 州	2.27	1.30	1.75
韶 关	2.81	1.60	1.76	北 海	0.39	0.90	0.43
汕 头	1.08	0.90	1.20	玉 林	1.52	1.20	1.26
珠 海	0.96	2.10	0.46	百 色	1.11	1.30	0.86
河 源	2.35	1.20	1.96	柳 州	5.08	1.20	4.23
梅 州	1.10	1.10	1.00	香 港	2.39	2.30	1.04
惠 州	1.24	1.30	0.95	贵 阳	10.41	3.20	3.25
中 山	1.07	2.10	0.51	六 盘 水	1.63	2.80	0.58
江 门	0.98	2.20	0.45	遵 义	6.35	4.20	1.51
湛 江	1.58	1.10	1.44	安 顺	5.62	3.60	1.56
茂 名	0.57	1.20	0.47	铜 仁	2.50	2.90	0.86
肇 庆	3.02	1.60	1.89	毕 节	1.72	2.90	0.59
清 远	2.56	1.20	2.13	昆 明	1.45	0.70	2.07
阳 江	1.01	1.00	1.01	东 川	0.39	0.90	0.43
佛 山	1.83	1.90	0.96	个 旧	2.14	1.00	2.14
汕 尾	1.02	1.10	0.93	楚 雄	0.60	0.70	0.85
东 莞	2.55	1.60	1.60	玉 溪	1.52	0.70	2.17
桂 林	3.27	1.30	2.51	大 理	0.36	0.40	0.90
南 宁	1.34	1.20	1.12	思 茅	0.50	0.30	1.65
相关系数 0.67				总测点数 51			

清除速率较小, 结果造成 SO_4^{2-} 浓度较大; 夏季气温高, SO_2 的转化速率较大, 形

成的 SO_4^{2-} 浓度高, 但由于降雨量强, SO_4^{2-} 的湿清除速率较大, 造成 SO_4^{2-} 浓度并不是最大。图 6 给出的是城市季节平均 SO_4^{2-} 浓度随高度的分布, 可见, 不同季节的分布特征类似, 同样表现出春秋季节浓度小、冬夏季浓度大的特点。

