李杰,王自发,吴其重. 2010. 对流层 O₃区域输送的定量评估方法研究 [J]. 气候与环境研究, 15 (5): 529-540. Li Jie, Wang Zifa, Wu Qizhong. 2010. A study of the quantitative diagnosis for the regional transport of tropospheric O₃ concentrations [J]. Climatic and Environmental Research (in Chinese), 15 (5): 529-540.

对流层 O₃区域输送的定量评估方法研究

李杰^{1,2} 王自发^{1,2} 吴其重^{1,3}

1 中国科学院大气物理研究所竺可桢一南森国际研究中心,北京 100029

2 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,北京 100029

3 中国科学院研究生院,北京 100049

摘 要 主要介绍一个可用于化学输送模式的对流层 O₈来源和过程追踪技术。该方法可定量估算不同区域 的光化学反应通过输送过程对目标地区 O₈浓度的贡献,并且克服了光化学非线性特征对估算结果的影响。以 研究 2001 年中国南部和北部光化学生成 O₈的输送为例,通过与改进的敏感性分析方法比较,系统评估了该方 法的合理性。比较结果表明,两种方法的估算结果在水平、垂直分布和典型输送个例等方面具有良好的一致 性,说明污染物来源和过程追踪技术可以为量化区域输送对目标地区 O₈浓度的影响提供合理结果。个例模拟 分析的结果也表明,中国南部和北部光化学生成的 O₈可以通过输送对整个东亚 O₈产生重要影响,并且在不同 的季节呈现不同的特征。

关键词 对流层 O₃ 区域输送 污染物来源过程追踪技术 文章编号 1006-9585 (2010) 05-0529-12 中图分类号 X131 文献标识码 A

A Study of the Quantitative Diagnosis for the Regional Transport of Tropospheric O₃ Concentrations

LI Jie^{1, 2}, WANG Zifa^{1, 2}, and WU Qizhong^{1, 3}

- Nansen-Zhu International Research Centre, Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029
- 2 State Key Laboratory of Atmospheric Boundary Physics and Atmospheric Chemistry, Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029
- 3 Graduate University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049

Abstract An online tracer-tagged method coupled into a chemical transport model was described. Without the errors caused by the non-linear character of O_3 photochemistry, the online tracer-tagged method can be used to estimate the contributions from the photochemistry over various regions to the total O_3 concentrations in the targeted region in one simulation. To evaluate the results, taking the contributions from the photochemistry over the tagged northern and southern parts of China as an example, the online tracer-tagged method was compared with the revised sensitivity analysis. The comparison suggested that the online tracer-tagged method can reproduce the horizontal and vertical distributions of the contributions from two tagged regions to the O_3 concentrations in East Asia, and also

收稿日期 2010-03-27 收到, 2010-08-09 收到修定稿

资助项目 国家自然科学青年基金 40805051 和国家重点基础研究发展计划项目 2005CB422205

作者简介 李杰,男,1980年出生,博士,副研究员,主要从事区域大气环境研究。E-mail: lijie8074@gmail.com

capture the typical heavy regional transport episode. This indicated the tracer-tagged method in this study can be used to quantitatively assess the impact of the regional transport on the tropospheric O_3 . The analysis also showed that the photochemistry in the southern and northern parts of China had a noticeable impact on O_3 in East Asia, and varied with the seasons.

Key words tropospheric O_3 , regional transport, on-line tracer-tagged method

1 引言

近几十年来,由于经济发展和城市化进程加速,我国污染气体排放量显著增加,多种典型大 气污染(如光化学烟雾和灰霾)交替、耦合发生, 并呈复杂化和增长的趋势(罗云峰等,2002)。特 别是近年来,O₃和气溶胶浓度居高不下,区域性 的污染事件时有发生(李成才等,2003;Xu et al.,2008)。这使得污染物的区域输送影响评估成 为目前国内环境研究的重点和热点,并受到《国 家中长期科学和技术发展规划纲要(2006-2020)》的重点支持。

对流层 O₃是光化学烟雾的特征污染物和重要 指示剂,对人类健康、动植物生长和地球生态系 统有直接的影响。与平流层 O₃不同,对流层 O₃可 由氮氧化物(NO_x,包括 NO 和 NO₂)和可挥发 有机物(Volatile Organic Compounds, VOCs)通 过光化学反应生成,其分布受到排放源分布的影 响。对流层 O₃也可以随大气环流被输送至几十千 米甚至几千千米之外,因此成为目前国内外大气 污染区域乃至洲际输送研究的代表性物种。

