唐晓,王自发,朱江,等. 2010. 蒙特卡罗不确定性分析在 O₃ 模拟中的初步应用 [J]. 气候与环境研究,15 (5):541-550. Tang Xiao, Wang Zifa, Zhu Jiang, et al. Preliminary application of Monte Carlo uncertainty analysis in O₃ simulation [J]. Climatic and Environmental Research (in Chinese),15 (5):541-550.

蒙特卡罗不确定性分析在 O3 模拟中的初步应用

唐晓^{1,2,3} 王自发^{1,2} 朱江¹ 吴其重^{2,3} GBAGUIDI Alex²

- 1 中国科学院大气物理研究所大气边界层物理与大气化学国家重点试验室,北京 100029
- 2 中国科学院大气物理研究所竺可桢一南森国际中心,北京 100029
- 3 中国科学院研究生院,北京 100049

摘 要 利用蒙特卡罗不确定性分析方法,分析了嵌套网格空气质量模式系统(NAQPMS/IAP)中 154 个模式输入变量不确定性对臭氧模拟的影响,量化了模式在北京奥运会期间臭氧模拟的不确定性,并确定出了主要不确定性因子。结果表明:(1) 在奥运会期间(2008 年 8 月 8 日~2008 年 8 月 24 日),北京城区臭氧模拟的平均不确定性为 19 ppb,不确定性存在明显的日变化特征,白天不确定性大,夜间不确定性小。(2) 在白天,北京城区近地层臭氧模拟最重要的不确定性来源是局地前体物排放,其次是 NO_2 光解系数、风向、北京周边前体物排放和垂直扩散系数。另外,地面约 150 m 以上,对臭氧模拟影响最大的不确定性因子是风向和北京周边前体物排放;夜间,北京城区近地层臭氧模拟的最大不确定性来源是局地 NO_2 排放和垂直扩散系数。

关键词 蒙特卡罗方法 不确定性分析 臭氧模拟 北京奥运会

文章编号 1006-9585 (2010) 05-0541-10 中图分类号 X16 文献标识码 A

Preliminary Application of Monte Carlo Uncertainty Analysis in O₃ Simulation

TANG Xiao^{1,3}, WANG Zifa^{1,2}, ZHU Jiang ¹, WU Qizhong^{2,3}, and GBAGUIDI Alex²

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

Abstract The Nested Air Quality Prediction Modeling System (NAQPMS) has been applied to the routine air quality forecast in Beijing during the Olympic Games. Monte Carlo method is used to analyze the uncertainty of ozone simulation of NAQPMS during the Olympic Games, from 8 to 24 Aug 2008. Latin hypercube sampling has been used for multi-variables sampling, and 50 ensemble runs have been made with 154 parameter uncertainties being considered together. By the temporal average, the most important parameter to the surface ozone output uncertainty in Beijing is the local precursor emissions during the day time. Other important factors include NO₂ photolysis

收稿日期 2009-08-01 收到, 2010-07-20 收到修定稿

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

作者简介 唐晓,男,1981 年出生,博士,主要从事大气污染数值预报的不确定性分析和资料同化研究。E-mail: tangxiao@mail. iap. ac. cn

coefficient, wind direction, precursor emissions from the surrounding areas of Beijing, and vertical diffusion coefficient. The wind direction and precursor emissions from the surrounding areas of Beijing have the greatest impact on the uncertainty of daytime ozone simulation at higher levels (above about 150 m). The main uncertainty factors in ozone simulation at night are local NO_x emissions and vertical diffusion coefficient. Given the predefined input uncertainties, the average uncertainty of ozone simulation is 19 ppb, ranging from 2 ppb to 49 ppb.

Key words Monte Carlo method, uncertainty analysis, ozone simulation, Beijing Olympic Games

1 引言

近年来,空气质量模型在研究我国大气污染 演变规律、建立空气质量管理对策方面开始发挥 越来越重要的作用,一些城市(北京、上海、沈 阳等) 已经开展了业务化的空气质量数值预报工 作。然而,空气质量模式的不确定性仍然在很大 程度上制约着空气质量模式的应用,模式不确定 性超过一定范围会使基于数值模拟的空气质量预 报和空气质量管理措施存在较大风险。Sillman et al. (1995) 分析了亚特兰大空气质量模拟的不确 定性后发现,输入不确定性可以改变甚至消除控 制策略的有效性; Sistla et al. (1996) 研究发现, 采用两种不同垂直混合方案模拟得到的臭氧控制 策略是相互矛盾的,这种输入气象要素的不确定 性对控制措施的效果影响可达 1/3。因此,为了更 加有效而合理的利用空气质量模式, 有必要分析 模式的不确定性,评估和分析模式不确定性的范 围及其主要来源。定量评估模拟或预报的不确定 性,可以为模拟结果提供一个置信区间,为决策 提供风险信息;了解模式不确定性的主要来源, 可以为模式发展和预报的改进指出方向。

