

吴保见, 王昆, 贾立, 等. 2017. 源项对 FLEXPART 模式模拟福島核事故放射性物质长距离传输的影响 [J]. 气候与环境研究, 22 (1): 10–22. Wu Baojian, Wang Kun, Jia Li, et al. 2017. Influences of source term on long-range transport of radionuclides from the Fukushima Daiichi nuclear accident with FLEXPART model [J]. Climatic and Environmental Research (in Chinese), 22 (1): 10–22, doi:10.3878/j.issn.1006-9585.2016.15246.

源项对 FLEXPART 模式模拟福島核事故放射性物质长距离传输的影响

吴保见^{1,2} 王昆¹ 贾立¹ 郭瑞萍³

1 中国科学院遥感与数字地球研究所, 北京 100101

2 中国科学院大学, 北京 100049

3 环境保护部核与辐射安全中心, 北京 100082

摘 要 对包括拉格朗日粒子模式在内的大气扩散模式, 提供准确的源项有助于获取更好的模拟结果。以日本福島核电站 2011 年 3 月发生的核泄漏事故为研究对象, 采用日本原子能机构 Terada 源项以及挪威大气研究所 Stohl 源项, 利用 FLEXPART (FLEXible PARTicle dispersion mode) 模拟了放射性物质 ^{137}Cs 在全球大气中扩散传输的过程, 并利用大气辐射监测数据讨论了基于两种源项模拟烟云的时空分布特征, 探讨了源项对模拟结果的不确定性影响。结果显示: Terada 源项及 Stohl 源项之间释放总量、释放速率、释放高度等虽然略有差别, 但总体趋势描述相似, 使得基于两源项的模拟烟云的扩散过程及影响区域基本一致。两模拟烟云在中纬度西风带作用下, 均表现为自西向东扩散, 经过太平洋、美洲大陆、欧洲, 最后在整个北半球传输。基于两源项在亚洲—太平洋及北美大陆等近距离的模拟烟云的首次到达时间与首次监测时间吻合度较好, 在全球尺度上基于 Stohl 源项的模拟在首次到达时间方面表现更优。其次, 基于两源项进行全球尺度的模拟, 近距离站点的模拟效果优于远距离站点模拟效果, 且基于 Stohl 源项的模拟精度较好, Terada 源项可能存在低估。另外模式进行全球尺度的模拟时, 针对不同粒子数目对模拟结果的影响进行了分析, 发现粒子数目的多寡对模拟精度有所影响, 也影响模拟烟云扩散后期的疏密程度。

关键字 福島核事故 放射性物质 大气扩散 FLEXPART 模式 源项

文章编号 1006-9585 (2017) 01-0010-13

中图分类号 P404

文献标识码 A

doi:10.3878/j.issn.1006-9585.2016.15246

Influences of Source Term on Long-Range Transport of Radionuclides from the Fukushima Daiichi Nuclear Accident with FLEXPART Model

WU Baojian^{1,2}, WANG Kun¹, JIA Li¹, and GUO Ruiping³

1 Institute of Remote Sensing and Digital Earth Chinese Academy of Sciences, Beijing 100101

2 University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049

3 Nuclear and Radiation Safety Center, Beijing 100082

Abstract The lagrangian particle dispersion models require an accurate source term as input to obtain better simulation results. In this paper, two different ^{137}Cs source terms of Fukushima accident from Terada and Stohl were utilized. The

收稿日期 2015-11-03; 网络预出版日期 2016-05-06

作者简介 吴保见, 男, 1991 年出生, 硕士研究生, 主要从事大气污染扩散模式及遥感应用研究. E-mail: wubj@radi.ac.cn

通讯作者 王昆, E-mail: wangkun@radi.ac.cn

资助项目 国家科技重大专项—CAP1400 安全审评关键技术研究项目 2013ZX06002001

Funded by National Science and Technology Major Project of the Ministry of Science and Technology of China: CAP1400 Safety Review Key Technology Study (Grants 2013ZX06002001)

FLEXPART (FLEXible PARTicle dispersion mode) was used to simulate global atmospheric dispersion and transport of radionuclides released from the Fukushima Daiichi nuclear accident. The atmospheric radiation monitoring data enable us to assess the spatial-temporal distribution of the two radioactive plumes and explore the uncertainty in results due to the different source terms. The results showed that despite the differences in the total emission, emission rate, and height of emission between the source terms of Terada and Stohl, the two source terms were alike in the whole developing trend. Thereby the two radioactive plumes had similar diffusion processes and reached similar regions. Under the influence of mid-latitude westerlies, the two radioactive plumes moved eastward across the Pacific Ocean, the American continent and Continental Europe, and eventually spread over the entire Northern Hemisphere. For short-range stations in the Asia-Pacific and North American regions, the simulated time of first detection of radioactive plume arriving at these stations with the two source terms both agreed well with the observed time. For long-range stations, the simulated time of first detection of the radioactive plume at these stations agreed better with the observed time when using the Stohl source term as input compared to that using the Terada source term as input. Second, using the two different source terms as input respectively, FLEXPART was applied to simulate global atmospheric dispersion of radionuclides. Results indicated that the simulated radioactivity concentrations were more accurate at the short-range stations than at the long-range stations. In addition, the simulated radioactivity concentrations were more accurate with Stohl's source term as input than that with Terada's source term as input. Terada's source term appeared to be lower than observations. Finally, the influence of the number of particles in the global model simulation was evaluated. It was found that differences in the number of particles could affect the statistical indexes of long-range transport of pollutants and the density of the diffusive radioactive plume in its late stage.

Keywords Fukushima Daiichi nuclear accident, Radionuclides, Atmospheric dispersion, FLEXPART model, Source term

1 引言

2011 年 3 月 11 日, 由地震引发的海啸导致日本福岛第一核电站发生核泄漏, 使其成为继 1986 年切尔诺贝利之后的第二个七级事故。福岛核事故排放大量放射性物质进入大气, 其放射性对居民健康、生态安全等造成严重威胁。事故发生后, 中日及欧美等国以及联合国全面禁止核试验条约组织筹委会 (Comprehensive nuclear-Test-Ban Treaty Organization, 以下简称 CTBTO) 等国际组织先后开展了环境监测, 相关研究学者也进行了大量关于后果评价、关键核素的源项反演等方面的工作 (Ryan, 2012)。大气扩散模式是研究放射性核素在大气中扩散、沉降等过程的一种重要方法, 其模拟结果可以为应急防护措施的制定、评估放射性的危害等提供强有力的支撑。过去几十年, 相继发展了数十个大气扩散模式用于放射性物质的扩散、沉降研究, 其中拉格朗日模式被广泛应用于福岛核事故放射性物质的长距离传输等研究中, 以 FLEXPART (FLEXible PARTicle dispersion mode)、HYSPLIT (Hybrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory model)、NAME (Numerical Atmospheric dispersion Modeling Environment) 等模式使用较多 (Stohl et al., 2012; Arnold et al., 2015;