针对 O_3 区域输送的定量评估,科学家利用敏 感性分析(即通过关闭目标污染源,比较两次模 拟之差)和过程分析等手段做了大量的数值模拟 工作。Streets et al. (2007)对 2008 年北京奥运会 期间北京 O_3 的数值模拟研究表明,周边地区在高 污染期间对北京 O_3 的影响达到 35%~60%;胡建 林和张远航(2005)模拟发现水平输送在长江三 角洲光化学污染中扮演十分重要的角色,同样的 现象在珠江三角洲也被发现(Lam et al.,2005); 甚至不同污染物高排放区域之间的输送也时有报 道,如 Wang et al. (2006)利用观测资料和数值 模式发现,长江三角洲对华北地区的输送可以达 到 5~15 μ L·m⁻³。然而近年来研究显示,敏感 性分析方法低估了目标污染源的实际贡献,其幅

度全球平均为40% (Grewe, 2004), 在我国东部 为10%~20% (He et al., 2008)。这主要是由于 光化学反应的非线性特征造成的,即两次模拟中 O₃的生成效率有明显变化。为了避免因关闭污染 源造成 O3生成效率变化所导致的预测结果误差, Wang et al. (1998)发展了一种污染物示踪技术并 将其成功应用于全球尺度平流层输入以及光化学 反应对对流层 O₃ 贡献的评估研究。Liu et al. (2002) 进一步利用该技术和全球化学输送模式 GEOS-CHEM 系统研究了亚洲污染物跨太平洋输 送的季节变化特征。在此基础上, Grewe (2004) 简化该方法以评估工业源、生物质燃烧和自然源 等对全球 10 hPa 以下冬季 O₃浓度的影响。Derwent et al. (2004)利用"O3标识"技术和拉格朗 日模型研究洲际输送对欧洲地面 O₃的贡献。类似 的方法也应用于 CAMx 等区域化学输送模式 (Yarwood et al., 1996)。在我国, Ma et al. (2002) 与江文华和马建中(2006) 等通过在模式 加入特定化学物种的示踪物评估不同排放源对目 标地区 O₃浓度的贡献,并且将其应用于北京周边 地区一次污染输送过程的研究。

本研究将一个污染物来源和过程追踪技术引 入自主发展的嵌套网格空气质量模式中,用于定 量评估区域输送的影响;该方法可以保证在评估 的过程中,O₃生成效率没有发生变化。同时本文 也对该方法的合理性进行系统的评估。需要指出 的是,本方法所解析的是目标地区O₃浓度的形成 区域,即输送过程中的不同地区上空光化学生成 的O₃对模拟的总O₃浓度的贡献,而非不同地区排 放源的贡献,这一点与其他方法不同。同时本方 法还可以在一次模拟中解析多个目标区域的贡献, 相对于敏感性分析方法,大大节约了计算时间。

2 研究方法

2.1 模式简介

本文通过在嵌套网格空气质量模式系统

(Nested Air Quality Prediction Modeling System, NAQPMS) 中耦合一个在线实时污染物来源和过 程追踪技术,实现定量评估区域输送影响的目的。 NAQPMS 是中国科学院大气物理研究所基于一个 三维欧拉硫化物输送模式自主发展的多尺度、多 物种模拟系统(王自发等,1997),其详细考虑了 污染物的传输、扩散、化学转化和干湿沉降等过 程。在模式中,垂直输送和扩散利用 Crank-Nicholson 方法求解,水平平流和扩散采用 Walcek 方案; 气相化学机制为 CBM-Z 机理, 相对于 目前广泛使用的 CBM-IV 机理, CBM-Z 的化学物 种由 34 种增加至 71 种,化学反应由 81 个增加至 134个, CBM-Z 克服了 CBM-IV 机制在模拟 O3的 长距离输送方面的局限性(Zaveri and Peters, 1999)。该模式系统的详细介绍参见王自发等 (2006)。需要指出的是,为了更准确地模拟在对 流情况下湍流扩散的影响,本次模拟将原先的垂 直扩散模块升级为非对称混合方案 ACM-2。 NAQPMS采用中尺度气象模式 WRF-ARW3.0 模 拟天气过程,为污染物化学输送逐时提供气象场 输入,包括风向、风速、温度、气压、水汽、降 水和云量等参数。

