

典型大气污染物在不同下垫面上干沉积速率的动态变化及空间分布^{*}

张艳¹⁾ 王体健¹⁾ 胡正义²⁾ 徐成凯²⁾

1) (南京大学大气科学系, 南京 210093)

2) (中国科学院南京土壤研究所土壤圈物质循环开放实验室, 南京 210008)

摘要 利用中国科学院红壤生态试验站微气象站实测的梯度资料和大叶阻力相似沉积模型, 计算了农田和森林下垫面大气污染物的干沉积速率, 并将此模型嵌套到区域酸性沉降模式系统 (RegADMS) 中, 模拟获得中国地区 11 种大气污染物干沉积速率的空间分布。结果表明: 大气污染物干沉降速率 (V_d) 有明显的时间变化, 物种的干沉积速率一般白天大于晚上, 冬春季大于夏秋季节。大气污染物 V_d 也有明显的空间变化, 中国地区 SO_2 、 HNO_3 、 NO 、 NO_2 、 NH_3 、 O_3 、 H_2O_2 、TSP、PM10、 SO_4^{2-} 和 NO_3^- 年平均 V_d 分别为 0.35 ± 0.004 、 1.77 ± 0.01 、 $6.5 \times 10^{-5} \pm 2.0 \times 10^{-7}$ 、 0.07 ± 0.0007 、 0.28 ± 0.003 、 0.20 ± 0.001 、 0.54 ± 0.002 、 7.2 ± 0.0005 、 0.44 ± 0.0005 、 0.25 ± 0.0005 、 0.27 ± 0.0008 cm s^{-1} 。各种下垫面上粒子 V_d 差别不大, 气体污染物在各下垫面上的 V_d 有所不同, 表现为 HNO_3 、 NO_2 、 O_3 的 V_d 在森林和草原上较大, 而 SO_2 、 NH_3 、 H_2O_2 的 V_d 在水面上较大, NO 的 V_d 都很小, 且在各种下垫面上差别不大。

关键词: 大气干沉降; 干沉积速率; 大气污染物

文章编号 1006-9585 (2004) 04-0591-14 **中图分类号** X16 **文献标识码** A

1 引言

在没有降水的条件下, 由于湍流运动的作用, 污染物在大气中输送扩散时, 不断地被下垫面 (包括陆面、水面和植被等) 吸收, 形成持续向地面迁移的过程, 称之为干沉积。虽然干沉积没有湿沉积集中, 但其以地域广和持续时间长为特点, 据估计就年以上的的时间尺度而言, 干沉积的总量与湿沉积量基本相当^[1]。在干旱地区, 干沉积更显重要。干沉积是大气中污染物清除的主要过程之一, 也是生态系统从大气中获得营养元素 (如氮素和硫素) 的重要过程, 因此研究干沉积对环境 and 生态都有重大意义。

污染物从低层大气到下垫面的迁移, 主要经历 3 种过程: 首先通过湍流输送作用, 从大气边界层中向地表粘性的片流层迁移; 然后通过分子扩散作用, 向下输送到表面; 最终表面 (植被、土壤、水面和雪面等) 对物质吸附。通常用干沉积速率和干沉积通量两个因子来描述沉积过程, 沉积速率 V_d 反映了干沉积过程清除污染物能力的大小, 而沉积通量 F_d 则表征清除污染物的多少。

2003-06-23 收到, 2004-02-20 收到再改稿

^{*} 国家重点基础研究发展规划项目 2002CB410811、国家自然科学基金项目 40305019、中国科学院南京土壤研究所土壤圈物质循环重点实验室联合资助

早期对干沉积速率的求取通常通过野外或实验室测量,由于直接测量技术难度大,且只能局限于单点,因而数值模式成为非常有用的研究工具。过去 20 多年间,研究者们发展了许多干沉积模式^[2~7],模式性能也在不断提高。早期处理干沉积过程时,仅对不同污染物分别选取一个固定的 V_d 值,这种做法不能反映干沉积速率的时空变化特征,因为影响干沉积的因素很多,如大气状况、沉积表面的性质和污染物本身的特性等。第 1 代干沉积模型(如单层模型和两层模型),主要考虑影响干沉积的物理过程。第 2 代模式(如 3 层模型),开始用阻力相似模型计算沉积速率,但表面阻力是从部分观测值积累的经验表中取值,这种方法不能更好地反映气象条件、冠层生理过程等因子的变化。为了更精确地研究干沉积过程,必须对表面阻力进行参数化。第 3 代模式(如大叶模型),开始将物质的沉积和化学、生物过程耦合起来,减少了对经验表面阻力值的依赖,能够应用较详细的表面资料对下垫面特征进行描述。

本文首先利用单点气象资料和大叶阻力相似模型计算不同大气污染物在农田和森林下垫面的干沉积速率,研究其日变化和季节变化特征。然后进一步利用区域气象模式的结果,将大叶模型嵌入到区域酸性沉降模式中,研究中国地区不同大气污染物在不同生态系统下垫面上干沉积速率的空间分布。

2 资料和方法

2.1 资料

单点研究以中国科学院红壤生态试验站农田和森林小气候分站(江西鹰潭)为基地。农田下垫面为油菜—水稻轮作,四周较开阔,附近 5 km 范围内没有大的污染源。在农田中部竖有一小气候观测塔,塔高 5.5 m,在离地 5.0、3.5、2.0 和 1.0 m 处分别安装有风速、温度、气压等自动记录传感器。用 VF≠2 型磁悬浮微风传感器测定风速,HTF≠2 型电动通风干湿表温湿传感器测定温度,ZGIV 型振筒气压传感器测定气压。数据采集器采用的是 DT≠500 型智能数据采集器,每 60 min 采集一次数据,采样时间为 1998 年 11 月至 2000 年 12 月。森林下垫面为大面积的马尾松,气象数据也采用同样的仪器和方法来测定,4 层采样高度分别为 13.5、8、3 和 2 m。

区域研究采用中尺度气象模式输出的 2000 年中国地区气象场资料作为区域酸沉降模式的输入,空间分辨率为 75 km×75 km,时间分辨率为每天 4 次。

2.2 方法

2.2.1 大叶模型

20 世纪 80 年代末期,Walmsley 等^[8]和 Wesely^[9]将影响表面阻力的因子按其特性及所属高度分为 3 层,并分别进行了参数化。

(1) 气体干沉积速率

气体的干沉积主要受湍流扩散、布朗扩散和表面吸附的影响,其干沉积速率可表示为

$$V_d = \frac{1}{R_a + R_b + R_c}, \quad (1)$$

式中 R_a 、 R_b 和 R_c 分别代表空气动力学阻力、片流层阻力和接受表面阻力。 R_a 、 R_b 采

用 Walcek^[7]的方法计算, R_c 与污染物和沉积表面之间的化学、生物作用有较大的关系, 依赖于气体的溶解性、活泼性及表面的特性。根据 Wesely^[9]的研究:

$$R_c = \frac{1}{\frac{1}{r_s + r_m} + \frac{1}{r_{lu}} + \frac{1}{r_{dc} + r_{cl}} + \frac{1}{r_{ac} + r_{gs}}}, \quad (2)$$