Draxler et al., 2015; Leadbetter et al., 2015)。拉格朗日模式与欧拉模式相比, 其在复杂地形和非稳定流体条件下的预测表现较好, 并且模式的数学处理方便, 不存在闭合问题。但模式模拟过程涉及的参数较多, 带来了诸多不确定性, 其中较为重要的因素是源项的不确定性以及气象驱动的不确定性 (Angevine et al., 2014)。

源项作为模式模拟的不确定性来源之一, 其排放速率、高度、总量等对放射性物质的大气扩散、沉降等结果具有重要的影响 (Morino et al., 2011; Korsakissok et al., 2013)。特别地, 福岛作为一个重大的核事故案例, 准确的源项以及大量的监测信息为大气扩散模式的应用与发展提供了现实有力的支撑。福岛核事故后, 国内外研究学者均对福岛释放源项进行了估算 (Chino et al., 2011; 王海洋等, 2011; 陈晓秋等, 2012; Lin et al., 2015), 但由于事故过程的复杂性、反演方法的局限性等因素, 福岛大气释放源项的估算一直没有获得统一可接受的结果。在福岛核素的大气扩散传输等相关研究中, 国内外研究学者采用较多的是日本原子能机构 (Japan Atomic Energy Agency, 以下简称 JAEA) 中 Chino et al. (2011)、Katata et al. (2012a, 2012b)、Terada et al. (2012) 相继反演与完善的源项, 以及挪威大气研究所 Stohl et al. (2012) 反演的源项。源项对大气扩散模式模拟结果的影响研究目前开

展较少, Marzo (2014) 对 Katata et al. (2012a, 2012b) 反演源项的释放高度等参数进行了敏感性分析, 显示释放高度变化会影响到模拟沉降区域的变化。Christoudias and Lelieveld (2013) 基于大气化学模式 EMAC (ECHAM5/MESSy Atmospheric Chemistry model) 针对福岛核事故采用 Chino et al. (2011) 反演的源项 (^{131}I) 进行了敏感性分析, 模拟结果显示 ^{131}I 释放总量扩大五倍直接造成受污染区域的扩大。

源项对于模式模拟有直接影响, 但人们对源项的不确定性在模式模拟过程中的传递及累积程度的认识并不十分清晰。为了更好地利用大气扩散模式开展福岛核事故对大气环境的影响进行评估, 并对其他类似研究提供一些认识, 本研究基于两种释放源项, Terada et al. (2012) 与 Stohl et al. (2012) 反演的福岛放射性物质 ^{137}Cs 的释放源项 (以下简称 Terada 源项和 Stohl 源项), 利用 FLEXPART 模式, 对两种源项模拟烟云的时空分布、扩散特征进行对比, 探讨源项对大气扩散模式模拟结果不确定性的影响。

2 模式和资料

2.1 模式介绍

FLEXPART 模式是由挪威大气研究所开发的一种拉格朗日粒子扩散模式 (Stohl et al., 2011), 可计算点、线、面或体释放源释放的污染粒子在中尺度及大尺度区域的传输、扩散、沉降和放射性衰减等过程。FLEXPART 前向模拟可获得污染物传输、扩散轨迹, 后向模拟可获得对固定点有潜在影响的排放源区分布或驻留时间 (也称敏感性系数或印痕函数) (蔡旭晖等, 2008)。FLEXPART 从最初仅用于计算点源污染的长距离、中尺度空气污染扩散, 如今已发展为一个对大气传输模拟和分析的综合工具, 它的应用领域也从空气污染扩散扩展到诸如突发事件 (Gahein et al., 2013; Marandino et al., 2013)、全球水循环 (Sakamoto et al., 2011) 及物质传输 (Weaver et al., 2014) 等其他领域。

拉格朗日粒子扩散模式运用随体粒子描述污染物浓度的分布及其变化特征, 把污染物当作粒子, 大量标记的质点释放作为污染物的释放, FLEXPART 模式作为其中的一种, 同样运用相同的方式进行。源项作为 FLEXPART 模式重要的输入参

数, 需要明确释放源的释放物质及其特性、释放速率等。在某些释放事件的整个过程中释放速率并不是恒定不变的, 而在其中某段时间内的释放速率可看作是均匀释放, 所以整个释放过程就可以划分成若干个匀速释放的时间段。FLEXPART 模式的源项输入, 可设置多个匀速释放的时间段, 在每个时间段内需要确定释放的起止日期与时间、释放源的位置、释放的高度范围、释放的量以及释放的粒子数目。

FLEXPART 模式的核心是大气污染物的源汇关系, 污染物的粒子轨迹的运算主要采用“零加速度”方案 (Stohl et al., 2011), 即

$$\mathbf{X}(t + \Delta t) = \mathbf{X}(t) + \mathbf{v}(\mathbf{X}, t)\Delta t, \quad (1)$$

其中, t 是时间; Δt 是时间的增量; $\mathbf{X}$ 是污染物粒子的位置矢量; $\mathbf{v}$ 是风矢量, 是由网格尺度分量 $\bar{\mathbf{v}}$ 、湍流脉动分量 $\mathbf{v}_t$ 和中尺度风脉动分量 $\mathbf{v}_m$ 共同组成, 即 $\mathbf{v} = \bar{\mathbf{v}} + \mathbf{v}_t + \mathbf{v}_m$ 。

湍流脉动分量通过朗格文方程进行计算。风矢量湍流脉动分量 $\mathbf{v}_t$ 的参数化过程是基于一个马尔可夫过程的朗格文方程的假设进行的:

$$d\mathbf{v}_t = a(\mathbf{x}, \mathbf{v}_t, t)dt + b_j(\mathbf{x}, \mathbf{v}_t, t)dW_j, \quad (2)$$

其中, a 为漂移项, b 是扩散项, a 、 b 都是粒子位置、湍流速度和时间的函数; dW_j 是平均值为 0 和微增量为 d_t 的维纳过程 (Wiener process) 中的一个微增分量。

模式在时刻 T_c 处的输出浓度 C_{T_c} 是在时间段 $[T_c - \Delta T_c / 2, T_c + \Delta T_c / 2]$ 内计算浓度的均值。为了求解平均浓度, 在 ΔT_c 时间段内以 ΔT_s 为浓度计算的积分步长, 划分成 $N = \Delta T_c / \Delta T_s$ 步数, 则

$$C_{T_c} = (1/N) \sum_{i=1}^N C_{T_s}, \quad (3)$$

其中, N 是网格单元包含的粒子数目, ΔT_c 与 ΔT_s 均为模式输入参数。 ΔT_s 越小, 积分步数就越多并且得到的平均浓度就会越准确。

一个网格单元在时刻 ΔT_s 的浓度 C_{T_s} 由该网格单元内所有粒子的质量分数和网格单元体积 V 决定, 即

$$C_{T_s} = \left[\sum_{i=1}^N (m_i f_i) \right] / V, \quad (4)$$

其中, m_i 是第 i 个粒子的质量, f_i 是第 i 粒子的相对于格网单元的质量分数。质量分数的确定与粒子位置和输出网格的经、纬向距离 $(\Delta x, \Delta y)$ 有关, 如图 1 粒子位于边长为 $(\Delta x, \Delta y)$ 的阴影矩阵中心。通常, 阴影区域覆盖 4 个网格单元, 每个网格都接收到一