化学输送模式中,污染物人为排放源、植物 燃烧和生物排放源取自于对流层化学物质分析项 目(REanalysis of the TROpospheric chemical composition, RETRO)准备的 2000 年全球大气 污染物排放清单(Pulles et al., 2007),其分辨率 为 0.5° (纬度)× 0.5° (经度)。碳氢化合物的自 然源排放取自全球散发物质名录行动 GEIA(the Global Emission Inventory Activity)(Guenther et al., 1995)。

2.2 方法介绍

在敏感性试验方法中,目标源的贡献由对其 消减前后两次模拟的污染物浓度差来获得。理论 上讲,研究区域每个污染源贡献之和与基本模拟 (即同时包括所有污染源)污染物浓度的结果应该 相等,然而模拟研究显示,他们之间有一偏差: 对于 O₃来讲,在对流层中下部,各个污染源贡献 之和较基本模拟的浓度偏低 40%,在对流层顶则 高估 5% (Grewe, 2004)。偏差很大程度是由于 敏感性试验方法对目标源和其他源之间相互作用 的忽视所引起的(主要是化学反应),而且这种作 用对 O₃生成效率的影响是非线性的。He et al. (2008)的模拟研究显示,分别消减中国污染源 100%和10%所预测的中国污染源对 O₃贡献之间 相差10%~20%。因此 Derwent et al. (2004)认 为敏感性试验方法更适合应用于评估污染物消减 政策的采取可能对污染物浓度的影响。本文介绍 的污染物来源和过程追踪技术将避免敏感性试验 方法所带来的上述偏差,可以用于评估在当前状 态下,各个污染源对于 O₃的贡献。

在化学输送模式中,污染物浓度通过输送方程[方程(1)]计算:

在具体的计算中,计算方案进一步将各物理 化学过程分解为两个部分,即污染物浓度增加和 减少过程。例如对于平流过程则可分解为流入和 流出过程;化学过程分解为化学生成和消耗过程; 由于干湿沉降为污染物的主要汇,因此其只能分 解为消耗过程。因此,方程(1)可表示为:

$$rac{\partial C}{\partial t} = F_{
m iadv+conv+diff} + P_{
m chem} + E_{
m emis} - F_{
m oadv+conv+diff} - L_{
m chem} - L_{
m drv+wet}$$
,

(2)

其中, $F_{iadv+conv+diff}$ 代表来自其他格点通过平流、对流和扩散过程流入目标格点通量所导致单位时间内 O_3 浓度的变化; $F_{oadv+conv+diff}$ 则为目标格点污染物的流出通量导致 O_3 浓度的变化; P_{chem} 和 L_{chem} 分别为目标格点污染物的化学生成和消耗速率; E_{emis} 和 $L_{drv+wet}$ 分别为干湿沉降引起 O_3 浓度的变

化,以上各项的单位为 μL • m⁻³ • s⁻¹。模式通过 计算方程(2)的各个部分最终得出目标格点污染 物的浓度。

如前言所述,本方法估算的是不同地区上空 光化学生成的 O₃通过输送过程对模拟的总 O₃浓度 的贡献,因此基于方程(2),在第*i*个地区上空 生成 O₃对目标格点的贡献可由方程(3)计算:

$$\frac{\mathrm{d}(C \cdot R_{i})}{\mathrm{d}t} = F_{\mathrm{iadv+conv+diff}} \cdot R_{\mathrm{u}i} + P_{i\mathrm{chem}} - (F_{\mathrm{oadv+conv+diff}} - L_{\mathrm{chem}} - L_{\mathrm{dry+wet}}) \cdot R_{i},$$
(3)

其中, *R_i* 为第*i* 个标识源贡献在目标格点占 O₃浓 度的百分比, *R_{ui}*为平流、湍流和对流流入量(即 目标格点的相应过程的上游格点)中第*i* 个标识 源贡献占 O₃浓度的百分比, *F_{iadv+conv+diff}* • *R_{ui}* 代表 为来源于在第*i* 个地区光化学过程生成的 O₃在单 位时间通过平流、对流和扩散过程由其他格点流 入目标格点的量。

对于第 i 个地区上空 O₃ 的生成速率 P_{ichem} ,可 由方程(4)计算:

其中, k_1 、 k_2 为化学反应速率,c为反应物浓度。 被标识的 O_3 只在该标识区域生成,在其他区域的 化学生成量为 0。

通过方程(3)和(4)可以发现,如果目标 格点在标识区域*i*内,在第*i*个地区上空生成O₃ 对目标格点的贡献主要有光化学反应和输送过程 决定,反之,则其贡献的改变来自于输送过程。