式中 r_s 、 r_m 、 r_{lu} 、 r_{cl} 、 r_{dc} 、 r_{gs} 的参数化公式详见文献 [10], 各物种在不同季节不同下垫面上的表面阻力影响因子取值情况见文献 [9]。其中, r_s 表示植物叶表气孔部分的表面阻力, 与太阳辐射和叶表温度有关, 随季节变化而变化; r_m 表示植物叶肉部分的表面阻力; r_{lu} 表示健康植物的叶片的角质层部分以及高层覆盖物其他表面部分的阻力; r_{cl} 表示地层覆盖物中裸露在外的叶片、嫩枝、茎皮等部分的表面阻力; r_{dc} 表示覆盖物间由于对流作用引起的气体交换所造成的部分表面阻力, 与季节变化有关; r_{gs} 表示地面的土壤落叶层、枯叶层等部分的表面阻力; r_{ac} 表示受覆盖物高度和生长分布密度影响的气体移动引起的部分表面阻力。总的来讲, 总体表面阻力 R_c 随着下垫面类型、太阳辐射、季节等的变化而变化。

(2) 粒子干沉积速率

粒子的干沉积不同于气体, 主要由布朗扩散、惯性碰撞、重力沉积等因素引起。通常认为粒子沉积到表面后没有再悬浮, 则表面阻力可以忽略。粒子干沉积速率可以表示为

$$V_d = \frac{1}{R_a + R_b + R_a R_b V_g} + V_g, \quad (3)$$

其中 V_g 是粒子的重力沉积速率。

2.2.2 气象模式

气象模式采用美国宾州大学和国家大气研究中心 (PSU/NCAR) 发展的有限区域中尺度模式 (MM5)^[11]。许多研究表明该模式对一般尺度的天气过程有较好的模拟能力, 其设计比较适合于区域大气污染物的输送和沉降研究。

模式水平网格距取为 75 km, 模式顶气压为 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 的高分辨率边界层方案、时间变化边界条件和 Anthes-Kuo 的深厚积云对流参数化方案。

模式考虑的下垫面类型有 13 种, 来源于美国 USGS 卫星观测资料, 其空间分辨率为 $2'$ 。

2.2.3 沉降模式

沉降模式是一个三维、时变、欧拉型模式, 它考虑了影响大气污染物分布和酸雨形成的排放、输送、沉积、转化等复杂的大气物理和化学过程, 该模式可以输出物质浓度和物质沉积量^[12]。

3 结果和分析

3.1 干沉积速率的日变化

首先研究中国科学院红壤试验站农田和森林下垫面上 11 种物质 SO_2 、 HNO_3 、

NO、NO₂、NH₃、O₃、H₂O₂、TSP (粒径≤100 μm, 平均粒径取为 50 μm)、PM10 (粒径≤10 μm, 平均粒径取为 5 μm)、SO₄²⁻ (粒径为 0.1、2、10 μm 的 V_d 的平均值)、NO₃⁻ (平均粒径取为 0.1 μm) 每小时干沉积速率值, 然后计算每天相同时刻的平均值, 结果见图 1、2。

由图 1、2 可知, 无论在农田下垫面还是森林下垫面, 除 TSP 和 NO 外的所有物种的干沉积速率都有明显的日变化, 一般而言, V_d 白天较大, 夜晚较小。其中 NO₃⁻ 粒子和 SO₄²⁻ 粒子 V_d 日变化最为明显, 造成日变化的主要因素与大气稳定性和表面阻力有关。夜间由于没有太阳辐射, 地面没有热量输入, 但存在地面辐射冷却, 近地面空气温度随之降低, 出现了逆温, 大气状态十分稳定, 逆温层内大气垂直运动很难发展,