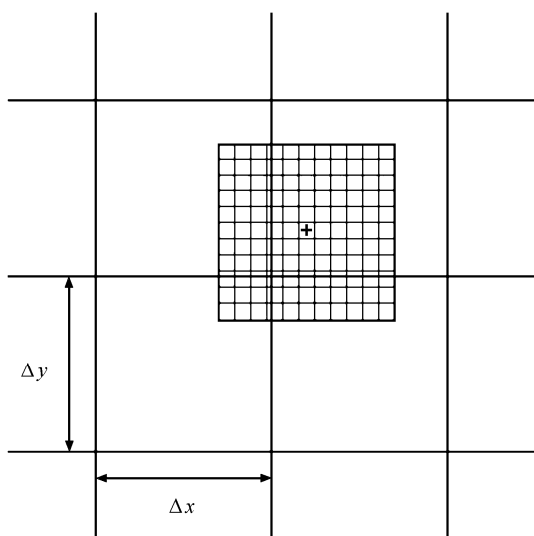


图1 计算网格浓度场的示意图。粒子的位置被标记为“+”

Fig. 1 Illustration of the method used to calculate gridded concentration.

The particle position is marked by “+”

部分粒子质量, 粒子对所处网格单元的质量分数 f_i 就是覆盖所处网格的阴影面积所占整个阴影面积的比例。

FLEXPART 中还涉及到边界层高度、摩擦速度、奥布霍夫长度等边界层参数的参数化过程、湿对流、污染粒子的干湿沉降及放射性衰减等过程。详细的参数化方案可参考模式的技术文档 (Stohl et al., 2011)。

2.2 源项资料

源项资料主要包括释放种类、释放速率、释放高度等内容, 是模式重要的输入参数。本研究采用的两种源项方案介绍如下。

Terada 源项: 对于 2011 年日本福岛核泄漏事件, 在日本原子能机构中 Chino et al. (2011) 利用 WSPEEDI-II (Worldwide version of System for Prediction of Environmental Emergency Dose Information) 模式, 采用逆向评估办法, 结合核电站周边地区大量环境监测资料对 3 月 14 日至 4 月 5 日的源项进行估算; Katata et al. (2012a, 2012b) 基于 WSPEEDI-II 的正向模拟结果, 利用核电站周边地区更大范围的监测资料, 对 Chino et al. (2011) 反演的 3 月 15~17 日的源项进行了更新, 并反演了 3 月 12~14 日的源项; Terada et al. (2012) 利用中尺度大气扩散模式的结果, 使用更多的大气浓度、沉降监测数据等资料对上述两者的源项进行了优化并将结果延伸至 5 月 1 日, 此源项为本研究采

用的源项, 以下称为 Terada 源项。Terada 源项排放总量为 8.8676 PBq, 释放时间为 3 月 11 日至 5 月 1 日, 3 月的释放高度在 100 m 到 300 m 之间, 其他时间大多在 20 m 以下 (如图 2)。其中 Marzo (2014)、Draxler et al. (2015)、Morino et al. (2011)、盛黎等 (2014) 皆运用了该类源项对福岛核事故放射性污染物的大气扩散、沉降等方面进行了研究。

Stohl 源项: 挪威大气研究所的 Stohl et al. (2012) 利用源反演算法结合不同类型的全球性地面监测数据以及 FLEXPART 模式对源项进行反演, 随后并进行了优化。Stohl 源项排放总量为 36.6 PBq, 释放时间为 3 月 11 日至 4 月 20 日, 每 3 h 一个释放速率, 释放高度分为 3 层 (如图 3)。Christoudias and Lelieveld (2013) 利用 Stohl 源项对福岛核事故放射性物质的全球尺度的大气扩散和沉降状况进行了研究。

从图 2 和图 3 看出, 两源项在早期的三个峰值对应核事故中发生的三次爆炸过程, 在整个过程也都呈现早期波动性高释放、后期平稳低释放特点。Stohl 源项基于 FLEXPART 模式及全球性尺度监测数据反演获得 (Stohl et al., 2012), 而 Terada 源项基于 WSPEEDI-II 模式及区域尺度监测数据反演得到 (Terada et al., 2012), 不同的数据及反演方式使得两者在释放总量、时间等方面存在明显差异。前者释放总量为后者的 4 倍, 后者释放时间比前者长 10 d。Stohl 源项释放高度分三层, 而 Terada 释放源高度随时间在 0~300 m 变动。由于 Stohl 源项每 3 h 提供一个释放速率, 其描述更显细致。

2.3 数据资料

研究采用的气象输入数据为美国气象环境预报中心 (National Centers for Environmental Prediction, 以下简称 NCEP) 的全球预报资料 (Global Forecast System, 以下简称 GFS) 数据集。数据集的空间分辨率为 0.5° (纬度) $\times 0.5^\circ$ (经度), 垂直分 37 层, 时间分辨率 1 h。GFS 主要为 FLEXPART 模式提供大气的风场、温度及相对湿度等气象变量。

大气辐射监测数据主要为联合国原子辐射效应科学委员会 (United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 以下简称 UNSCEAR) 收集到的 CTBTO IMS (International Monitoring System) 38 个站点的监测数据。由于 UNSCEAR 收集的 JPP38 站点数据存在误差且个别

站点数据缺失, 本文使用了日本国际问题研究所提供的 CTBTO 在高崎 (JPP38) 测量修正数据作为代替, 并补充了加拿大卫生部 (Health Canada) 发布的 CTBTO 在 Ottawa 站点的观测数据。此外, 在福岛核事故期间, 伯克利大学核工程系对 Californian

地区 (University of California, Berkeley, 简称 UCB 站点) 以及日本国立环境研究所对筑波市 (Tsukuba) 分别进行了测量。CTBTO 的 38 个站点、伯克利大学的 UCB 及日本国立环境研究所 Tsukuba 站点分布如图 4 所示。