方程(4)还可以发现,由于 HO₂、RO₂和 NO 等物种浓度均取自于原模式计算结果,其O₃ 生成效率和原模拟保持一致,因此,估算的光化 学生成 O₃的贡献避免 O₃生成效率变化所导致的 误差。

对于区域模式来讲,来自上边界、侧边界以 及初始条件的 O₃也是 O₃的主要来源。为了更好地 揭示 O₃的来源,本研究对这些 O₃来源也进行解 析;解析同样遵守方程(3),但与光化学生成 O₃ 贡献所不同的是,这些标识的 O₃只经历平流、扩 散、沉降和化学消耗等过程,即*i*等于 0。在本文 中,*i*等于 1、2 和 3 分别表示来自上边界、侧边 界和初始条件 O₃的贡献,而*i*≥4则表示在模拟区 域内标识的 O₃生成区域。

该方法在侧边界条件的处理时,侧边界 O₃输 入的贡献为1,其他标识源的贡献为0;在对流层 顶处,平流层 O₃的贡献为1,其他源的贡献为0; 在模式模拟的初始时刻,初始条件贡献为1,其他 源贡献为0。

污染物来源和过程追踪技术可以定量评估 在任一格点任一时刻来自模拟区域外的输送和 模拟区域内不同地区光化学产生的 O₃ 对总 O₃ 浓度的贡献(*R_i*),与敏感性分析相比,其避免 了由于两次模拟导致的 O₃生成效率的变化所引 起的偏差,有利于有针对性的制定区域污染控 制措施。目前该方法已应用于针对北京奥运会 空气质量控制的 CAREBeijing 大型试验(2006 年 8~9 月)。

最后需要指出的是,本方法估算的是在目前的 大气状态下,各 O₃生成区域的贡献;而敏感性分析 则揭示的是,未来大气对于在可能的消减措施的总 体响应情况。一个典型的例子是,敏感性分析常估 算在都市地区冬季污染源对 O₃的影响(不是贡献) 为负值;而在污染物来源和过程追踪技术中,每个 O₃生成区域对 O₃的贡献永远大于等于 0。

2.3 误差分析

由于被标识源贡献为化学输送模式的诊断结 果,并未有直接的观测结果与之比较,因此本文 采用 Grewe (2004)提出的基于敏感性分析结果 的误差分析方法。

在传统的敏感性分析中,区域 i 光化学产生 O_3 的贡献 \overline{R}_i 可由方程 (6) 计算:

$$\overline{R}_i = \frac{C - C_i}{C} \times 100\%, \qquad (6)$$

其中, C 为包含所有污染源时模式模拟的 O₃体积 混合比浓度, C_i 为去除区域 *i* 污染源后的模拟结 果。为了克服 2.2 节所介绍的化学非线性造成各 污染源贡献之和与基本模拟的 O₃浓度有偏差这一 问题,本研究根据 Grewe (2004)的研究,将敏 感性分析预测的区域 *i* 光化学产生 O₃的贡献 \overline{R}_{ic} 按 方程 (7) 调整为:

$$\overline{R}_{ic} = \frac{1 - R_1 - R_2 - R_3}{\sum \overline{R}_i} \overline{R}_i.$$
(7)

污染物来源和过程追踪技术预测结果的相对误差

E_a则可由方程(8)计算求得:

$$E_{\rm a} = \overline{R}_{ic} - R_i. \tag{8}$$

2.4 模式试验

利用上述模拟系统和污染物来源和过程追踪 技术,对东亚地区 2001 年 O₃的来源进行了为期 1 年的模拟,并对污染物来源和过程追踪技术进行 误差分析,以评估本研究中污染物来源和过程追 踪技术的合理性。模拟区域设置如图1所示,其 中心经纬度为 (35°N, 110°E), 水平格距是 81 km×81 km。在垂直方向上 NAQPMS 有 20 层, 其中最下面 8 层位于距地面 2 km 的范围内,模式 顶高度为海拔 20 km。初始与边界条件基于全球 三维化学输送模式 MOZARTv2.4 的模拟结果, 该模式由美国大气研究中心 (NCAR)、德国马普 气象研究所 (MPI) 及美国大气海洋局 (NOAA) 地球流体力学研究实验室(GFDL)共同开发完 成。同时为了减少初始条件的扰动对模拟结果的 影响,NAQPMS的启动时间设定为2000年9月 1日。