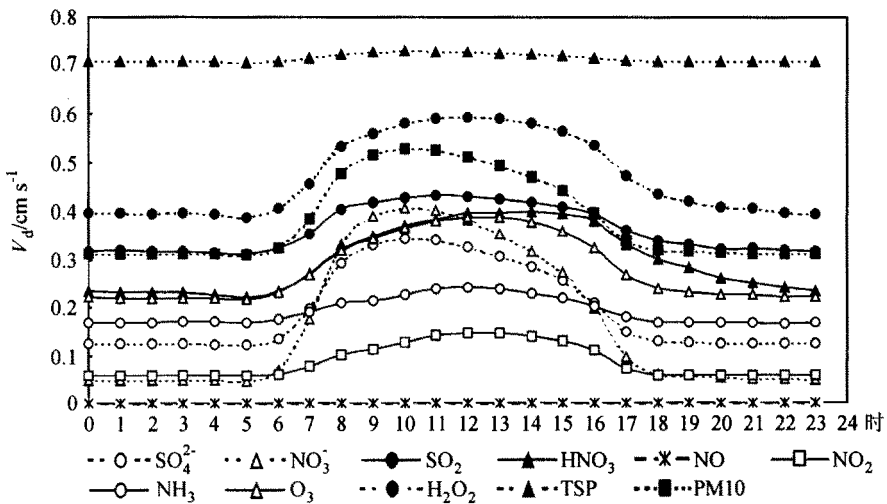


图 1 江西农田下垫面上干沉积速率的日变化
实际 HNO₃ 的 V_d 为 3 倍图示值, 实际 TSP 的 V_d 为 10 倍图示值

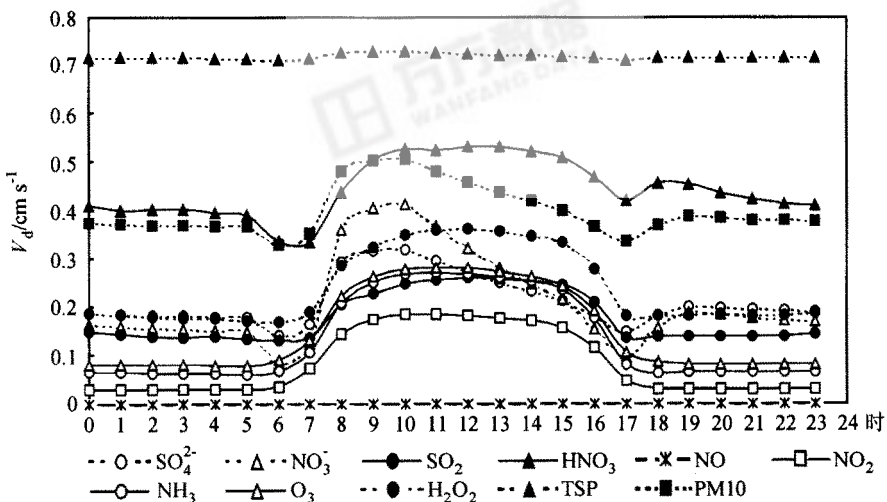


图 2 江西森林下垫面上干沉积速率的日变化
实际 HNO₃ 的 V_d 为 3 倍图示值, 实际 TSP 的 V_d 为 10 倍图示值

因此，造成较小的干沉积速率。而白天由于太阳强烈照射，地面增热很快，近地面空气因此也增热很快，热量不断由底层向高层传递，形成了气温的下高上低状况，此时大气状态是不稳定的，湍流活动性强，湍流层阻力小，导致较大的干沉积速率。表 1、2 列出了不同大气稳定度下污染物干沉降速率。可见无论在森林还是农田，除 HNO_3 外，随着稳定度的增加，物种沉积速率呈明显递减趋势。而模拟结果显示 HNO_3 在接近中性条件下的干沉积速率最大，这是由于气体的干沉积速率除受气象条件影响外还与自身在空气中的扩散能力有关， HNO_3 的分子扩散率较大，相应地在干沉积过程中其片流层阻力所占比例也较大。总体看来，气体污染物干沉积速率的日变化特征与粒子明显不同，这与影响气体和粒子的主导因子不同有关。气体的干沉积速率不仅与气象条件有关，还与下垫面特征有关。另外，太阳辐射也影响着植物叶片气孔的开合状况以及叶表温度和相对湿度，进而影响气体表面阻力的大小。因此湍流层阻力和表面阻力是影响气体干沉积速率日变化的主要因子。对于粒子，片流层阻力和粒子重力沉降速率是影响干沉积速率的主要因子，但由于粒子重力沉降速率为常值，片流层阻力在很大程度上决定了干沉积速率的日变化特征。对于大粒径的 TSP 而言，其重力沉降速率占主导地位，故其日变化特征不明显。

就森林和农田下垫面比较而言，森林上粒子的沉积速率值比农田上的大，且日变化较剧烈（表 1、2，图 1、2）。这是由于森林下垫面粗糙度比较大，相应的摩擦速度也比较大，湍流比较活跃，有利于粒子污染物的沉积。但从平均值来看，森林下垫面上 NO 、 H_2O_2 、 NH_3 和 O_3 的沉积速率比农田上的小一些， NO_2 的干沉积速率几乎相同，

表 1 不同大气稳定度下农田下垫面上各污染物 V_d 月均值 cm s⁻¹

大气稳定度*	大气污染物种类										
	SO ₂	HNO ₃	NO (×10 ⁻³)	NO ₂	NH ₃	O ₃	H ₂ O ₂	TSP	PM10	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻
A	0.45	0.83	0.1	0.15	0.30	0.35	0.59	7.40	0.64	0.46	0.57
B	0.40	0.86	0.1	0.13	0.23	0.34	0.54	7.27	0.51	0.32	0.38
C	0.40	1.06	0.1	0.11	0.20	0.35	0.56	7.17	0.40	0.22	0.22
D	0.36	1.67	0.09	0.09	0.15	0.34	0.53	7.11	0.35	0.16	0.12
E	0.33	0.86	0.07	0.06	0.15	0.24	0.42	7.08	0.31	0.13	0.05
F	0.31	0.50	0.08	0.05	0.18	0.19	0.37	7.07	0.31	0.12	0.04
平均值	0.37	0.96	0.09	0.10	0.20	0.30	0.50	7.18	0.42	0.23	0.23

* 从 A 到 F 表示大气稳定度逐渐增加

表 2 不同大气稳定度下森林下垫面上各污染物 V_d 月均值 cm s⁻¹

大气稳定度*	大气污染物种类										
	SO ₂	HNO ₃	NO (×10 ⁻³)	NO ₂	NH ₃	O ₃	H ₂ O ₂	TSP	PM10	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻
A	0.37	1.77	0.1	0.28	0.43	0.40	0.51	7.71	0.94	0.75	1.22
B	0.28	1.41	0.07	0.14	0.23	0.21	0.36	7.34	0.58	0.39	0.54
C	0.22	1.35	0.04	0.09	0.16	0.16	0.29	7.22	0.46	0.27	0.32
D	0.18	2.38	0.04	0.09	0.14	0.17	0.26	7.13	0.37	0.18	0.16
E	0.15	1.16	0.04	0.06	0.10	0.14	0.22	7.09	0.32	0.14	0.07
F	0.10	0.32	0.07	0.05	0.07	0.09	0.13	7.07	0.31	0.12	0.04
平均值	0.22	1.40	0.06	0.11	0.19	0.19	0.33	7.26	0.50	0.31	0.39

* 从 A 到 F 表示大气稳定度逐渐增加

这是由于气体的沉积速率除受气象条件影响外还受到表面条件的影响,农田下垫面更有利于气体污染物质的吸收。由于 HNO_3 几乎不受表面条件的影响,其沉积速率的大小取决于气象条件,因此森林上的值大一些,而且日变化较农田上剧烈(表 1、2,图 1、2)。

3.2 干沉积速率的季节变化

物种在农田和森林下垫面上的干沉积速率有明显的季节变化,总体上讲,森林上气体污染物的干沉积速率值分别在冬春季较大,夏秋季较小;农田上物质干沉积速率值在夏季也较小,其最大值出现在冬季。对于不同物种,其 V_d 的季节变化各有特点(图 3、4)。 HNO_3 的亨利系数非常大,溶解能力较强,它的表面阻力近似为零,其干