针对空气质量模式的不确定性分析,国内外已经开展一些方法和应用上的研究。Mallet and Sportisse (2006) 利用包含多种物理参数化方案和数值框架的 Polyphemus 空气质量模式系统,通过组合不同参数化方案以及数值框架形成集合模拟,评估了由物理参数化和数值近似导致的光化学传输模拟的不确定性。李磊等(2008)通过多模式比较方法评估了酸沉降模式在东亚模拟中的不确定性。Gao et al. (1995)通过直接解耦方法(DDM)分析化学反应系数对区域酸沉降模式(RADM)不确定性的影响。林彩燕等(2009)通过逐步调整模式输入和参数的敏感性试验方法,

估计参数化过程和输入资料不确定性对沙尘模式 模拟的影响。在上述研究中, 多模式不确定性分 析方法能很好反应模式参数化方面的不确定性, 其缺点是需要很多模式才能实现,并且较难考虑 初始场、排放源等因素的不确定性。直接解耦方 法和逐步调整参数的方法可以同时考虑输入数据 和模式参数的不确定性,但由于其采用一次改变 某一个参数的方式, 当需要分析的模式变量维数 非常大时, 计算代价非常大; 并且分析都是基于 变量某个点的泰勒展开,要求变量的变化范围很 小才能满足泰勒展开条件,而对于环境模式变量, 其变化范围往往很大。近年来基于蒙特卡罗方法 发展的全局不确定性分析方法,能在很大程度上 克服上述缺点。首先,蒙特卡罗方法能同时分析 上百个模式输入和参数的不确定性,而且计算代 价相对较小; 另外, 蒙特卡罗分析不是基于参数 的某一个特定点,而是基于整个参数空间(不确 定性范围),通过在整个参数空间进行大量抽样, 来分析模式输出对整个参数不确定性的响应,是 一种全局的不确定性分析方法。Hanna et al. (1998, 2001) 利用蒙特卡罗方法分析了上百个输 入变量对 UAM-IV 模型预报不确定性的影响,其 中包括了排放源、初始和边界条件、气象条件、 化学反应等多种不确定性来源。

本研究建立在 Hanna et al. (1998, 2001)的不确定性分析方法基础上,将蒙特卡罗分析方法应用于嵌套网格空气质量模式系统 (NAQPMS),引入适合多变量和样本数较少的拉丁超立方抽样方法,分析估计 NAQPMS 在奥运会期间臭氧模拟的不确定性及其主要来源,以及输入不确定性对臭氧模拟影响的时空分布特征。

2 模式介绍和排放源处理

本研究使用的嵌套网格空气质量预报模拟系

统(NAQPMS) 是中国科学院大气物理所设计开 发的多尺度空气质量模式,模式包括平流扩散、 气溶胶、干湿沉降、气相化学等物理化学模块, 采用双向嵌套方法实现区域尺度到城市尺度的模 拟。该模式系统已成功应用于研究东亚区域臭氧 的季节变化和收支特征(Li et al., 2007),以及 台湾局地海陆风、山谷风对当地臭氧浓度分布的 影响 (Wang et al., 2000), 并已在北京、上海、 沈阳等城市应用于业务化空气质量预报(王自发 等,2006)。模式在垂直方向采用地形跟随坐标, 近地层高度约为 25 m, 在 5 km 以下有 12 层, 模 式层顶的高度为 15 km。模式的气象场驱动由第 五代中尺度静力/非静力模式 (MM5) 提供 (Grell et al., 1994), MM5 的区域设置、分辨率 和空气质量模式相同,图1是模式区域设置和观 测站点分布图。模拟区域以北京为中心,采用3 层嵌套。第一区域包括整个东亚区域,水平分辨 率为 81 km×81 km; 第二区域包括整个华北地 区,水平分辨率为27 km×27 km;第三区域包括 北京、天津、唐山区域,水平分辨率为9km×9 km。模拟的起始时间为 2008 年 8 月 8 日 00 时 (北京时间,下同)至2008年8月24日23时, 初始条件由中国科学院大气物理研究所的北京奥 运会空气质量实时预报系统提供。

模拟使用的排放源清单由 3 个部分构成: (1) 以 TRACE-P 东亚排放源 (Streets et al., 2003) 为基础更新得到的 INTEX-B 东亚排放源 (Zhang et al., 2009), 水平分辨率为 $0.5^{\circ} \times 0.5^{\circ}$, 为模式

提供区域背景的排放源量; (2) 基于 2004 年统计得到的北京市局地排放源量,数据来源为北京市环境保护局; (3) 北京本地电厂和周边主要点源排放源量,数据来源于清华大学 (Hao et al.,2007)。针对北京奥运会期间施行的大气污染控制措施,本研究根据北京市人民政府公布的"北京奥运会期间空气质量保障措施通告"中的污染源减排措施,对清单中相应的排放源进行扣除。为了将排放源清单转换为空气质量模拟所需的三维网格化排放源,本研究采用美国 MCNC 开发的SMOKE 排放源模型 (Houyoux et al.,2000,2004)来整合排放源清单数据。

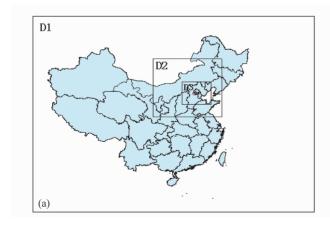
3 蒙特卡罗不确定性分析方法介绍

蒙特卡罗模拟方法通过对模式输入不确定性 范围(概率密度函数)的随机抽样,形成一个基 于模式输入不确定性的集合模拟,模式预报是基 于模式输入不确定性的预报结果,能提供模拟的 不确定性信息。下面简要介绍蒙特卡罗不确定性 分析的主要步骤,分为如下 3 个部分:

3.1 模式输入不确定性的概率描述

大气污染的输送和转化积分过程,可以表示为:

 $c^{k} = M_{k}(c^{0}, p_{1}, p_{2}, \dots, p_{N}) + q,$ (1) 其中,c 是模拟输出的污染物浓度,M 是表征模式输送和化学转化的数值积分函数,q 代表模式误差,k 表示模式积分时间步,p 是模式输入参数,



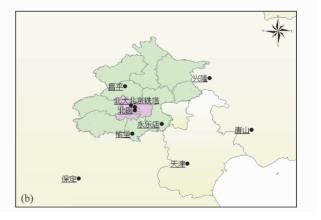


图 1 (a) NAQPMS模式区域设置; (b) 分析区域(浅紫色)和观测站点(黑点)分布

Fig. 1 (a) Configuration of the three nested domains of NAQPMS; (b) distribution of the analysis area (light purple) and the monitoring stations (dots)

包含排放源、气象场、边界条件以及干湿沉降参数等。模式输入不确定性可以用一个概率密度函数(如正态分布函数,对数正态分布函数)来表示,公式可以转换为

 $f_k{}^c = M_k(c^0, f_{P_1}, f_{P_2}, \cdots, f_{P_N}) + f_q$, (2) 其中 f 代表模式输入与输出不确定性的概率密度函数。对于分布范围较大的变量(如环境变量),一般采用对数正态分布来描述其不确定性,对于分布范围较小的变量(如某些气象变量),一般采用正态分布来描述其不确定性(Hanna et al.,1998)。目前仍然缺乏详细、定量的模式输入不确定性信息,模式输入不确定性的估计仍然是不确定性分析的一个关键难点,很多研究是根据一些统计信息,同时结合经验进行估计(Hanna et al.,1998,2001;Moore and Londergan,2001;Beekmann and Derognat,2003),本文的模式输入不确定性估计将在第四部分介绍。

3.2 随机抽样与集合模拟

随机抽样是对估计得到的模式输入不确定性的概率密度函数进行随机取样,得到一组随机样本,作为模式输入变量不确定性的近似。公式(2)中的概率密度函数(f)即可用一组随机样本代替:

$$f_{p_i} \rightarrow [p_{i1}, p_{i2}, \dots, p_{in}] = A_{p_i},$$
 (3)
其中 i 表示参数的序号, n 为样本数大小。将随机抽样得到的一组随机样本作为模式输入进行集合模拟,公式(2)可以转化为离散形式:

 $A_{c^k} = M_k(c^0, A_{\rho_1}, A_{\rho_2}, \cdots, A_{\rho_N}) + A_q$, (4) 公式 (4) 即为不确定性传输方程。本研究采用拉丁超立方随机抽样方法(Macay et al., 1979),同时参考 Hanna et al. (1998) 以及 Helton and Davis (2003)的研究,每个概率密度函数的随机取样数为 50 个。

3.3 不确定性评估

为了评估不同模式输入对模式输出的影响大

小,采用 Spearman 分级相关系数 (SPRCC) 统 计模式输入样本和输出样本的相关关系。其计算 公式如下:

$$\rho = \frac{\sum_{i} (R_{i} - \overline{R})(S_{i} - \overline{S})(S_{i} - \overline{S})}{\sqrt{\sum_{i} (R_{i} - \overline{R})^{2}} \sqrt{\sum_{i} (S_{i} - \overline{S})^{2}}},$$

$$i = 1, \dots, N,$$
(5)

其中, R_i 是集合模拟中第i个模拟输出污染物浓度在整个集合浓度中的级别数(即大小顺序,如最大值的级别数为 1), S_i 是集合模拟中第i个模拟中输入参数值在整个参数集合样本中的级别数。SPRCC的优点是将原始数据进行分级转换,减小非线性以及极值对分析的影响,并且易于计算。

4 模式输入不确定性的估计

模式输入不确定性的估计指确定模式输入不 确定性的概率分布函数和振幅。本文不确定性分 析包含 154 个模式输入变量和参数,其不确定性 特征估计见表 1。概率密度函数形式和 Hanna et al. (1998) 一致,分布范围大的排放源、初始条 件等变量采用对数正态分布,分布范围小的温度、 相对湿度等变量采用正态分布。输入不确定性振 幅(标准差)估计分为5个部分:1)气象变量不 确定性估计:采用北京大学、北京大学医学部、 昌平、榆垡、永乐店5个站点的地面气象观测资 料,统计得到 MM5 在奥运会期间平均模拟误差, 作为气象变量的不确定性范围。2) 排放源不确定 性估计:以 Streets et al. (2003)对 TRACE-P东 亚排放源清单的不确定性估计为参考,考虑到一 些奥运会临时减排措施未能准确量化, 我们估计 奥运会期间的排放源不确定性会大于 TRACE-P 东亚排放源清单的不确定性。3)模式参数不确定