图1同时展示了本次模拟中被标识的O₃生成 区域的分布情况,包括中国北部(NCHN)、中国 南部(SCHN)和剩余地区(OTH)。同时来自模 拟区域侧边界以及平流层O₃的输送也被标识,其 他被标识源限于篇幅不一一列出。



图1 NAQPMS的模拟区域、NO_x的排放速率(红色阴影)以 及标识的O₃形成区域(NCHN:中国北部; SCHN:中国南 部; OTH:剩余地区)

Fig. 1 Model domain, NO_x emission rates (red shaded areas), and the marked O_3 photochemically produced regions (NCHN: the northern part of China; SCHN: the southern part of China; OTH: the other regions)

3 结果与分析

3.1 中国南部和北部光化学生成 O₃的水平分布特征

533

图 2 展示了 2001 年夏季 (6~8 月) 污染物 来源和过程追踪技术及敏感性分析预测的中国南 部(SCHN)和北部(NCHN)光化学生成 O₃对东 亚边界层 (<2 km) O₃浓度(单位: µL・m⁻³) 的贡献,同时也展示了污染物来源和过程追踪技 术相对误差的水平分布。如图 2a 所示,污染物来 源和过程追踪技术显示, SCHN 光化学反应生成 O3的影响范围覆盖整个东亚,在朝鲜半岛和日本 其贡献达到 5~10 µL·m⁻³,这种分布特征与东 亚特殊的季风系统有关。夏季我国南部受到印度 洋和中国南海气团的影响显著增多,这些气团可 以将中国南部产生的 O₃向北输送至中国北部、朝 鲜半岛和日本,这也说明在我国北方观测到的夏 季 O₃最大值(温天雪等, 2007)与来自南方的长 距离输送密切相关。图 2a 也显示了在(30°N~ 35°N, 100°E~120°E)(我国四川、河南、安徽和 山东)有一高值区,其最大值超过 30 µL·m⁻³, 这与 Li et al. (2008)的研究结果一致。与敏感性 分析相比(图 2b),污染物来源和过程追踪技术 在影响范围、大小和高值区分布等方面具有很好 的一致性, -10%~5%的相对误差也证实这一点 (图 2c)。NCHN 生成 O₃的影响范围主要集中在中 国北部、西伯利亚以及日本北部等地区,在华北北 部和东北南部达到最大值(20~30 µL・m⁻³) (图 2d 和 2e), 污染物来源和过程追踪技术及敏感 性分析对这一特征的模拟也比较一致,相对误差 $在-10\%\sim5\%$ (图 2f)。

在冬季(12月至次年2月),SCHN 生成 O₃ 的贡献在模拟区域内低于 15 μ L·m⁻³,最大值位 于中国华南地区(图 3a 和 3b)。与夏季相比,其 影响范围缩小至 35°N 以南,并扩展至中南半岛。 NSCN 生成的 O₃(图 3d 和 3e)在冬季偏北风的 影响下,向南输送至我国华东以及华南等地区, 这与 Lam et al. (2001)在香港的观测结果一致; 然而由于太阳辐射较弱、温度较低,其影响强度 较低(1~5 μ L·m⁻³)。比较污染物来源和过程 追踪技术及敏感性分析的结果,可以发现总体分 布特征和强度较为吻合,但随着输送距离的增大,



图 2 2001 年夏季中国南部(左栏)和北部(右栏)的光化学反应对东亚边界层 O₃浓度的影响:(a)和(d)为污染物来源和过程追踪 技术的结果;(b)和(e)为敏感性分析的结果;(c)和(f)为污染物来源和过程追踪技术相对误差

Fig. 2 Spatial distributions of the contributions from the chemically produced O_3 in SCHN (left column) and NCHN (right column) by (a, d) the tagged-tracer method, (b, e) sensitivity analysis in the boundary layer over East Asia, and (c, f) the estimated errors caused by the tagged-tracer method

污染物来源和过程追踪技术的结果较敏感性分析 略微偏低。例如污染物来源和过程追踪技术估算 的 NSCN 在中南半岛的贡献源偏低 5 μL•m⁻³。

图4展示了在模拟期间两种方法估算结果相 关系数的水平分布情况。在大部分地区,两者的 相关系数在0.7以上;特别是在标志源贡献较大 的区域,其值达到了0.9以上。这也说明本文介 绍的污染物来源和过程追踪技术能够合理解析不 同区域光化学过程对 O₃浓度贡献的水平分布,可 以为研究东亚 O₃区域输送提供必要的基础。