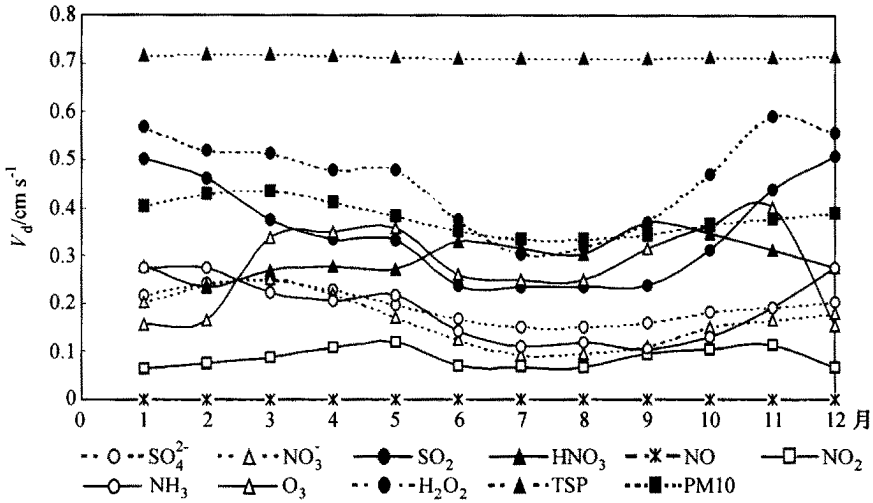


图 3 江西农田下垫面上干沉积速率的月变化
实际 HNO_3 的 V_d 为 3 倍图示值,实际 TSP 的 V_d 为 10 倍图示值

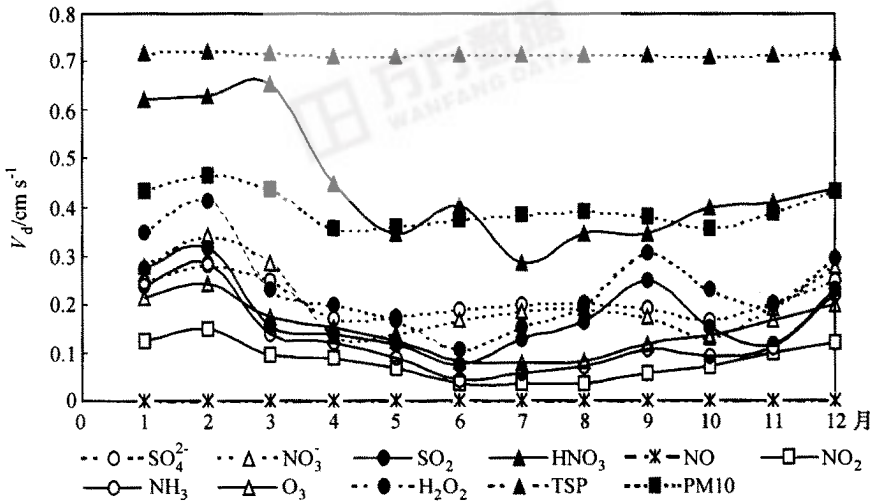


图 4 江西森林下垫面上干沉积速率的月变化
实际 HNO_3 的 V_d 为 3 倍图示值,实际 TSP 的 V_d 为 10 倍图示值

沉积速率的季节变化比较明显，且主要由气象要素造成，并在农田和森林上的月变化有所不同，这是由同一季节农田和森林上气象条件的差异所致；TSP、PM₁₀、SO₄²⁻和NO₃⁻等粒子干沉积速率的季节变化也主要受气象因子的影响，其月变化情况在农田和森林上的差异类似于HNO₃。而NO的亨利系数很小，其表面阻力非常大，干沉积速率接近于零，几乎没有季节变化。计算表明，SO₂、O₃和H₂O₂的表面阻力与湍流层阻力和片流层阻力相当，其干沉积速率的季节变化是气象要素和地表状况综合作用的结果。而对于NO₂、NH₃而言，表面阻力很大，在阻力因子中居主导地位，决定着沉积速率的量级和大小，表面状况的季节变化影响着污染物干沉积速率的季节变化。

3.3 干沉积速率的空间分布

利用MM5输出气象资料并耦合大叶模型的区域酸性沉降模式，计算了中国地区11种大气污染物全年每天4次的干沉积速率，统计得出各物种V_d年均值，11个物种在不同下垫面上沉积速率的年均值列于表3，SO₂、HNO₃、O₃和SO₄²⁻干沉积速率的区域分布见图5~8。

一些国内外观测值^[5~58]表明SO₂在水面上的干沉积速率为1~3 cm s⁻¹；叶面指数较大的植被上为0.5~1.5 cm s⁻¹；农田、草地和阔叶林上，白天为0.8 cm s⁻¹，晚上为

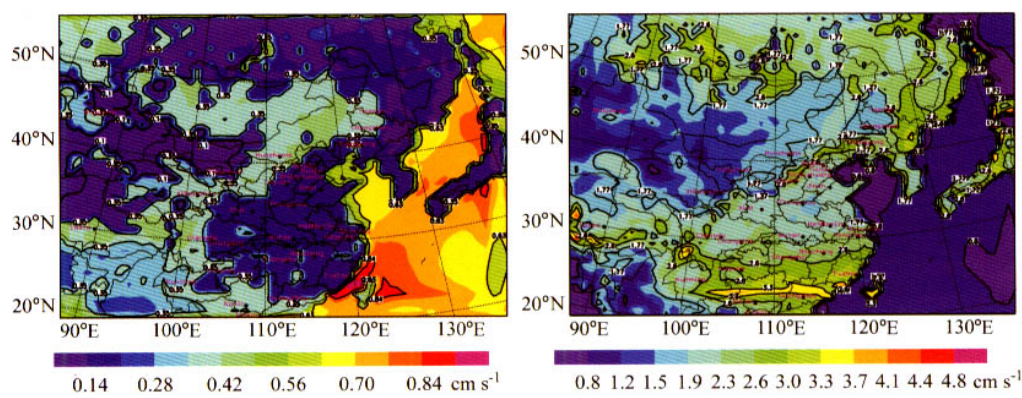


图5 中国地区2000年SO₂沉积速率分布

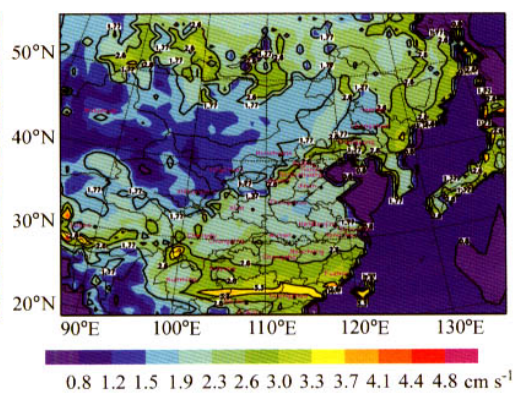


图6 中国地区2000年HNO₃沉积速率分布

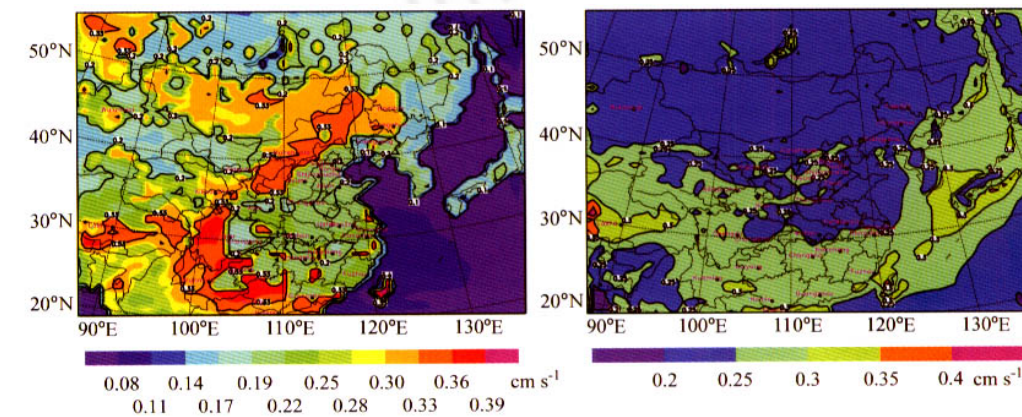


图7 中国地区2000年O₃沉积速率分布

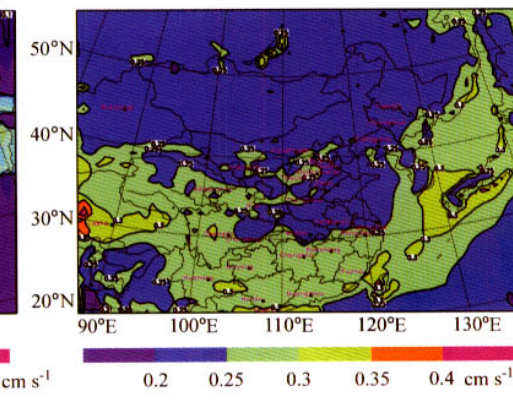


图8 中国地区2000年SO₄²⁻沉积速率分布

0.3 cm s⁻¹。本文的模拟研究表明, SO₂ 的沉积速率在各下垫面上的分布特征很明显, 在全国的沉积速率平均值为 0.35 cm s⁻¹。水面上 SO₂ 干沉积速率最大, 达 0.70 cm s⁻¹。这是由于 SO₂ 具有较强的溶解性, 因此其在水面上的表面阻力较小, 而且水面上不受覆盖物高度和生长物分布密度的影响, 气体移动引起的表面阻力几乎为零。草原、草地和热带雨林, 植被的吸收作用也有利于干沉积, 干沉积速率为 0.34~0.40 cm s⁻¹。落叶林和针叶林上的速率值较小, 在 0.16 cm s⁻¹ 左右。沙漠上的沉积速率值最小, 为 0.10 cm s⁻¹。可见 SO₂ 干沉积速率与观测结果基本一致。