表 1 输入参数不确定性设置

Table 1 Configuration of input parameter uncertainties

	气象场				排放源				模式参数			初始条件				
	风向	风谏	担由	相对湿度	隆水	SO ₂	NO _x	CO	VOC 也本地周边	垂直扩散系数	干沉降 系数	, 0,4,	SO:	NO	CO V	<i>1</i> 00
不确定性范															0.5	
围(标准差) 概率密度函数	N	L-N	N	N	I NI	INIIN	LNILN	II NII N	N IN IN	IN	IN	I -N	LNI	LNI	IN I	N

注: 其中 N 代表正态分布, L-N 代表对数正态分布; 不确定性范围包括 95%置信区间。

性估计: 干沉降模拟采用 Wesely (1989) 方案, 其不确定性估计和 Beekmann and Derognat (2003) 一致。垂直扩散系数的不确定性,Hanna et al. (1998)、Moore et al. (2001) 和 Beekmann et al. (2003) 估计范围为 0.25~0.50,本研究取这些研究的中间值 0.35。4) 化学反应常数不确定性估计:与光解不相关反应常数的不确定性范围取为 0.2,光解系数取为 0.3,因为光解系数的不确定性不仅来自分子的吸收截面和量子产率,也来自气象模拟的不确定性(如辐射),不确定性稍大。估计的不确定性范围与 Hanna et al. (1998)和 Moore and Londergan (2001) 研究相符。5)初始条件不确定估计:根据 NAQPMS 初始时刻模拟误差选定为 0.5。

5 主要结果

5.1 不确定性的主要来源

为了区分模式输入不确定性对模式输出不确 定性的相对影响大小,以输入随机样本和集合预 报样本的相关系数平均值作为分级评价参数,其 计算方法如:

$$\overline{\rho} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^{n} \rho_i$$

其中,i 为小时步数,n 是总的统计小时数, ρ_i 是第 i 小时模式输出和输入样本的相关系数,计算方法如公式(5) 所示。为了排除由有限样本导致

的虚假相关性,用 154 组独立随机样本作为参考,计算独立随机样本与集合预报样本的相关系数平均值 $\bar{\rho}$,以其最大值作为显著相关标准。在分析时间段内(10 时至 15 时)显著相关标准为 0.2。表 2 是根据显著相关标准确定的不同地区臭氧模拟的主要不确定性来源。

在北京城区,影响臭氧模拟的最重要不确定 性因子是北京局地 VOC 排放量, 平均相关系数达 到 0.41, 其次是 NO₂光解系数和北京局地 NO_x排 放源,相关系数分别为0.38、0.37。另外,风向、 非北京 NO_x排放源和垂直扩散系数对北京城区臭 氧模拟不确定性也有重要影响。北京局地 VOC 和 NO_x排放源对臭氧模拟不确定性的重要影响表明 精确估计该因子对于北京城区的臭氧模拟具有非 常重要的作用。在北京郊区的3个站点(昌平、 榆垡、永乐店),影响最大的模式输入因子都是风 向。北京北部郊区站点(昌平)臭氧模拟不确定 性受北京前体物排放影响较大,而北京东南部郊 区站点(榆垡和永乐店)受非北京前体物排放影 响较大。郊区局地的前体物排放量较小,由风向 决定的城市地区前体物和臭氧输送路径对其臭氧 浓度有非常重要的作用,不确定性分析结果很好 体现了风向在这些地区的重要性。在北京周边的3 个站点(天津、唐山、保定), 非北京的前体物排 放是最重要的影响因子。在唐山、保定,风向是 重要的不确定性因子, 在天津, 风速则是重要的 不确定性因子。另外,表2结果表明北京的前体

表 2 在不同分析站点或区域,NAQPMS 模式输入不确定性在白天(10 时至 15 时)对臭氧模拟不确定性影响大小的分级表 Table 2 The rank of the impact on the uncertainty of daytime ozone simulation from the input uncertainties of NAQPMS at different sites

	模式输入不确定性的重要性分级								
区域	1	2	3	4	5	6			
北京城区	北京 VOC 排放源	NO ₂ 光解系数	北京 NO _x 排放源	风向	非北京 NO _x 排放源	垂直扩散系数			
天津	非北京 VOC 排放源	非北京 NO_x 排放源	NO ₂ 光解系数	风速	北京 VOC 排放源	温度			
唐山	非北京 NO _x 排放源	风向	NO ₂ 光解系数	$R(NO+O_3)$	_	_			
保定	非北京 NO _x 排放源	非北京 VOC 排放源	风向	$R(NO+O_3)$	北京 VOC 排放源	NO ₂ 光解系数			
昌平	风向	北京 NOx 排放源	NO ₂ 光解系数	风速	_	_			
榆垡	风向	NO ₂ 光解系数	非北京 NO _x 排放源	垂直扩散系数	$R (NO+O_3)$				
永乐店	风向	非北京 VOC 排放源	NO ₂ 光解系数	$R (NO+O_3)$	垂直扩散系数	_			
兴隆	风向	NO2 光解系数	非北京 NO _x 排放源	非北京 VOC 排放源	_	_			