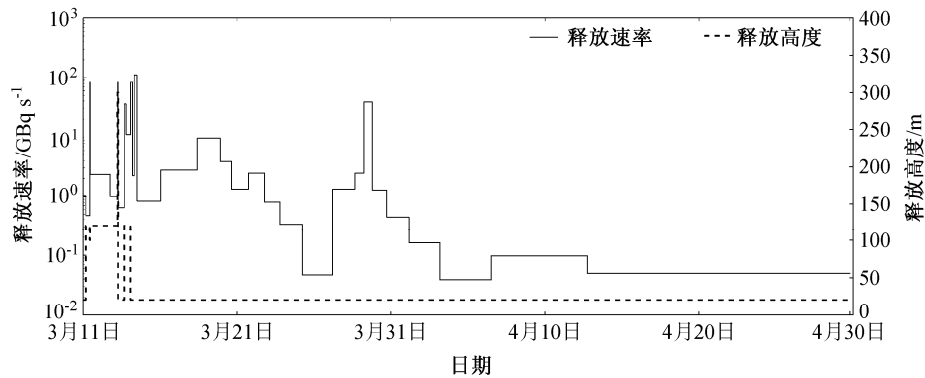


图 2 Terada 源项的释放速率、释放源高度随时间变化图

Fig. 2 Estimated temporal changes in the release rate and height of ^{137}Cs by Terada

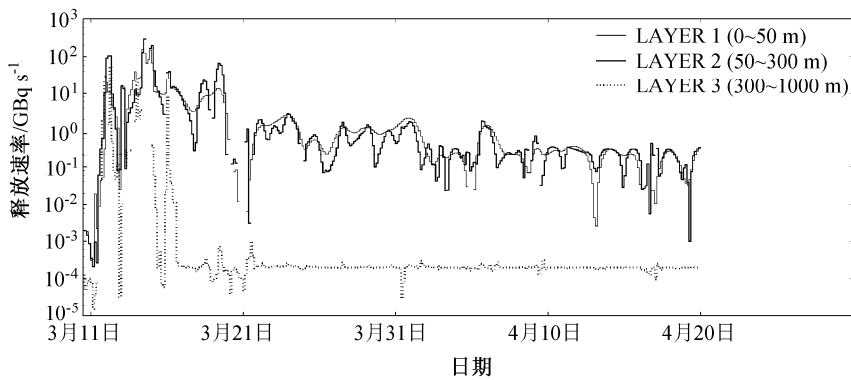


图 3 Stohl 源项的释放速率随时间的变化图

Fig. 3 Estimated temporal changes in the release rate of ^{137}Cs by Stohl

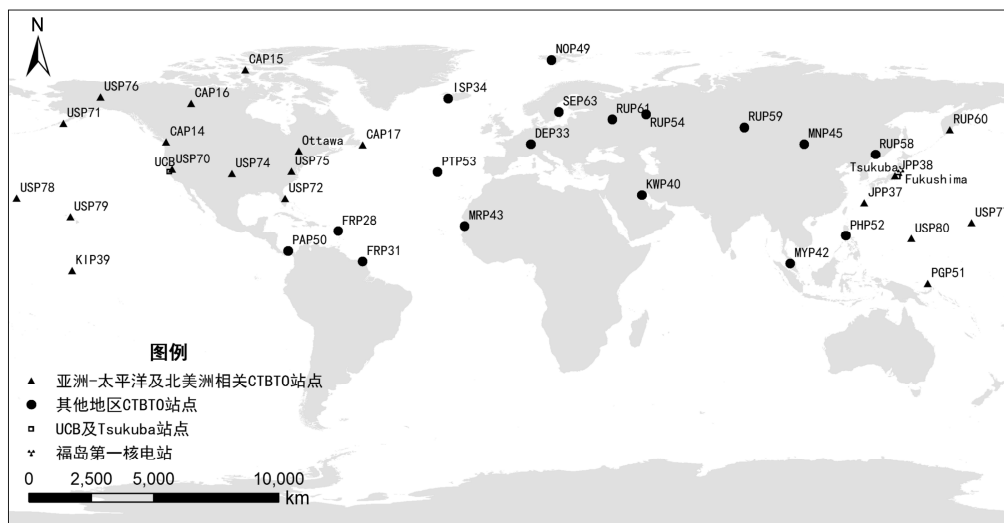


图 4 CTBTO 的 38 个站点以及伯克利大学的 UCB 站点及日本国立环境研究所 Tsukuba 站点分布

Fig. 4 Locations of the 38 CTBTO (Comprehensive nuclear-Test-Ban Treaty Organization) measurement stations, the UCB (University of California, Berkeley) station and the Tsukuba station of National Institute for Environmental Studies

2.4 模拟参数的设置

在福島核事故过程中，爆发性地高空喷射放射性粒子的现象并没有出现，根据放射性物质的释放方式等选取其为点源释放，位于福島第一核电站（37.42°N，141.03°E）所处位置。参照 Stohl et al.（2012），设置示踪物质 ^{137}Cs 为气溶胶粒子，密度 1900 kg/m^3 ，粒子的空气动力学直径假设为服从均值 $0.4\text{ }\mu\text{m}$ 、标准差 $0.3\text{ }\mu\text{m}$ 的对数正态分布。粒子干沉降速率根据粒子属性及所在格点的土地覆盖类型等决定。湿沉降分云内湿沉降和云下湿沉降两种，其中云下湿沉降系数 A 表达式为 $A=AI^B$ ， I 为降雨强度（单位： mm h^{-1} ）， A 为气溶胶粒子在 $I=1\text{ mm h}^{-1}$ 时的沉降系数， $A=10^{-4}$ （单位： $\text{h mm}^{-1}\text{ s}^{-1}$ ）， $B=0.8$ （Marzo，2014）。为研究不同源项设置对 FLEXPART 模拟结果的影响，设置了 2 组试验。试验 EXP-Terada、EXP-Stohl 分别以 Terada 与 Stohl 源项作为模式的输入参数，方案如表 1 所示。

表 1 试验方案
Table 1 Experimental design

试验	释放日期	释放总量/ pBq	时间 段	粒子 总数
EXP-Terada	3 月 11 日至 5 月 1 日	8.86	30	886660
EXP-Stohl	3 月 11 日至 4 月 20 日	36.60	324	3663606

模拟时间为 2011 年 3 月 10 日到 5 月 1 日，输出网格区域为（45°S~70°N，180°W~180°E），格点分辨率为 0.5° （纬度） $\times 0.5^\circ$ （经度），时间分辨率为 1 h，垂直方向分为 100、500、1000、2000、5000、15000 m 共 6 层。为了更好地与地面监测资料对比，选取模式第一层（0~100 m）输出结果进行验证分析（安兴琴等，2014）。

3 结果分析

3.1 两种源项设置模拟的放射性污染物浓度时空分布差异

福島位于中纬度西风带（王鹏飞等，2013），在大气环流的作用下，基于两源项的模拟烟云主要从西向东扩散传输，如图 5 和图 6 中所呈现的基于 Terada 与 Stohl 两种源项下模拟的 3 月 11 日至 5 月 1 日 ^{137}Cs 在研究区大气边界层内的传输扩散过程。综合图 5 和图 6 的结果可以看出，由于两源项的释放过程总体相似，模拟的烟云同时表现出以下特征：释放初期放射性烟云向西太平洋、白令海峡方