一般而言, 自然表面对 HNO₃ 的表面阻力很小, 干沉积速率主要由空气动力学阻力决定, 因此, 同一下垫面上各气体物种干沉积速率, HNO₃ 为最大。在有植被覆盖的表面, HNO₃ 的 V_d 达 2~10 cm s⁻¹; 水面上的一些; 针叶林上, 白天大于 7 cm s⁻¹, 晚上为 4~5 cm s⁻¹。本文研究结果显示, HNO₃ 在针叶林下垫面上的干沉积速率可达 2.66 cm s⁻¹。HNO₃ 的干沉积速率有较明显的空间差异, 主要是由于不同下垫面上气象条件异同所致。HNO₃ 在粗糙度较大的森林下垫面上的湍流阻力较小, 干沉积速率较大, 平均可达 2.5 cm s⁻¹, 而农田和水面的粗糙度较小, 相对而言气象条件不利于物质的扩散, 污染物的干沉积速率较小, 小于 1 cm s⁻¹。总体上, 模拟的 HNO₃ 沉积速率值较观测值小的多。

一些国内外测量和模拟研究^[13~58]表明, O₃ 在森林、农田和草地上的值较大, 在充分混合的大气条件下, 其值为 0.5~0.8 cm s⁻¹; 陆地与水面上的值差别较大, 水面上较小。本文研究也表明 O₃ 的干沉积速率受叶孔吸收的影响很大, 植被表面湿度增加, 对其的清除作用也将增强。华南热带雨林地区和西部高原地区的 O₃ 的沉积速率较大, 在 0.3 cm s⁻¹ 左右。华东和中原地区沉积速率较小且分布均匀。水面上的干沉积速率最小为 0.08 cm s⁻¹。模拟所得沙漠上的年均沉积速率为 0.19 cm s⁻¹, 比国内外观测值 (0.0~0.15 cm s⁻¹) 略大。而模拟的森林和草地上的沉积速率值较观测值小的多。

硫酸盐气溶胶粒子的沉积速率主要由气象条件决定, 同时还受本身粒径大小影响。一些国内外观测值^[13~58]表明在有植被覆盖面上, SO₄²⁻ 的 V_d 一般在 0.1~1.4 cm s⁻¹ 之间; 水面上小一些为 0~0.2 cm s⁻¹; 森林上值最大, 为 0.6~1.2 cm s⁻¹。本文结果图 8 和表 2 显示, 硫酸盐气溶胶粒子的沉积速率在不同下垫面上分布较均匀, 方差为

表 3 不同物种在典型下垫面上大气干沉积速率 (V_d) 的区域平均值 cm s⁻¹

污染物	下垫面类型									
	农田	草地	落叶林	针叶林	水面	沙漠	苔原、冻土	热带雨林	大草原	全国
SO ₂	0.25	0.40	0.16	0.16	0.70	0.10	0.29	0.36	0.34	0.35±0.004
HNO ₃	0.76	1.68	2.43	2.66	0.84	1.44	1.57	2.33	1.16	1.77±0.01
NO($\times 10^{-3}$)	0.05	0.07	0.07	0.07	0.05	0.07	0.08	0.05	0.05	0.064±0.0002
NO ₂	0.10	0.11	0.11	0.09	0.01	0.03	0.07	0.10	0.13	0.07±0.0007
NH ₃	0.18	0.23	0.20	0.20	0.55	0.04	0.20	0.23	0.23	0.28±0.003
O ₃	0.22	0.31	0.19	0.18	0.08	0.19	0.25	0.32	0.28	0.20±0.001
H ₂ O ₂	0.35	0.57	0.42	0.47	0.71	0.28	0.54	0.68	0.47	0.54±0.002
TSP	7.19	7.19	7.19	7.2	7.21	7.21	7.15	7.22	7.21	7.20±0.0005
PM10	0.43	0.42	0.43	0.44	0.45	0.44	0.39	0.46	0.45	0.44±0.0005
SO ₄ ²⁻	0.25	0.24	0.24	0.25	0.26	0.26	0.21	0.27	0.26	0.25±0.0005
NO ₃ ⁻	0.25	0.25	0.27	0.30	0.27	0.28	0.20	0.32	0.28	0.27±0.0008

0.0005 cm s⁻¹，平均沉积速率值为 0.25 cm s⁻¹。因为粒子受表面阻力影响较小，重力是其主要因素，在不同下垫面上的沉积速率值差别不大。同时也发现植被覆盖面上的沉积速率比苔原、冻土上稍大一些。与国内外部分观测值对比发现，森林上的沉积速率偏小，草地上的沉积速率较一致。

表 4~7 是 O₃、HNO₃、SO₂ 和 SO₄²⁻ 的模拟值与国内外长期以来对一些物种的观

表 4 SO₂ 干沉积速率的模拟值与国内外观测值的比较 cm s⁻¹

下垫面	国外观测值				模拟结果	
	平均值	范围	条件	参考文献	年均值	标准差
裸露土壤	1.2	0~1.5	干燥	Fowler et al. [25]	0.29	0.007
松叶林	0.33		干燥秋季	Granat and Richter[26]	0.16	0.003
	0.7		干燥白天	Erisman[27]		
	0.7		干燥夜晚			
	0.5		夏季	Johansson et al. [28]		
	0.1		冬季			
	0.5	0.2~1.0	干燥白天	Fowler and Cape[29]		
	0.1	0.0~0.2	干燥夜晚			
	0.3	0.1~0.6	潮湿白天			
	0.3	0.1~0.4	潮湿夜晚			
	0.3		干燥冬天白天	Erisman[27]	0.16	0.003
落叶林	0.6		潮湿冬天夜晚			
	0.1		冬天夜晚			
	1.2		年平均	Erisman et al. [30]	0.34	0.003
草原	0.74	0.04~3.4	干燥夏季白天	Davies and Mitchell[31]		
				Hicks and Liss[32]	0.70	0.003
水面		1.0~2.0				
小麦	0.71	0.0~1.71	干燥	Fowler et al. [25]	0.25	0.007
	0.92		潮湿			
荒野		0.1~1.5	5~7 月	Fowler and Unsworth[33]		
			年平均	Erisman et al. [27,30]	0.29	0.007
	0.8					

表 5 HNO₃ 干沉积速率的模拟值与国内外观测值的比较 cm s⁻¹

下垫面	国外观测值				模拟结果	
	平均值	范围	条件	参考文献	年均值	标准差
裸露地面	7.7	Z ₀ =4.9 cm		Harrison et al. [34]	1.57	0.020
谷地	2.5		早秋	Meyers et al. [35]		
落叶	4.0	2.2~6.0	夏季	Meyers et al. [36]	2.43	0.015
森林	1.0	0.0~11.0	春季	Andersen and Hovmand[37]	2.5	0.019
草地	4.0		月均	Erisman et al. [38]	1.68	0.012
		0.0~3.7		Harrison et al. [34]		
	3.7		长草			
		0.0~1.7	短草			
		0.3~1.8		Van Aalst and Diederer[39]		
	2.5	0.0~4.7	6 月	Huebert and Robert[40]		
		1.7~4.7		Dollard et al. [41]		
	3.2		夏季	Meyers et al. [35]		
	2.9	1.1~4.9	夏季	Huebert[42]		
	11		年均	Peters and ruckner—Schatt[43]	2.66	0.019
云杉						
小麦	2.9		幼麦	Dollard et al. [41]	0.76	0.051