注:其中北京城区采用北京大学、北京大学医学部、中国科学院大气物理研究所铁塔分部 3 个站点平均值来进行分析, $R(NO+O_3)$ 为光化学反应: $O_3+NO=NO_2+O_2$ 。

物排放对周边站点臭氧模拟不确定性也有不可忽略的影响, NO_2 光解系数和 $R(NO+O_3)$ 也是重要的不确定性因子。对于周边的郊区站点(兴隆),最大不确定性因子是风向,其次是 NO_2 光解系数和非北京的前体物排放。

表3给出了对北京城区不同高度臭氧模拟影响最大的不确定性因子。在不同高度层上,臭氧模拟的主要不确定性来源不同。在近地层(第一层),影响最大的是北京局地排放的前体物和 NO₂ 光解系数以及风向和非北京前体物排放。随着高度增加,风向对臭氧模拟不确定性的影响增大,在第三层以上,风向是对臭氧模拟影响最大的模式输入,另外,随着高度增加,局地前体物排放对臭氧模拟的影响减小,非北京排放源对臭氧模拟的影响增大。这说明,北京城区高层臭氧模拟更容易受到气象场和周边排放源的影响。

5.2 输入不确定性对模拟影响的时间变化特征

模式输入不确定性在模式积分过程对模拟结果的影响会不断变化,分析这种变化特征是了解模式输入不确定性在模式积分中传播特点的关键。在本研究中,通过计算每小时集合预报样本与模式输入随机样本的相关系数[计算方法同公式(5)],了解几类主要模式不确定来源对臭氧模拟的影响的时间变化特征。

5.2.1 排放源不确定性的影响

图 2 是 3 类排放源和北京城区臭氧模拟不确定性的相关性时间序列。从图中可以看出,前体物排放和臭氧模拟的相关性存在明显的日变化特征。在白天,北京局地 VOC 排放量和臭氧浓度有强的正相关,一般在正午左右达到峰值,这说明

北京局地 VOC 排放量的不确定性对白天臭氧模拟 影响很大,特别是对正午左右的臭氧峰值。北京 局地 NO_x排放量和白天臭氧浓度存在较强的负相 关,这种负相关关系从早晨开始会逐步减弱,到 正午时刻左右达到最低, 这表明在臭氧浓度逐渐 升高的时段,北京局地 NO_x排放量的不确定性对 臭氧模拟的相对影响在逐步减小。此外, 周边 NO。排放量的不确定性对北京城区正午左右的臭 氧模拟也有一定影响。在夜间,北京局地 VOC 排 放量和北京周边 NOz 排放量的不确定性对臭氧模 拟影响很小,而北京局地 NO_x排放量的不确定性 对夜间臭氧模拟影响很大,相关系数绝对值高于 0.6。这主要是由于夜间城区臭氧浓度变化由反应 $NO+O_3=NO_2+O_2$ 主导, VOC 以及输送对臭氧 浓度变化影响很小, 其不确定性对臭氧模拟影响 也会很小。

上述不确定来源和臭氧模拟的相关性关系也反映目前模式中臭氧生成和前体物的敏感性关系。白天局地排放 VOC 和臭氧浓度的正相关关系说明增加局地 VOC 排放量将会导致臭氧模拟浓度的升高,而局地 NO_x排放量和臭氧浓度的负相关关系说明增加北京局地 NO_x排放量将会导致北京城区臭氧模拟浓度的降低。这种敏感性关系是否和实际大气的敏感性关系一致,需要对模式模拟进行详细验证,本文并不详细讨论。

5.2.2 模式参数不确定性的影响

图 3 是 NO₂光解系数和垂直扩散系数的随机 样本和北京城区臭氧集合预报样本的相关性时间 序列。从图中可以看出,在白天正午左右和某些 夜间时段,垂直扩散系数的不确定性对臭氧模拟

表 3 北京城区不同高度上,NAQPMS 模式输入不确定性对白天(10 时至 15 时)臭氧模拟不确定性影响大小的分级表 Table 3 The rank of impacts on the uncertainty of daytime ozone simulation from the input uncertainties of NAQPMS in the urban area of Beijing at different levels

	模式输入不确定性的重要性分级									
北京城区不同高度层	1	2	3	4	5	6				
第一层 (25 m 左右)	北京 VOC 排放源	NO ₂ 光解系数	北京 NO _x 排放源	风向	非北京 NO _x 排放源	垂直扩散系数				
第二层 (75 m 左右)	北京 VOC 排放源	NO ₂ 光解系数	风向	北京 NO _x 排放源	非北京 NO _x 排放源	垂直扩散系数				
第三层 (150 m 左右)	风向	NO ₂ 光解系数	北京 VOC 排放源	北京 NO_x 排放源	非北京 NO_x 排放源	_				
第四层 (275 m 左右)	风向	NO ₂ 光解系数	非北京 NO_x 排放源	_	_	_				
第五层 (550 m 左右)	风向	非北京 NOx 排放源	NO ₂ 光解系数	_	_	_				
第六层 (1000 m 左右)	风向	非北京 NOx 排放源	风速	_	_	_				
第七层 (1625 m 左右)	风向	风速	非北京 NO _x 排放源	_	_	_				