向扩散，3 月 16、17 日越过太平洋进入北美大陆，3 月 22 日左右越过大西洋扩散至欧洲西北部，最终到达蒙古、中国等地，从而覆盖北半球中纬度地区。但模拟烟云在美洲大陆浓度在 10^{-3} Bq/m^3 波动，与福島源区浓度 10^3 Bq/m^3 相比下降 6 个量级，而欧亚地区浓度则更小。

两源项之间释放总量、释放速率、释放高度等存在的差异使得模拟烟云的空间分布存在差异。如图 5 和图 6，基于两源项的模拟烟云随着各自的扩散，虽然在相近时刻两模拟烟云所覆盖区域大致相似，但基于 Stohl 源项的烟云浓度更高，特别是 4 月 15 日扩散后期的两模拟烟云疏密程度存在显著差异，基于 Stohl 源项的烟云更细密。两源项之间的释放总量（特别是粒子数量）之间的差异可能是造成浓度高低不同、后期烟云的疏密程度存在差异的主要原因。Stohl et al.（1998）也指出随着模拟烟云的扩散，需要更多的粒子以获得平滑的浓度场。

德国联邦地球科学和自然资源研究所（BGR，2011）基于 CTBTO 监测资料，发布了各站点首次监测到烟云到达的时间，本文采用这一套数据为研究对比的观测数据。基于两源项模拟的烟云首次到达站点的时间与观测数据对比，吻合度较好，特别是亚洲—太平洋、北美大陆地区，多数站点的两类时间差在 1 d 之内，与 Christoudias and Lelieveld（2013）结论基本一致。表 2 为基于两源项模拟的烟云首次到达 CTBTO 全部站点的时间与观测数据相差 0、1、2、3、4、5、>5 d 的站点个数及无监测数据站点。由表 2 可知，基于 Stohl 源项的时间差别在 1 天内的站点数目为 21 个站，模拟准确度优于基于 Terada 源项的模拟效果（14 个站）。站点

表 2 模拟的烟云首次到达时间与观测结果相差天数的站数统计分析

Table 2 Statistical analysis of the differences in time (number of days) of first detection of radioactive plumes at stations between simulations and observations

	Terada 站数	Stohl 站数
相差天数 0 d	6	5
相差天数 1 d	8	16
相差天数 2 d	4	4
相差天数 3 d	3	3
相差天数 4 d	7	5
相差天数 5 d	4	0
相差天数>5 d	3	2
无监测数据	4	4
总站数	38	38

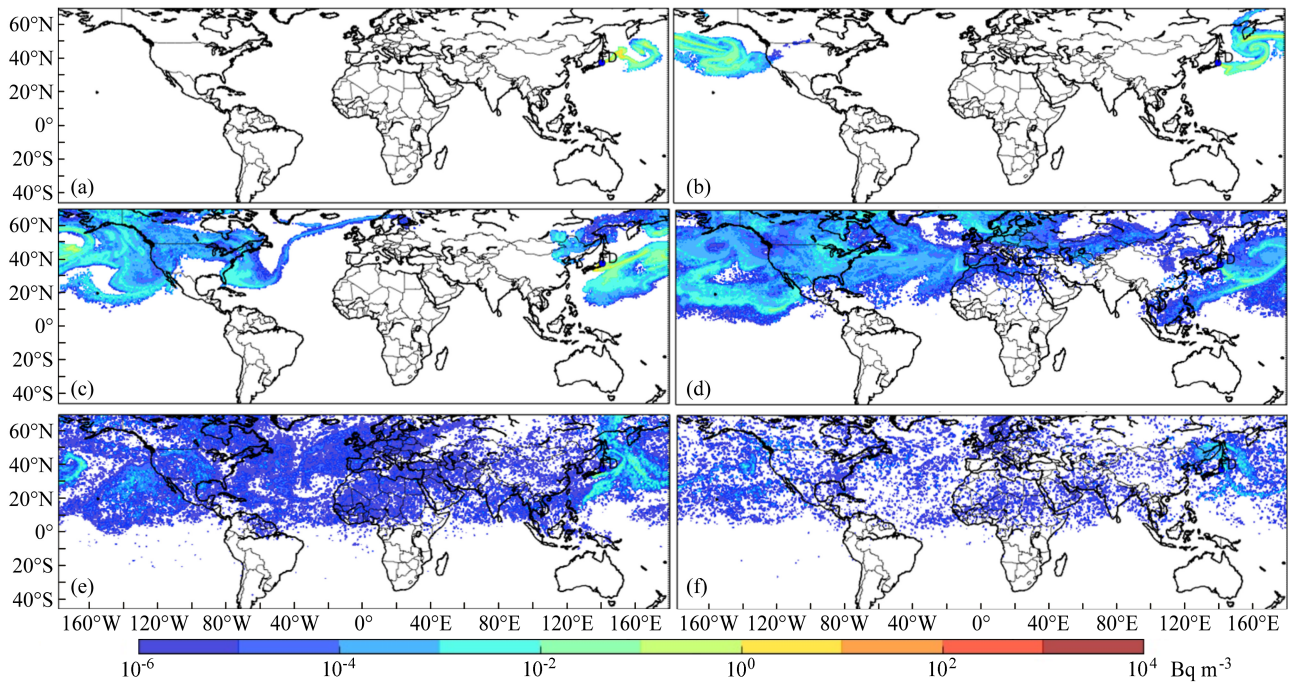


图5 EXP-Terada 试验获得的大气边界层内(2000 m 以下)的放射性物质 ^{137}Cs 浓度: (a) 2011 年 3 月 14 日 08:00 (协调世界时, 下同); (b) 2011 年 3 月 17 日 01:00; (c) 2011 年 3 月 21 日 17:00; (d) 2011 年 3 月 28 日 00:00; (e) 2011 年 4 月 17 日 06:00; (f) 2011 年 4 月 24 日 00:00

Fig. 5 Temporal changes in radioactivity concentration in ABL(Atmospheric Boundary Layer) (below 2000 m) from EXP-Terada: (a) 0800 UTC 14 Mar 2011; (b) 0100 UTC 17 Mar 2011; (c) 1700 UTC 21 Mar 2011; (d) 0000 UTC 28 Mar 2011; (e) 0600 UTC 17 Apr 2011; (f) 0000 UTC 24 Apr 2011