注：Z₀ 为下垫面粗糙度

表 6 O₃ 干沉积速率的模拟值与国内外观测值的比较 cm s⁻¹

下垫面	国外观测值				模拟结果	
	平均值	范围	条件	参考文献	年均值	标准差
棉田	0.4	0.2~0.8	夏季	Padro ^[44] Zhang et al. ^[45]	0.22	0.01
		0.05~1.1	无露	Massman et al. ^[46]		
		0.01~0.65	有露			
落叶林	1.0	0.0~1.8	干燥夏季	Padro et al. ^[47,48]	0.19	0.006
		0.0~1.2	湿夏季			
	0.2	0.0~1.2	夏季夜晚	Wesely et al. ^[49]		
		0.0~0.5	干燥冬天			
		0.0~0.4	湿冬湿冬			
		0.11~0.45	冬季			
		0.23~0.45	冬季白天			
沙漠 草地	0.065	0.0~0.15	春季	Gusten et al. ^[50]	0.19	0.001
	0.56	0.05~0.2	夏季	Padro ^[44]	0.31	0.001
		0.06~1.0	白天	Delany and Davies ^[51]		
		0.0~0.56	无露	Massman et al. ^[46]		
松林	0.24		夏季	Meyers et al. ^[35]	0.18	0.001
		0.0~1.16		Sanchez and Rodriguez ^[52]		
	1.0		夏季	Lenschow et al. ^[53]		

表 7 SO₂⁻ 干沉积速率的模拟值与国内外观测值的比较 cm s⁻¹

下垫面	国外观测值				模拟结果	
	平均值	范围	条件	参考文献	年均值	标准差
针叶林	0.7	0.0~4.0	夏季	Wyers and Duyzer ^[54]	0.25	0.005
	0.9	0.0~0.025	$L^{-1} < -0.005$	Wesely et al. ^[5]		
	0.48		$ L^{-1} < 0.005$	Hicks et al. ^[55]		
	0.7	0.41~1.44	夏季白天	Hicks et al. ^[55]		
落叶林	0.13	0.0~1.0	夏季	Lindberg and Harriss ^[56]	0.24	0.0006
	0.6		春季	Hicks et al. ^[57]		
草地	0.22	0.0~0.5	长期	Wesely et al. ^[5]	0.24	0.0009
		0.3~1.8		Van Aalst and Diederren ^[39]		
	0.07	-0.53~0.6		Nicholson and Davies ^[58]		
	1.4	0.9~2.5		Everett et al. ^[59]		

注：L（单位：m）为莫宁-奥布霍夫长度

测值所作的比较。可以看出，两者基本处于同一量级，但计算值总体偏小。应该说明的是本文模拟的干沉积速率代表了年时间尺度上的平均，而实际观测干沉积速率大多数是短时间段内的平均，因而模拟值有可能小于观测值。

4 结论

- 上述模拟研究表明，大气污染物干沉降速率表现出不同特点：
- （1）大气污染物的干沉积速率处于动态变化之中，一般而言，白天大于夜间晚上，冬春季大于夏秋季。
 - （2）气体污染物的干沉积速率存在明显的空间变化。同一地区不同污染物干沉降速率有显著差异；同一物种在不同下垫面上干沉积速率也有明显差别，表现为 HNO₃、

NO_2 、 O_3 的 V_d 在森林和草原上较大, 而 SO_2 、 NH_3 、 H_2O_2 的 V_d 在水面上较大, NO 的 V_d 都很小, 且在各种下垫面上差别不大。模拟结果显示, SO_2 、 HNO_3 、 NO 、 NO_2 、 NH_3 、 O_3 和 H_2O_2 年平均 V_d 分别为 0.35 ± 0.004 、 1.77 ± 0.01 、 $6.5 \times 10^{-5} \pm 2.0 \times 10^{-7}$ 、 0.07 ± 0.0007 、 0.28 ± 0.003 、 0.20 ± 0.001 、 $0.54 \pm 0.002 \text{ cm s}^{-1}$ 。

(3) 粒子在不同下垫面上的干沉积速率分布较均匀。 SO_4^{2-} 和 NO_3^- 的沉积速率分别为 0.25 ± 0.0005 、 $0.27 \pm 0.0008 \text{ cm s}^{-1}$, TSP、PM10 的年均沉积速率为 7.2 ± 0.0005 、 $0.44 \pm 0.0005 \text{ cm s}^{-1}$ 。

(4) 本研究将大叶阻力相似模型嵌套到区域酸性沉降模式系统 (RegADMS) 中, 模拟获得的中国地区 11 种大气污染物干沉积速率, 其年均值与国外观测值在同一数量级。由于该方法考虑了下垫面植物生理特征和冠层内湍流结构对于干沉积的影响, 建议可用它来深入研究中国地区大气污染物的干沉积通量。

参 考 文 献

- 1 Fowler, D., Dry deposition of SO_2 on agricultural crops, *Atmospheric Environment*, 1978, **12**, 369~373.
- 2 Wesely, M. L., and B. B. Hicks, A review of the current status of knowledge on dry deposition, *Atmospheric Environment*, 2000, **34**, 2261~2282.
- 3 Brook, R., Zhang Leiming, Di-Giovanni et al., Description and evaluation of a model of deposition velocities for routine estimates of dry deposition over North America. Part I: model development, *Atmospheric Environment*, 1999, **33**, 5037~5051.
- 4 Smith, R. I., D. Fowler, M. A. Sutton, C. Flechard, M. Coyle, Regional estimation of pollutant gas dry deposition in the UK: mode description, sensitivity analyses and outputs, *Atmospheric Environment*, 2000, **34**, 3757~3777.
- 5 Wesely, M. L. Measurements and parameterization of particulate sulfur dry deposition over grass, *J. Geophys. Res.*, 1985, **90**, 2131~2143.
- 6 Baldocchi, D. D., B. B. Hicks, and P. Camara, A canopy stomatal resistance model for gaseous deposition to vegetated surfaces, *Atmospheric Environment*, 1987, **36**, 311~330.
- 7 Walcek, C. J., SO_2 , sulfate and HNO_3 deposition velocities computed using regional landuse and meteorological data, *Atmospheric Environment*, 1986, **20** (5), 949~964.
- 8 Walmsley John L. and Marvin L. Wesely, Modification of coded parameterizations of surface resistances to gaseous dry deposition, *Atmospheric Environment*, 1996, **30** (7), 1181~1188.
- 9 Wesely, M. L., Parameterization of surface resistance to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models, *Atmospheric Environment*, 1989, **23** (6), 1293~1304.
- 10 欧阳琰、王体健、张艳等, 一种大气污染物干沉积速率的计算方法及其应用, 南京气象学院学报, 2003, **26** (2), 210~218.
- 11 Grell, G. A., J. Dudhia, and D. R. Stauffer, A description of the fifth-generation penn State/NCAR mesoscale model (MM5), NCAR technical Note, NCAR/TN-389+STR, 1994, 117pp.
- 12 王体健、孙照渤、闵锦忠, 中国地区硫酸盐气溶胶的分布特征, 气候与环境研究, 2000, **5** (2), 165~174.
- 13 Baldocchi, D. D., B. B. Hicks, and P. Camara, A canopy stomatal resistance model for gaseous deposition to vegetated surfaces, *Atmospheric Environment*, 1987, **21**, 91~101.
- 14 Bhumralkar, C. M., Numerical experiments on the computation of the ground surface temperature in atmospheric general circulation model, *J. Appl. Meteor.*, 1975, **14**, 67~100.
- 15 Blackadar, A. K., Modeling nocturnal the boundary layer, *Preprints of the Third Symposium on Atmospheric Turbulence, Diffusion, and Air Quality*, Raleigh, NC, 19-22 October 1976, Amer. Meteor. Soc., Boston,