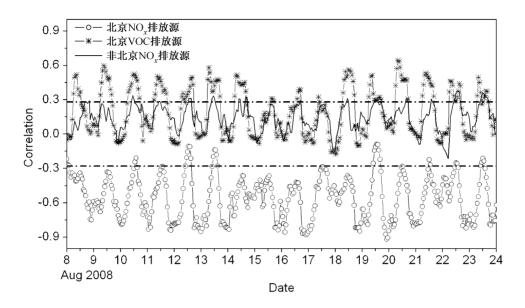


图 2 北京城区臭氧模拟不确定性和 3 类前体物排放不确定性的相关性时间序列(2008 年 8 月 8 日 00 时至 24 日 23 时) Fig. 2 The time series of the correlations between the three types of precursor emissions and ozone uncertainty in the urban area of Beijing (from 1200 LST 8 Aug to 1100 LST 23 Aug 2008)

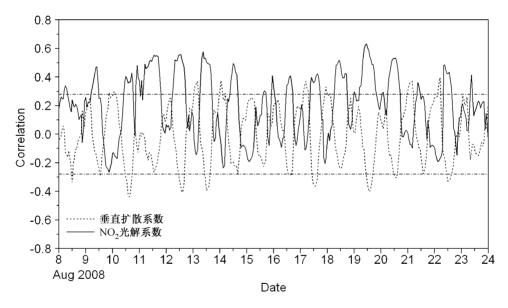


图 3 北京城区臭氧浓度和模式输入参数不确定性的相关性时间序列

Fig. 3 The time series of the correlations between ozone uncertainty in the urban area of Beijing and the uncertainties of model parameters

有一定影响,敏感性关系呈现正负交替的变化特征。这主要是由城区臭氧模拟浓度和前提物的垂直分布在白天和夜间的差异造成的。在白天,城区近地层臭氧和前提物浓度高,垂直混合增强会增强近地层臭氧和前提物的向上扩散,导致近地层臭氧浓度降低。在夜间,城区近地层臭氧浓度低,而消耗臭氧的 NO。浓度高,高层臭氧浓度高而 NO。浓度低,垂直混合增强会增强高层臭氧的向下扩散和近

地层 NO₂浓度降低。在图 3 中,NO₂光解系数不确定性在白天时段对臭氧模拟的影响很大,一般在中午左右达到峰值,这说明 NO₂光解系数不确定性对正午左右的臭氧峰值模拟的影响非常大。

5.2.3 初始条件不确定性的影响

在 5.1 节中,整个模拟时间段内臭氧初始条件不确定性对臭氧模拟影响较小,但初始条件不确定性一直是空气质量预报的关注点,很多同化

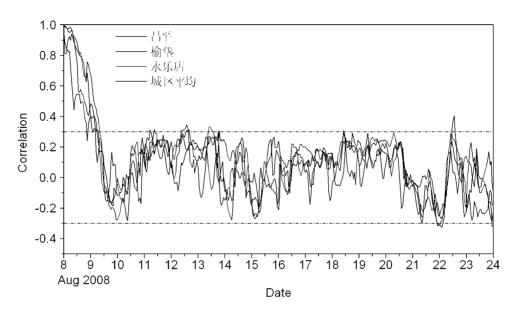


图 4 初始条件不确定性和北京城区、榆垡、永乐店、昌平的臭氧模拟的相关性时间序列

Fig. 4 The time series of the correlations between the uncertainty of initial condition and the ozone uncertainty in Changping, Yufa, Yongledian, and the urban area of Beijing

试验尝试通过减小初始条件的不确定性来改进预报。在此,图 4 提供了臭氧初始条件不确定性在北京城区、榆垡、永乐店、昌平 4 个区域或站点对臭氧模拟影响的时间序列。从图中可以看出,在前 24 h 的模拟中,臭氧初始条件不确定性对臭氧模拟影响很大,这种影响随着模式积分会迅速减小,在 24 h 后,臭氧初始条件不确定性很难超过显著影响的标准。这应该是由大气污染过程的耗散特点决定的,初始浓度的影响会随扩散、沉降等过程而迅速减小。从以上结果也可以看出,通过同化或其它方法减小臭氧初始条件的不确定性,具有改进 24 h 臭氧预报的潜力。

5.3 臭氧模拟的不确定性估计

前面分析侧重不同模式输入对臭氧模拟影响的相对大小及其时间变化特征,下面估计由输入不确定性导致的臭氧模拟不确定性。图 5 是北京城区臭氧模拟不确定性随时间的变化。在整个模拟期间,臭氧模拟不确定性振幅的平均值为 19 ppb (10⁻⁹),最小值为 2 ppb,最大值达到 49 ppb,存在明显的时间变化特征,在臭氧浓度高的时段不确定性较大。导致这种变化特征的因素较为复杂,可能是臭氧高浓度时段对很多模式输入不确定性因子都很敏感。在夜间,臭氧模拟的不确定性较小,主要是由于影响夜间臭氧浓度的不