3.2 中国南部和北部光化学生成 Q₃的垂直分布特征

为了评估污染物来源和过程追踪技术在不同 高度的模拟能力,图 5~8分别展示了夏季和冬季 中国南部和北部光化学产生的 O₃沿 118°E 和 140°E 高度一纬度剖面图。如图 5c 和 5f、图 6c 和 6f、 图 7c 和 7f、图 8c 和 8f 所示,污染物来源和过程 追踪技术与敏感性分析的结果较为符合,误差在 $-10\%\sim10\%$ 的范围内,基本再现了不同季节在 源区(118°E)和下游地区(140°E)SCHN和 NCHN光化学产生 O₃的垂直变化情况。由于光化 学反应活跃和较强的对流活动,夏季SCHN和 NCHN产生高浓度的O₃可以向上输送至对流层中 上部(10~15 km)。在118°E,SCHN和NCHN的贡献在地表达到 30 μ L·m⁻³(图 5),在10 km 高度减小到 5 μ L·m⁻³;在下游的140°E处,受 到输送过程中上升气流的影响,SCHN贡献的高 值区逐渐上移至 2~6 km 处(5~10 μ L·m⁻³) (图 6)。冬季太阳辐射减弱,在蒙古大陆高压的控



图 3 同图 2, 但为冬季 Fig. 3 Similar to Fig. 2, but for winter



图 4 2001 年污染物来源和过程追踪技术及敏感性分析对 (a) 中国南部和 (b) 北部的光化学反应对东亚边界层 O₃浓度影响的估算结 果的相关系数

Fig. 4 Correlation coefficients of the contributions of O_3 produced in (a) SCHN and (b) NCHN to O_3 in boundary layer over East Asia in 2001 estimated by the tagged-tracer method and sensitivity analysis

制下,SCHN 和 NCHN 生成的 O_3 堆积在对流层 低层 (<4 km) (图 7 和图 8),其贡献在 118°E 处 低于 20 μ L • m⁻³,在 140°E 处低于 5 μ L • m⁻³, 这也说明了冬季东亚 O_3 的输送主要集中在边界 层内。

3.3 典型区域输送事件

为了评估污染物来源和过程追踪技术对于典型区域污染事件的模拟能力,图 9 和 10 分别展示 了污染物来源和过程追踪技术及敏感性分析估算 中国南部和北部光化学生成 O₃在北京 (39.43°N,







Fig. 6 Similar to Fig. 5, but for winter



图 7 同图 5, 但为 140°E Fig. 7 Similar to Fig. 5, but for 140°E



图 8 同图 6,但为 140°E Fig. 8 Similar to Fig. 6, but for 140°E



图 9 中国南部(左栏)和北部(右栏)光化学生成 O₃在北京的高度一时间剖面:(a)和(c)为污染物来源和过程追踪技术的估算结果;(b)和(d)为敏感性分析的估算结果

Fig. 9 The height-time sections of the contributions from the produced O_3 in SCHN (left column) and NCHN (right column) estimated by (a, c) the tracer-tagged method and (b, d) sensitivity analysis to O_3 in Beijing



图 10 同图 9, 但为黄山

Fig. 10 Similar to Fig. 9, but for Mt. Huang

116.46°E)和黄山(30.14°N,118.15°E)的高度 一时间剖面图。选择北京和黄山是因为它们分别 处于中国的两大污染物高排放区——环渤海和长 三角地区,具备一定的代表性。其他台站的结果 (济南和广州)的结果与此类似(略)。

从图 9a 和 9b 中可以看到,区域 O₃输送事件 频频出现在夏季,且高值主要集中在 2 km 以下, 最大值达到 25 μ L·m⁻³。在秋季(特别是 9 月), 输送通道则位于 2~6 km 的高度。与 SCHN 不 同,NCHN 对北京的影响(图 9c 和 9d) 整年都 位于 0~3 km 的高度,最大值可达 50 μ L·m⁻³。

与北京不同,NCHN (图 10c 和 10d) 对黄山 O_a的影响较小,且主要集中在 9 月的边界层内 (10 ~15 μ L·m⁻³);SCHN 的影响贯穿整个模拟期间, 在个别输送事件中,其值甚至超过 50 μ L·m⁻³, 并输送至 12 km 以上的自由大气。

比较两种方法可以发现,污染物来源和过程 追踪技术在区域污染输送事件出现的时间、高度 以及量级等方面与敏感性分析的结果具有较好的 一致性。如在北京 8 月末至 9 月初,敏感性分析 估算 NCHN 对北京的影响出现一个高值(>50 μ L·m⁻³),且主要集中在 3 km 以下,SCHN 的 输送通道出现在 3~6 km (5~15 μ L·m⁻³),这 一特征在污染物来源和过程追踪技术的估算结果 中得到再现。