- 1976, 46~49.
- 16 Chang, J. S., P. B. Middleton, W. R. Stockwell et al., The regional acid deposition model and engineering model, *NAPAP Report 4*, Washington, D. C., GPO, 1990, 189pp.
- 17 Garland, J. A., Dry and wet removal of sulfur from the atmosphere, *Atmospheric Environment*, 1978, **12**, 349~362.
- 18 Garratt, J. P., *The Atmospheric Boundary Layer*, Cambridge University Press, 1992, 316 pp.
- 19 Gifford, F. A., Horizontal diffusion in the atmosphere: A Lagrangian-dynamical theory, *Atmospheric Environment*, 1982, **16**, 505~512.
- 20 Hicks, B. B., R. P. Hosker Jr., T. P. Meyers, and J. D. Womack, Dry deposition inferential measurement techniques. Part I: Design and tests of a prototype meteorological and chemical system for determining dry deposition, *Atmospheric Environment*, 1991, **12A**, 2345~2359.
- 21 Kaimal, J. C., J. C. Wyngaard, Y. Izumi, and O. R. Cote', Spectral characteristics of surface layer turbulence, *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 1972, **98**, 563~589.
- 22 Haugen, D. A., O. R. Cote, Y. Izumi, S. J. Caughey, and C. J. Readings, Turbulence structure in the convective boundary layer, *J. Atmos. Sci.*, 1976, **33**, 2152~2168.
- 23 Lorimer, G. S., The kernel method for air quality modelling. Part I: Mathematical foundation, *Atmospheric Environment*, 1986, **20**, 1447~1452.
- 24 Brook, R., Zhang Leiming, Di-Giovanni et al., Description and evaluation of a model of deposition velocities for routine estimates of dry deposition over North America. Part II: review of past measurements and model results, *Atmospheric Environment*, 1999, **33**, 5053~5070.
- 25 Fowler, D., C. Flechard, R. L. Storeton-West, M. A. Sutton, K. J. Hargreaves, R. L. Smith, Long term measurements of SO₂ dry deposition over vegetation and soil and comparison with models, *Acid Rain research: Do We Have Enough Answers?* Heij, G. J., J. W. Erisman, Eds., Elsevier Science, Amsterdam, 1995, 9~19.
- 26 Granat, L., and A. Richter, Dry deposition to pine of sulfur Dioxide and Ozone at low concentrations, *Atmospheric Environment*, 1995, **29**, 1677~1683.
- 27 Erisman, J. W., Evaluation of a surface resistance parameterization of sulfur dioxide, *Atmospheric Environment*, 1994, **28**, 2583~2594.
- 28 Johansson, C., A. and L. Richter, Granat, Dry deposition on coniferous forest of SO₂ at PPB levels. In: *Precipitation Scavenging, Dry Deposition, and Resuspension*, H. R. Pruppacher, R. G. Semonin, and W. G. N. Slinn, Eds., Elsevier Science Publishing Co, New York, 1983, **2**, 775~784.
- 29 Fowler, D., and J. N. Cape, Dry deposition of SO₂ onto a Scots pine forest. In: *Precipitation Scavenging, Dry Deposition, and Resuspension*, H. R. Pruppacher, R. G. Semonin, and W. G. Slinn, Eds., Elsevier Science Publishing Co, New York, 1983, **2**, 763~773.
- 30 Erisman, J. W., A. H. Versluis, Verplanke, T. A. J. W., D. Haan, D. de Annk, B. G. Elzakker, M. G. van Mennen, R. M. van Aalst, Monitoring the dry deposition of SO₂ in the Netherlands; results for grassland and heather vegetation, *Atmospheric Environment*, 1993, **27**, 1153~1161.
- 31 Davies, T. D., and J. R. Mitchell, Dry deposition of sulfur dioxide onto grass in rural eastern England. In: *Precipitation scavenging, Dry Deposition, and Resuspension*, H. R. Pruppacher, R. G. Semonin, and W. G. N. Slinn, Eds., Elsevier Science Publishing Co, New York, 1983, **2**, 795~804.
- 32 Hicks, B. B., and P. S. Liss, Transfer of SO₂ and other reactive gases across the air-sea interface, *Tellus*, 1976, **28**, 248~254.
- 33 Fowler, D., and M. H. Unsworth, Turbulent transfer of sulfur dioxide to wheat crop, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society.*, 1979, **105**, 767~784.
- 34 Harrison, R. M., S. Rapsomanikis, and A. Turnbull, Land surface exchange in a chemically reactive system; surface fluxes of HNO₃, HCl and NH₃, *Atmospheric Environment*, 1989, **23**, 1795~1800.