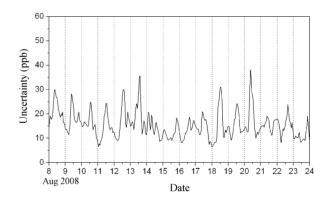


图 5 北京城区平均臭氧浓度模拟不确定性随时间的变化,其中黑实线代表模拟中每个小时的臭氧模拟的不确定性大小,不确定性为集合模拟的标准差

Fig. 5 The temporal variation of the uncertainty of the average ozone concentrations in the urban area of Beijing

确定性因子较少,主要是反应($NO+O_3=NO_2+O_2$)和垂直扩散系数,而光解系数、VOC 排放源等因子不确定性的影响很小。

图 6 是整个模拟期间臭氧平均浓度模拟不确定性的空间分布。可以看出,不确定性空间分布很不均匀,在前体物排放强度大的区域(如北京城区、天津城区),不确定性大。这说明前体物排放量的不确定性对臭氧平均浓度模拟的影响很大,在排放强度大的地方,臭氧生成对前体物排放量的不确定性更加敏感。另外,这种不确定性的空

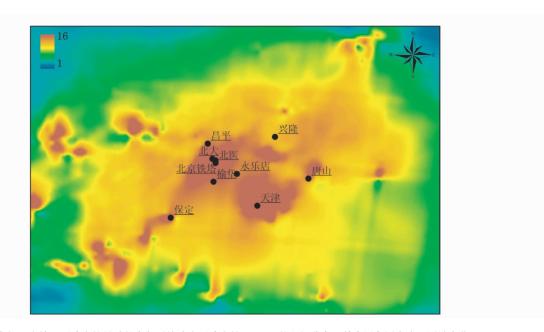


图 6 整个模拟期间,由输入不确定性导致的臭氧平均浓度不确定性(ppb)的空间分布。其中黑色圆点为观测站点位置 Fig. 6 The spatial distribution of the uncertainty (ppb) of the average ozone concentration caused by input uncertainties. The black dots represent the observation sites

间分布还取决于区域间污染的传输特征,在受输送影响大的区域,其受输送来源地各种臭氧模拟 不确定性因素的影响也较大。

图 7 是整个奥运会期间模拟的北京城区臭氧日最大值的概率分布。从图中可以看出,模拟的北京城区臭氧日最大值的概率分布接近对数正态分布特征(分布向右倾斜,在高值段存在一个长的尾端),这与 Hanna et al. (1998) 得到的臭氧浓度概率分布一致。其中 [60 ppb, 80 ppb] 和 [80 ppb, 100 ppb] 是两个概率最大的浓度区间,小于 100 ppb 的概率为 72%。

6 结论与讨论

本文将蒙特卡罗不确定性分析方法应用于 NAQPMS 的光化学模拟中,同时分析 154 个模式 输入变量不确定性的影响,估计臭氧模拟的不确 定性及其主要来源。在北京城区,北京本地前体 物排放量是奥运会期间近地层臭氧模拟最重要的 不确定性因子,NO₂ 光解系数、风向、非北京前 体物排放量和垂直扩散系数的不确定性也有非常 重要的影响。在郊区站点,风向是最重要的不确 定性因子。在不同高度上,不确定性因子的影响 有所不同,随着高度增加,风向成为臭氧模拟不确

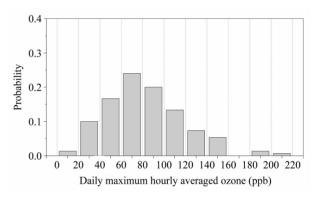


图 7 整个奥运会期间(2008年8月8~24日),集合模拟的 北京城区(北大、北医、大气所铁塔的平均)臭氧日最大值的 概率分布。其中x 轴为臭氧日最大值的分布区间, [0 ppb,240 ppb] 范围内每 20 ppb 为一个浓度区间,y 轴为对应每个 浓度区间的臭氧日最大值的概率

Fig. 7 The probability distribution of daytime ozone maximum in the urban area of Beijing during Beijing Olympic Games (from 8 to 24 Aug 2008). The x-axis represents the intervals of maximum ozone concentration during the concentration range [0 ppb, 240 ppb], and y-axis is the probabilities of maximum ozone concentrations in the corresponding intervals

定性的主导因子,另外,输送导致的不确定性对北京城区高层臭氧模拟有重要影响。输入不确定性对臭氧模拟的影响存在明显的时间变化特征。在白天,臭氧模拟对很多不确定性因子都很敏感,不确定性较大;在夜间,臭氧模拟只对少数几个不确定

性因子敏感,不确定性较小。在整个模拟期间,北京城区臭氧模拟的不确定性为 19 ppb,臭氧日最大值的不确定性概率分布特征接近对数正态分布。

在模式输入不确定性的估计上,目前还缺乏足够的信息来精确估计各种模式输入不确定性,将来需要利用更多信息来评估模式输入的不确定性。另外,目前考虑输入不确定性是定常的,即随时间不变,而实际上模式输入的某些不确定性具有时变特征,如 Hanna et al. (2001) 估计模式在夜间垂直扩散的不确定性大于白天。因此,建立更加接近实际的模式输入不确定性模型是有必要的。目前不确定性分析只能包含模式已有输入项的不确定性,而无法考虑模式缺失项的不确定性,如观测有降水,而模式输入无降水时,就存在模式输入缺失,其输入不确定性也无法考虑。因此怎样诊断模式缺失项,从而进一步改进不确定性分析也是需要重点解决的问题。