4 小结

本文简要介绍了一个可用于化学输送模式的 对流层 O₃污染物来源和过程追踪技术。该方法可 以同时定量评估在任一区域任一时刻来自模拟区 域外的输送(侧边界输入和平流层—对流层交换) 和模拟区域内不同地区光化学产生的 O₃对总 O₃浓 度的贡献,并克服了 O₃光化学非线性对估算结果 的影响。

本文同时以 2001 年中国南部和北部光化学产 生 O₃的输送过程为例,利用改进的敏感性分析方 法,对污染物来源和过程追踪技术的结果进行系 统评估和误差分析。结果显示,两种方法的估算 结果在水平垂直分布和典型输送个例等方面具有 良好的一致性,大部分地区其相关系数在 0.7 以 上,源区甚至超过 0.9,并且绝对值也较为接近。 这说明了污染物来源和过程追踪技术的合理性, 可以为量化区域输送对目标地区 O₃浓度影响提供 合理的结果。

个例分析显示,中国南部光化学过程对 O₃浓 度的影响出现夏季高于冬季的特征。在夏季,其 影响范围包括中国东部、朝鲜半岛和日本地区的 整个对流层大气;最大值(>30 µL・m⁻³)位于 我国四川—河南—安徽—山东一线,向西北太平洋 的输送通道位于 2~6 km 高度 (5~10 µL • m⁻³); 在冬季,其影响范围在 35°N 以南 (1~15 µL・m⁻³), 向下游的输送也集中在边界层。产生于中国北部 的 O₃夏季最大值在华北北部和东北南部(20~30 $\mu L \cdot m^{-3}$);冬季则向南输送至我国华东和华南等 地区 $(1 \sim 5 \mu L \cdot m^{-3})$ 。需要指出的是,本文的 主要目的为介绍污染物来源和过程追踪技术并评 估其合理性, 而未将 O₃的模拟值与观测值进行比 较,因此上述关于中国南部和北部光化学反应对 东亚 O₃影响的结果还需进一步的验证,然而这并 不影响对污染物来源和过程追踪技术本身合理性 的评估。

参考文献 (References)

- Derwent R G, Stevenson D S, Collins W J, et al. 2004. Intercontinental transport and the origins of the ozone observed at surface sites in Europe [J]. Atmos. Environ., 38: 1891–1901.
- Grewe V. 2004. Technical Note: A diagnostic for ozone contributions of various NO_x emissions in multi-decadal chemistry climate model simulations [J]. Atmos. Chem. Phys., 4: 729 736.
- Guenther A, Hewitt C N, Erickson D, et al. 1995. A global model of natural volatile organic compound emissions [J]. J. Geophys. Res., 100 (D5): 8873-8892.
- He Y, Uno I, Wang Z, et al. 2008. Significant impact of the East Asia monsoon on ozone seasonal behavior in the boundary layer of eastern China and the west Pacific region [J]. Atmos. Chem. Phys., 8: 1-13.
- 胡建林,张远航. 2005. 长江三角洲地区臭氧生成过程分析 [J]. 环境科学研究, 18 (2): 13-18. Hu Jianlin, Zhang Yuanhang. 2005. Process analysis of ozone formation in the Yangtze River Delta [J]. Research of Environment Sciences (in Chinese), 18 (2): 13-18.
- 江文华,马建中. 2006. 区域化学输送模型中 NO_x和 O₃源示踪法 的引入 [J]. 气象学报,64 (3):281-291. Jiang Wenhua, Ma

Jianzhong. Implementation of NO_x and O₃ key source tracing method in a regional chemical transport model [J]. Acta Meteorologica Sinica (in Chinese), 64 (3): 281-291.