- 35 Meyers, T. P., P. Finkelstein, J. Clarke, T. G. Ellestad, and P. F. Sims, A multilayer model for inferring dry deposition using standard meteorological measurements, *Journal of Geophysical Research*, 1998, **103**, 22645~22661.
- 36 Meyers, T. P., B. J. Huebert, and B. B. Hicks, HNO₃ deposition to a deciduous forest, *Boundary-Layer Meteorology*, 1989, **49**, 395~410.
- 37 Andersen, H. V., and M. F. Hovmand, Ammonia and nitric acid dry deposition and through fall, *Water Air and Soil Pollution*, 1995, **85**, 2211~2216.
- 38 Erisman, J. W., A. W. Vermetten, W. A. H. Asman, A. Waijers-Ijpenaan, and J. Slanina, Vertical distribution of gases and aerosols; the behavior of ammonia and related components in the low atmosphere, *Atmospheric Environment*, 1988, **22**, 1153~1160.
- 39 Van Aalst, R. M., and H. S. M. A. Dieren, Removal and transformation processes in the atmosphere with respect to SO₂ and NO_x, *International Air Pollution Modelling*, Zwerver, S., and J. van Ham, Eds., Plenum Press, New York, 1985. 83~147.
- 40 Huebert, B. J., and C. H. Robert, The dry deposition of nitric acid to grass, *Journal of Geophysical Research*, 1985, **90** (D1), 2085~2090.
- 41 Dollard, G. J., D. H. F. Atkins, T. J. Davies, and C. Healy, Concentrations and dry deposition velocities of nitric acid, *Nature*, 1987, **326**, 481~483.
- 42 Huebert, B. J., Measurement of the dry deposition flux of nitric acid vapor to grassland and forest. In: *Precipitation Scavenging, Dry Deposition, and Resuspension*, H. R. Pruppacher, R. G. Semonin, and W. G. N. Slinn, Eds., Elsevier Science Publishing Co, New York, 1983, **2**, 785~794.
- 43 Peters, K., and G. Bruckner-Schatt, The dry deposition of gases and particulate nitrogen compounds to a spruce stand, *Water Air and Soil Pollution*, 1995, **85**, 2217~2222.
- 44 Padro, J., Summary of ozone dry deposition velocity measurements and model estimates over vineyard, cotton, grass and deciduous forest in summer, *Atmospheric Environment*, 1996, **30**, 2363~2369.
- 45 Zhang, L., J. Padro, and J. L. Walmsley, A multi-layer model vs. single-layer models and observed O₃ dry deposition velocities, *Atmospheric Environment*, 1996, **30**, 339~345.
- 46 Massman, W. J., J. Pederson, A. Delany, D. Grantz, G. den Hartog, H. H. Neumann, S. P. Oncley, R. Pearson, and R. H. Shaw, An evaluation of the regional acid deposition model surface module for ozone uptake at three sites in the San Joaquin Valley of California, *Journal of Geographical Research*, 1994, **99**, 8281~8294.
- 47 Padro, J., H. H. Neumann, and G. Denhartog, Modeled and observed dry deposition velocity of O₃ above a deciduous forest in the winter, *Atmospheric Environment*, 1992, **26** (5), 775~784.
- 48 Padro, J., Observed characteristics of the dry deposition velocity of O₃ and SO₂ above a wet deciduous forest, *Science of the Total Environment*, 1994, **146/147**, 395~400.
- 49 Wesely, M. L., D. R. Cook, R. L. Hart, B. B. Hicks, J. L. Durham, R. E. Speer, D. H. Stedman, and R. J. Trapp, By correlation measurements of dry deposition of particulatesulphur and submicron particles. In: *Precipitation Scavenging, Dry Deposition, and Resuspension*, H. R. Pruppacher, R. G. Semonin, and W. G. N. Slinn, Eds., Elsevier Science Publishing Co, New York, 1983, **2**, 943~952.
- 50 Gusten, H., G. Heinrich, E. Monnich, D. Sprung, J. Weppner, A. Ramadan, and M. Ezz El-Din, On-line measurements of ozone surface fluxes. Part II: Surface level ozone fluxes onto the Sahara Desert, *Atmospheric Environment*, 1996, **30**, 911~918.
- 51 Delany, A. C., and T. D. Davies, Dry deposition of NO_x to grass in rural East Anglia, *Atmospheric Environment*, 1983, **17**, 1391~1394.
- 52 Sanchez, M. L., and R. Rodriguez, Ozone dry deposition in a semi-arid Steppe and in a coniferous forest in Southern Europe, *Journal of Air and Waste Mangement Association*, 1997, **47**, 792~799.
- 53 Lenschow, D. H., J. R. Pearson, and B. B. Stankov, Measurements of ozone vertical flux to ocean and forest, *Journal of Geophysical Research*, 1982, **87**, 8833~8837.

- 54 Wyers, G. P., and J. H. Duyzer, Micrometeorological measurement of the dry deposition flux of sulfate and nitrate aerosols to coniferous forest, *Atmospheric Environment*, 1997, **31**, 333~343.
- 55 Hicks, B. B., M. L. Wesely, J. L. Durham, and M. A. Brown, Some direct measurements of atmospheric sulfur fluxes over a pine plantation, *Atmospheric Environment*, 1982, **12**, 2899~2903.
- 56 Lindberg, S. E., and R. C. Harriss, The role of atmospheric deposition in an eastern U. S. deciduous forest, *Water, Air and Soil Pollution*, 1981, **16**, 13~31.
- 57 Hicks, B. B., D. R. Matt, R. T. McMillan, J. D. Womack, M. L. Wesely, R. L. Hart, D. R. Cook, S. E. Lindberg, R. G. de Pena, and D. W. Thomsom, A field investigation of sulfate fluxes to a deciduous forest, *Journal of Geophysical Research*, 1989, **94**, 13003~13011.
- 58 Nicholson, K. W., and T. D. Davies, Field measurements of the dry deposition of particulate sulfate, *Atmospheric Environment*, 1987, **21**, 1561~1571.
- 59 Everett, R. G., B. B. Hicks, W. W. Berg, and J. W. Winchester, An analysis of particulate sulfur and lead gradient data collected at Argonne National Laboratory, *Atmospheric Environment*, 1979, **13**, 931~934.

Temporal Variety and Spatial Distribution of Dry Deposition Velocities of Typical Air Pollutants Over Different Landuse Types

Zhang Yan¹⁾, Wang Tijian¹⁾, Hu Zhengyi²⁾, and Xu Chengkai²⁾

1) (Department of Atmospheric Science, Nanjing University, Nanjing 210093)

2) (Laboratory of Material Cycling in Pedosphere, Institute of Soil Science, Chinese Academy of Science, Nanjing 210008)

Abstract The dry deposition velocities (V_d), which were parameterized by use of a big leaf model, are calculated over farmland and forest with gradient meteorological data in red soil observation station of Chinese Academy of Science. Furthermore, the mesoscale meteorological model (MM5) and the regional acid deposition model system (RegADMS) coupled with the big leaf model were combined to simulate the distribution of dry deposition velocities of air pollutants over China. As the result, there are obvious temporal varieties in V_d . Statistical daily and monthly-average dry deposition velocities values show that V_d in daytime is higher than that in night, V_d in spring and winter are more large than that in other seasons. There are also evident spatial varieties in V_d , the estimated annual average dry deposition velocities over China are $0.35 \pm 0.004 \text{ cm s}^{-1}$ for SO_2 , $1.77 \pm 0.01 \text{ cm s}^{-1}$ for HNO_3 (g), $6.5 \times 10^{-5} \pm 2.0 \times 10^{-7} \text{ cm s}^{-1}$ for NO, $0.07 \pm 0.007 \text{ cm s}^{-1}$ for NO_2 , $0.28 \pm 0.003 \text{ cm s}^{-1}$ for NH_3 , $0.20 \pm 0.001 \text{ cm s}^{-1}$ for O_3 , $0.54 \pm 0.002 \text{ cm s}^{-1}$ for H_2O_2 , $7.2 \pm 0.0005 \text{ cm s}^{-1}$ for TSP, $0.44 \pm 0.0005 \text{ cm s}^{-1}$ for PM10, $0.25 \pm 0.0005 \text{ cm s}^{-1}$ for sulfate aerosol, $0.27 \pm 0.0008 \text{ cm s}^{-1}$ for nitrate aerosol, respectively. There is no evident difference in V_d for particles. However, there is distinct difference in V_d in different landuse types. For HNO_3 , NO_2 and O_3 , V_d in forest and grassland are more large than those in the other landuse types. For SO_2 , NH_3 and H_2O_2 , V_d in water are more large compared to those in other landuse types. For NO, there is no visible difference in V_d because of small values.

Key words: dry deposition; dry deposition velocity; air pollutant