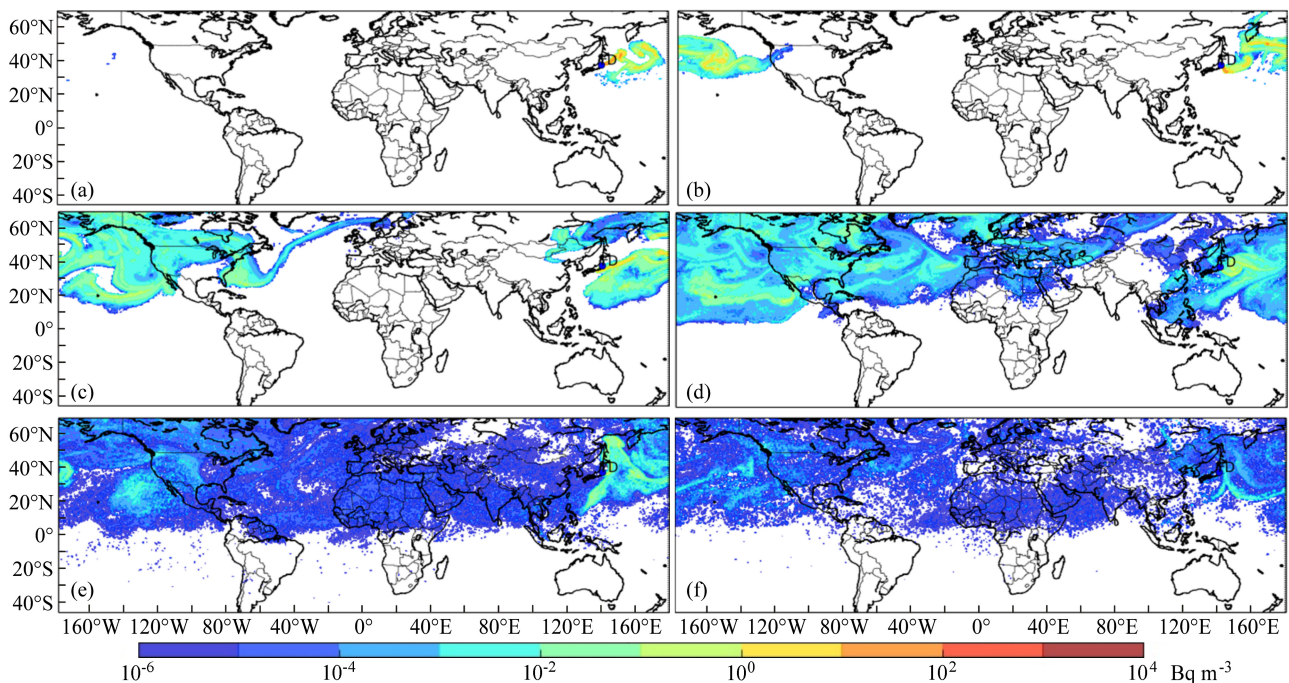


图6 EXP-Stohl 试验获得的大气边界层内(2000 m 以下)的放射性物质 ^{137}Cs 浓度: (a) 2011 年 3 月 14 日 08:00; (b) 2011 年 3 月 16 日 14:00; (c) 2011 年 3 月 21 日 09:00; (d) 2011 年 3 月 26 日 14:00; (e) 2011 年 4 月 16 日 11:00; (f) 2011 年 4 月 24 日 00:00

Fig. 6 Temporal changes in radioactivity concentration in ABL(Below 2000 m) from EXP-Stohl: (a) 0800 UTC 14 Mar 2011; (b) 1400 UTC 16 Mar 2011; (c) 0900 UTC 21 Mar 2011; (d) 1400 UTC 26 Mar 2011; (e) 1100 UTC 16 Apr 2011; (f) 0000 UTC 24 Apr 2011

首次到达时间的站点数的对比可知, 利用两源项进行的全球尺度模拟, 总体上, 基于 Stohl 源项的模拟烟云首次到达时间上表现更好。

3.2 模拟结果验证

使用 CTBTO 站点对放射性物质的监测浓度与基于两源项在站点模拟到的浓度进行统计分析, 其中由于 CAP15、NOP49 站点位于研究区外及 JPP38 站点的修正数据的可靠性等原因, 分析时不采用这 3 个站点数据。基于 Stohl et al. (1998) 利用示踪试验数据对 FLEXPART 模拟效果验证研究, 选取的统计指标为偏差因子 F_B 、均方根误差 N_{MSE} 以及皮尔森相关系数 r 。其中偏差因子 F_B 及均方根误差 N_{MSE} 计算公式分别为

$$F_B = 2C(\bar{P} + \bar{M}), \quad (5)$$

$$C = (1/N) \sum_{i=1}^N (P_i - M_i), \quad (6)$$

$$N_{MSE} = (1/N) \sum_{i=1}^N (P_i - M_i)^2 / \bar{P} \bar{M}, \quad (7)$$

其中, N 是观测与模拟对比数据的个数, $\bar{P}$ 与 $\bar{M}$ 分别为预测平均值和观测平均值, P_i 与 M_i 分别为模型预测值和观测值。 F_B 为归一化数值, 没有量纲, 在 -2 到 2 之间取值, $F_B=0$ 时模型可看作理想模型。 N_{MSE} 是对预测结果与观测结果总体偏差的估计, N_{MSE} 较低时说明模型在时空分布上模拟较好, N_{MSE} 较高时也不代表模型预测效果较差, N_{MSE} 与峰值关系较为密切。

针对两次模拟, 基于 Stohl 源项的模拟浓度与观测浓度的统计结果 F_B 、 N_{MSE} 和 r 分别为 0.67、50.51 和 0.45, 基于 Terada 源项的对应指标为 -1.09、22.91 和 0.33。从统计结果看出, FLEXPART 基于 Stohl 源项在全球尺度的模拟浓度与观测浓度之间

的 F_B 及 r 好于基于 Terada 源项的模拟, 而 N_{MSE} 较差。图 7 给出了模拟浓度与观测浓度在 CTBTO 站点的散点图。由于 N_{MSE} 与峰值关系较大, 基于 Stohl 源项的模拟浓度的峰值较基于 Terada 源项的模拟浓度的峰值多并且模拟浓度较大, 可能是造成 N_{MSE} 较大的原因。其次, 从图 7 中可看出基于 Terada 源项模拟结果多分布于 1:1 线以下, 并且模拟浓度与观测浓度之间的 F_B 为负值, 说明基于 Terada 源项的模拟浓度总体偏低。由统计指标及散点图可知, FLEXPART 基于 Stohl 源项在全球尺度的模拟精度较好, 且基于 Terada 源项的模拟结果可能存在低估。

监测站点的 ^{137}Cs 的观测浓度与基于两源项模拟的烟云浓度进行时间序列对比, 选取了均匀分布在北半球的 8 个 CTBTO 站点 JPP38、USP71、CAP17、DEP33、FRP28、KIP39、MNP45、PHP52, 以及伯克利大学的 UCB 站点及日本国立环境研究所 Tsukuba 站点 (如图 4 所示), 图 8 和图 9 给出了对比结果。在两次模拟中, 日本本土 JPP38、Tsukuba 站点 (如图 9)、太平洋地区的 KIP39、UCB、USP71 站点 (如图 8) 相对于其他远距离站点的模拟浓度与观测浓度之间差异较小, 模拟浓度与观测浓度随时间的变化趋势相似。两源项模拟的远距离站点的效果都不理想, 如蒙古中部的 MNP45 站点 (如图 8), 4 月下旬模拟烟云浓度在 $10^{-8} \sim 10^{-7} \text{ Bq/m}^3$, 而测量浓度在 $10^{-6} \sim 10^{-5} \text{ Bq/m}^3$, 相差 2 个数量级。随着时间及距离的增加, 影响模式的不确定性因素增多, 使得长时间、远距离模拟不确定性增大。Christoudias and Lelieveld (2013) 在基于 Stohl 源项模拟时指出湿沉降过程中降水时空分布的不确定性对传输结果有重要的影响。另外, 模型参数设置