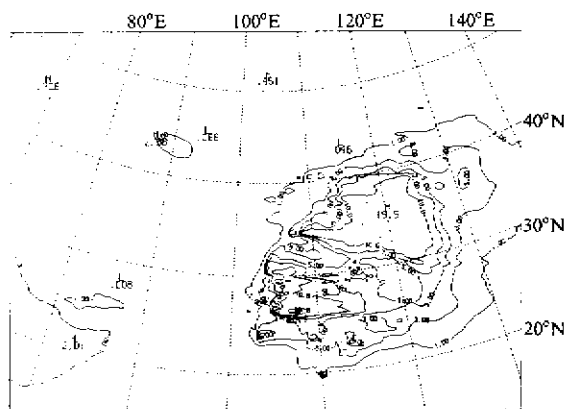


图 4 1995 年 SO_4^{2-} 柱浓度分布。单位: mg / m^2

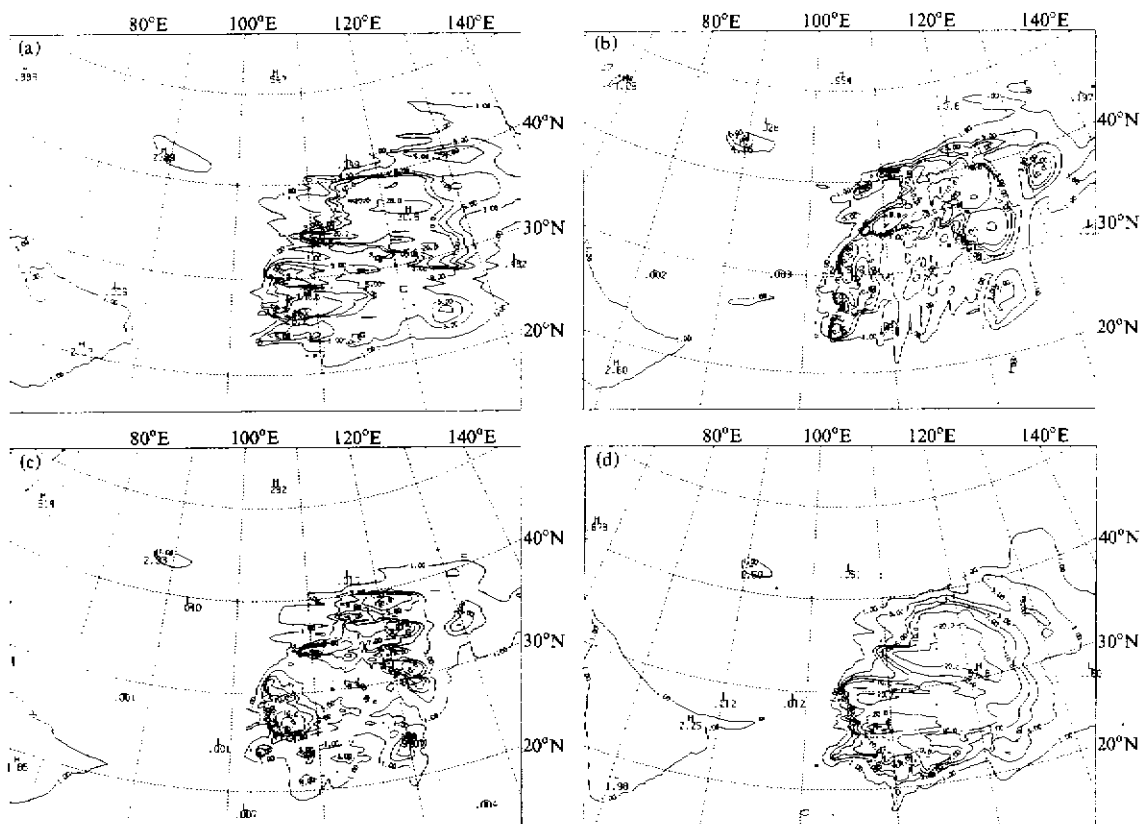


图 5 1995 年不同季节 SO_4^{2-} 柱浓度分布。单位: mg / m^2

(a) 春季; (b) 夏季; (c) 秋季; (d) 冬季

5 结论

本文首先建立了一个三维欧拉型排放/输送/转化/沉降模式。模式的主要特色是采用独立的气相化学模式计算各种不同条件下 SO_2 的转化速率(其结果可直接为欧拉模式调用), 并对液相化学和湿清除过程进行了参数化处理。这样使模式既考虑了大气化学过程的非线性, 又具有较高的计算效率, 能够方便地计算年(季)尺度的硫酸盐气溶胶 SO_4^{2-} 的浓度分布。进一步利用中尺度气象模式 MM4 和欧拉输送模式模拟了中国地区硫酸盐气溶胶的时空分布, 表明中国硫酸盐气溶胶主要分布在东部地区, 柱浓度最大值达到 $26 \text{ mg} / \text{m}^2$ 。受降水和气温因素的共同影响, SO_4^{2-} 柱浓度具有明显的季节变化特征。这些结果可以直接应用到考虑硫酸盐气溶胶气候效应的气候模式中去。

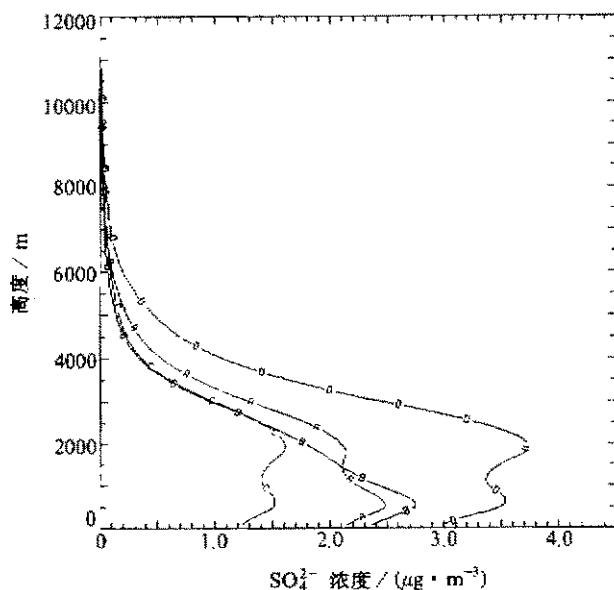


图6 城市季节平均 SO_4^{2-} 浓度随高度的分布
单位: $\mu\text{g} / \text{m}^3$, A: 春; B: 夏; C: 秋; D: 冬

参 考 文 献

- 1 IPCC, Climate Change 1994, Summary for policymakers and technical summary of the working group I Report, Cambridge University Press, 1994.
- 2 IPCC, Climate Change 1995, Summary for policymakers and technical summary of the working group I Report, Cambridge University Press, 1995.
- 3 Huang Meiyuan et al., Modelling studies on sulphur deposition and transport in East Asia, *Water, Soil and Pollution*, 1995, **86**(1), 22~29.
- 4 Wang Zifa et al., Sulfur distribution and transport in East Asia using Eulerian model, *Adv. Atmos. Sci.*, 1996, **13**(3), 399~409.
- 5 钱云等, SO_2 排放、硫酸盐气溶胶和气候变化, 地球科学进展, 1996, **12**(5), 440~446.
- 6 郑维忠等, 1992, 中尺度数值模式 MM4 模拟系统介绍, 南京: 南京大学出版社.
- 7 Nobuo Kato, Anthropogenic emissions of SO_2 and NO_x in Asia: emission inventories, *Atmos. Environ.*, 1992, **26A**(16), 2997~3107.
- 8 Piotr K. Smolackiewicz, A simple positive definite advection scheme with small implicit diffusion, *Mon. Wea. Rev.*, 1983, **111**, 479~486.
- 9 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.
- 10 王体健, 气相化学中的云盖效应, 环境化学, 1996, **15**(5), 385~390.
- 11 桑建国等, 大气扩散的数值计算, 北京: 气象出版社, 1992.
- 12 王体健, 李宗恺, 一种污染物的区域下沉积速度分布的计算方法, 南京大学学报, 1994, **30**(4), 745~752.
- 13 RAINS-ASIA user's manual, International Institute for Applied System (IIASA), A-2361 Laxenburg, Austria, 1994.

Characteristics of Sulphate Aerosol Distribution in China

Wang Tijian, Min Jinzhong and Sun Zhaobo

(Nanjing Institute of Meteorology, Nanjing 210044)

Li Zongkai and Jin Longshan

(Department of Atmospheric Sciences, Nanjing University, Nanjing 210093)

Abstract An eulerian emission / transport / transformation / deposition model is developed, which uses the independent gas phase chemistry submodel to compute transformation rates of SO_2 at various conditions, thus the database of conversion rates is constructed as the input of eulerian model. The processes of aqueous chemistry and wet scavenging are parameterized. Therefore, the model not only considers the nonlinearity of atmospheric chemistry but also has higher efficiency in calculating annual or seasonal averaged concentration of sulphate aerosol. Using the mesoscale model (MM4) and the eulerian model, the characteristics of sulphate aerosol distribution in China was investigated. The results can be easily applied to the climatic model in which the climatic effect of sulphate aerosol is included.

Key words: sulphate; aerosol; climatic effect