参考文献 (References)

- Beekmann M, Derognat C. 2003. Monte Carlo uncertainty analysis of a regional-scale transport chemistry model constrained by measurements from the Atmospheric Pollution Over the Paris Area (ESQUIF) campaign [J]. J. Geophys. Res., 108 (D17), doi: 10.1029/2003JD003391.
- Gao DF, Stockwell WR, Milford JB. 1995. First-order sensitivity and uncertainty analysis for a regional-scale gas-phase chemical mechanism [J]. J. Geophys. Res., 100: 23153-23166.
- Grell G A, Dudhia J, Stauffer D R. 1994, A description of the fifth-generation Penn State/NCAR mesoscale model (MM5) [R]. NCAR Technical Note, NCAR/TN-398+STR, 122pp.
- Hanna S R, Chang J C, Fernau M E. 1998. Monte Carlo estimates of uncertainties in predictions by a photochemical grid model (UAM-IV) due to uncertainties in input variables [J]. Atmos. Environ., 32: 3619 3628.
- Hanna S R, Lu Z, Frey H C, et al. 2001. Uncertainties in predicted ozone concentrations due to input uncertainties for the UAM-V photochemical grid model applied to the July 1995 OTAG domain [J]. Atmos. Environ., 35; 891–903.
- Hao J, Wang L, Shen M, et al. 2007. Air quality impacts of power plant emissions in Beijing [J]. Environ. Pollut., 147: 401-408.
- Helton J C, Davis F J. 2003. Latin hypercube sampling and the propagation of uncertainty in analyses of complex systems [J]. Reliability Engineering and System Safety, 81: 23-69.
- Houyoux M R, Vukovich J M, Coats C J, et al. 2000. Emission inventory development and processing for the Seasonal Model for

- Regional Air Quality (SMRAQ) project [J]. J. Geophys. Res., 105 (D7): 9079 9090.
- Houyoux M R, Vukovich J M, Brandmeyer J E, et al. 2004. Sparse Matrix Operator Kernel Emissions Modeling System (SMOKE) [R]. User Manual, Version 2.1.
- Li J, Wang ZF, Akimoto H, et al. 2007. Modeling study of ozone seasonal cycle in lower troposphere over east Asia [J]. J. Geophys. Res., 112 (D22), doi: 10.1029/2006JD008209.
- 李磊, 王自发, 何金海, 等. 2008. 东亚酸沉降模式不确定性分析 [J]. 气候与环境研究, 13: 273 280. Li Lei, Wang Zifa, He Jinhai, et al. 2008. Analysis of acid deposition model uncertainties over East Asia [J]. Climatic and Environmental Research (in Chinese), 13 (3): 273 280.
- 林彩燕,朱江,王自发. 2009. 沙尘输送模式的不确定性分析 [J]. 大气科学,33:232-240. Lin Caiyan, Zhu Jiang, Wang Zifa. 2009. Uncertainty analysis of a dust-transport model [J]. Chinese Journal of Atmospheric Sciences (in Chinese),33 (2):232-240.
- Macay M D, Conover W J, Beckman R J. 1979. A comparison of three methods for selecting values of input valuables in the analysis of output from a computer code [J]. Technometrics, 221: 239 245.
- Mallet V, Sportisse B. 2006. Uncertainty in a chemistry-transport model due to physical parameterizations and numerical approximations: An ensemble approach applied to ozone modeling [J]. J. Geophys. Res., 111 (D1), doi: 10.1029/2005JD006149.
- Moore G E, Londergan R J. 2001. Sampled Monte Carlo uncertainty analysis for photochemical grid models [J]. Atmos. Environ., 35: 4863 4876.
- Sillman S, Alwali K I, Marsik F J. 1995. Photochemistry of ozone formation in Atlanta, Ga-models and measurements [J]. Atmos. Environ., 29: 3055 3066.
- Sistla G, Zhou N, Hao W. 1996. Effects of uncertainties in meteorological inputs on urban airshed model predictions and ozone control strategies [J]. Atmos. Environ., 30: 2011 – 2025.
- Streets DG, Bond TC, Carmichael GR, et al. 2003. An inventory of gaseous and primary aerosol emissions in Asia in the year 2000 [J]. J. Geophys. Res., 108 (D21), doi: 10.1029/2002JD003093.
- Wang Z, Sha W, Ueda H. 2000. Numerical modeling of pollutant transport and chemistry during a high-ozone event in northern Taiwan [J]. Tellus (B), 52: 1189-1205.
- 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. 2006. Development and application of Nested Air Quality Prediction Modeling System [J]. Chinese Journal of Atmospheric Sciences (in Chinese),30 (5):778-790.
- Wesely M L. 1989. Parameterization of surface resistances to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models [J]. Atmos. Environ., 23: 1293-1304.
- Zhang Q, Streets D G, , Carmichael G R, et al. 2009. Asian emissions in 2006 for the NASA INTEX-B mission [J]. Atmos. Chem. Phys., 9: 5131 5153.