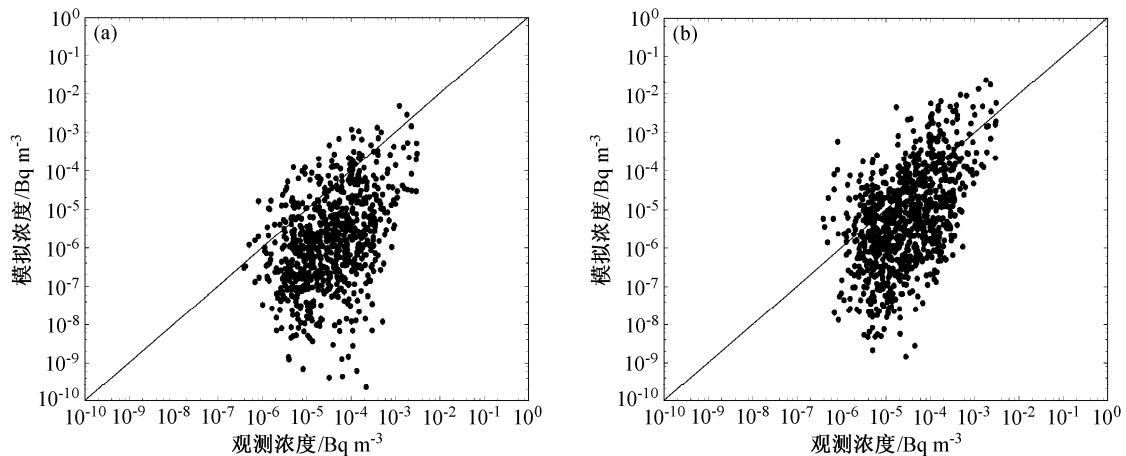


图 7 (a) EXP-Terada 和 (b) EXP-Stohl 模拟获得 CTBTO 站点的 ^{137}Cs 模拟值与观测值的散点图

Fig. 7 Scatter plots of the observed and simulated ^{137}Cs radioactivity concentration of CTBTO stations from (a) EXP-Terada and (b) EXP-Stohl

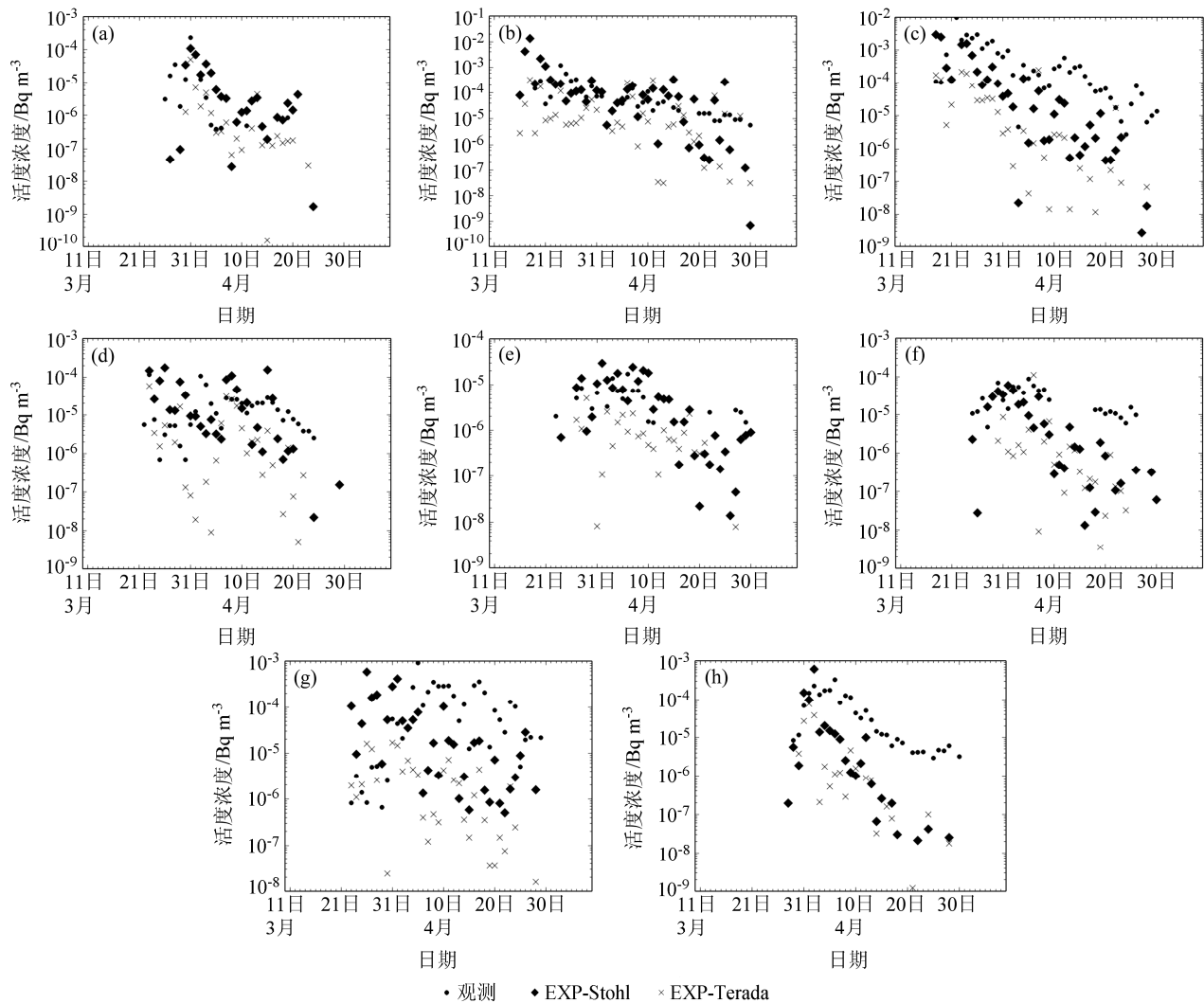


图8 EXP-Stohl 及 EXP-Terada 试验中相关站点 ^{137}Cs 浓度模拟值与观测值的时间序列对比: (a) KIP39; (b) UCB; (c) USP71; (d) PHP52; (e) FRP28; (f) DEP33; (g) CAP17; (h) MNP45

Fig. 8 Comparisons of time series of the observed and simulated ^{137}Cs radioactivity concentration from EXP-Stohl and EXP-Terada: (a) KIP39; (b) UCB; (c) USP71; (d) PHP52; (e) FRP28; (f) DEP33; (g) CAP17; (h) MNP45