- Lam K S, Wang T J, Chan L Y, et al. 2001. Flow patterns influencing the seasonal behavior of surface ozone and carbon monoxide at a coastal site near Hong Kong [J]. Atmos. Environ., 35: 3121-3135.
- Lam K S, Wang T J, Wu C L, et al. 2005. Study on an ozone episode in hot season in Hong Kong and trans-boundary air pollution over Pearl River Delta region of China [J]. Atmos. Environ., 39: 1967-1977.
- 李成才,毛节泰,刘启汉,等. 2003. 利用 MODIS 研究中国东 部地区气溶胶光学厚度的分布和季节变化特征 [J]. 科学通报, 48 (19): 2094-2100. Li Chengcai, Mao Jietai, Liu Qihan, et al. 2003. Characteristics of distribution and seasonal variation of aerosol optical depth in eastern China with MODIS products [J]. Chinese Science Bulletin (in Chinese), 48 (19): 2094-2100.
- Li J, Wang Z, Akimoto H, et al. 2008. Near-ground ozone source attributions and outflow in central eastern China during MTX2006 [J]. Atmos. Chem. Phys., 8: 7335-7351.
- Liu H, Jacob D J, Chan L Y, et al. 2002. Sources of tropospheric ozone along the Asian Pacific Rim: An analysis of ozonesonde observations [J]. J. Geophys. Res., 107 (D21), 4573, doi: 10.1029/2001JD002005.
- 罗云峰,吕达仁,周秀骥,等. 2002. 30 年来我国大气气溶胶光 学厚度平均分布特征分析 [J]. 大气科学,26 (6):721-729. Luo Yunfeng,Lü Daren, Zhou Xiuji, et al. 2002. Analyses on the spatial distribution of aerosol optical depth over China in recent 30 years [J]. Chinese Journal of Atmospheric Sciences (in Chinese), 26 (6):721-729.
- Ma J, Liu H, Hauglustaine D. 2002. Summertime tropospheric ozone over China simulated with a regional chemical transport model 2. Source contributions and budget [J]. J. Geophys. Res., 107 (D22), doi: 10.1029/2001JD001355.
- Pulles T M, Bolscher V, Brand R, et al. 2007. Assessment of global emissions from fuel combustion in the final decades of the 20th Century. Application of the emission inventory model TEAM [R]. Netherlands, Apeldoorn: Technical Report A-R0132B, Netherlands Organisation for Applied Research (TNO).
- Streets D, Fu J, Jang C, et al. 2007. Air quality during the 2008

Beijing Olympic Games [J]. Atmos. Environ., 41: 480-492.

- Wang Y, Logan J A, Jacob D J. 1998. Global simulation of tropospheric O₃ - NO_x - hydrocarbon chemistry 2. Model evaluation and global ozone Budget [J]. J. Geophys. Res., 103: 10727 - 10755.
- 王自发,黄美元,何东阳,等. 1997. 关于我国和东亚酸性物质的输送研究 I. 三维欧拉污染物输送实用模式 [J]. 大气科学,21 (3):367-378. Wang Zifa, Huang Meiyuan, He Dongyang, et al. 1997. Studies on transport of acid substance in China and East Asia Part I: 3-D Eulerian transport model for pollutants [J]. Chinese Journal of Atmospheric Sciences (Scientia Atmospherica Sinica) (in Chinese), 21 (3): 367-378.
- Wang Z, Li J, Wang X, et al. 2006. Modeling of regional high ozone episode observed at two mountain sites (Mt. Tai and Huang) in East China [J]. J. Atmos. Chem., 55 (3): 253 -272.
- 王自发,谢付莹,王喜全,等. 2006. 嵌套网格空气质量预报模 式系统的发展与应用 [J]. 大气科学,30 (5):778-790.
 Wang Zifa, Xie Fuying, Wang Xiquan, et al. Development and application of Nested Air Quality Prediction Modeling System [J]. Chinese Journal of Atmospheric Sciences (in Chinese), 30 (5):778-790.
- 温天雪,王跃思,徐宏辉,等. 2007. 夏末秋初北京市区与背景 区大气污染物的对比分析 [J]. 环境科学研究, 20 (5): 7-11. Wen Tianxue, Wang Yuesi, Xu Honghui, et al. Comparison of the characteristics of ambient pollutants in urban and background region in Beijing during August and September [J]. Research of Environmental Sciences (in Chinese), 20 (5): 7-11.
- Xu X, Lin W, Wang T, et al. 2008. Long-term trend of surface ozone at a regional background station in eastern China 1991 – 2006: Enhanced variability [J]. Atmos. Chem. Phys. Discuss., 8: 215 – 243.
- Yarwood G. Stoeckenius T E, Wilson G, et al. 1996. Development of a methodology to assess geographic and temporal ozone control strategies for the South Coast Air Basin [R]. USA, Diamond Bar: ENVIRON International Corporation report to the South Coast Air Quality Management District.
- Zaveri R A, Peters L K. 1999. A new lumped structure photochemical mechanism for large-scale applications [J]. J. Geophys. Res., 104: 30387-30415.