以及结果不确定性随扩散时间的累加也会造成远距离、长时间模拟的不确定性增大。

JPP38 及 Tsukuba 站位于日本本州岛地区且距福岛核电站较近, 基于两源项的模拟烟云浓度在两站点表现较好(图9), 但两站点模拟的烟云首次到达时间早于监测的首次到达时间。同时发现图9结果中, 在两次模拟中站点 Tsukuba 在3月17日以及站点 JPP38 在3月17~19日没有模拟到放射性物质。这两个时间所用到的气象输入要素如图10所示, 3月17~19号日本天气系统为高低压交接系统向高压系统发展, 日本主导风向为西风(西南风)。两站点分别位于福岛核电站南部约170 km及西南

部约215 km的位置, 0.5° (纬度) $\times 0.5^\circ$ (经度)的GFS气象驱动有可能忽略局地尺度的天气系统, 使得站点没有模拟到放射性物质。气象驱动数据作为模拟时的另一个不确定性因素对模拟结果的影响需要进一步的研究。

3.3 源项的粒子数目对于模拟结果的影响

在3.1节中, 两种源项的粒子数目的不同导致了模拟烟云在扩散后期的疏密程度存在差异, 粒子数目是源项的重要参数, 因而有必要开展源项粒子数目对扩散传输模拟影响的评价。基于 Terada 源项, 设置了试验 EXP-Terada2, 与试验 EXP-Terada 扩散结果进行对比, 讨论不同粒子数目设置对模拟

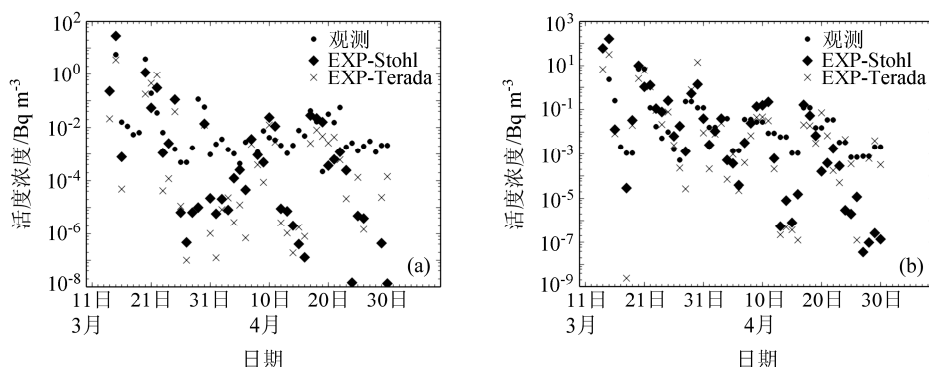
图9 EXP-Stohl 及 EXP-Terada 试验在 (a) JPP38、(b) Tsukuba 观测站点 ^{137}Cs 模拟值与观测值的时间序列对比

Fig. 9 Comparisons of time series of the observed and simulated ^{137}Cs radioactivity concentration at (a) JPP38 and (b) Tsukuba from EXP-Stohl and EXP-Terada

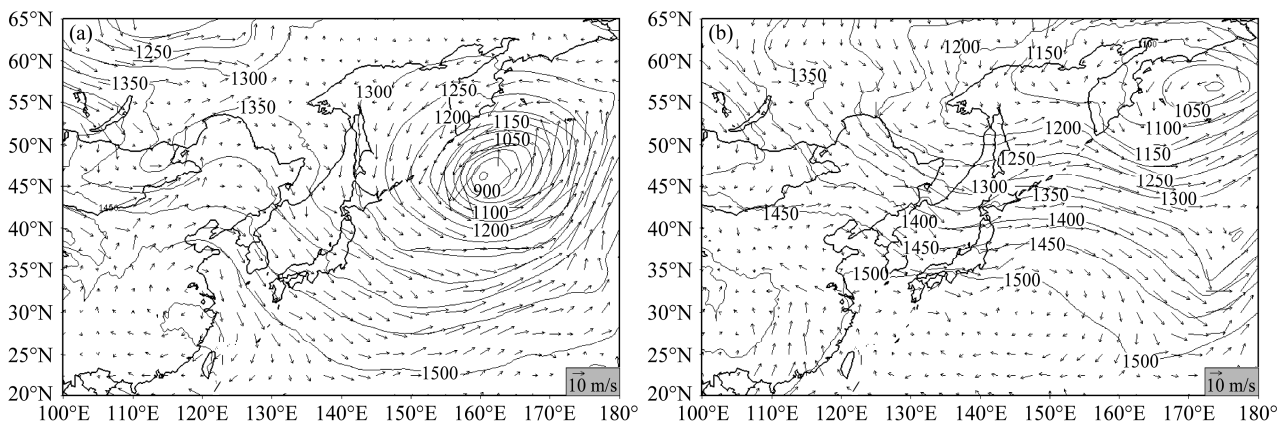


图10 2011年3月(a)17日与(b)19日850 hPa的位势高度(单位: gpm)及风场示意图

Fig. 10 850-hPa geopotential height (gpm) and wind on (a) 17 Mar and (b) 19 Mar 2011

浓度的时空分布及模拟精度的影响。其中试验 EXP-Terada2 中源项的释放高度、释放总量、释放速率等与 EXP-Terada 源项的设置一致,但在每个时段试验 EXP-Terada 2 粒子数目为试验 EXP-Terada 的 1/10。

图11给出了 EXP-Terada2 模拟的放射性物质的传输扩散过程,与图4对比可知:基于两种不同粒子数目的模拟烟云,覆盖区域、扩散传输过程基本相似,并且烟云首次到达美国、欧洲等地区时间基本相似。不同之处在于,粒子数目越少,扩散后期烟云分布越稀疏,如图5与图11中4月17日所示。

使用 CTBTO 站点监测数据,对试验 EXP-Terada2 中站点的模拟到的浓度与观测浓度进行统计分析, F_B 、 N_{MSE} 和 r 分别为-0.56、27.81 和 0.16。试验 EXP-Terada2 与 EXP-Terada 所得统计指标相比, N_{MSE} 及 r 较差,而 F_B 较好。由于试验 EXP-Terada2 使用粒子数较小,在模拟过程远距离

站点在某时间段内没有模拟到放射性物质,参与统计分析的浓度较少,使得模拟的精度有所下降。FLEXPART 模式基于全球尺度的模拟时,粒子数目的多寡影响模式模拟精度。

James et al. (2003) 在利用 FLEXPART 模式对对流层与平流层之间物质交换的研究中指出, FLEXPART 粒子数目的确定与模式积分的计算时间等因素相关。由于粒子数目对模拟精度存在影响,在确定粒子数目时需要综合考虑研究的目的、研究问题的区域尺度、时间等相关因素,以便获得较为理想的模拟结果。

4 结论与展望

本文利用 FLEXPART 模式,分别基于 Terada、Stohl 反演的福岛放射性物质 ^{137}Cs 的源项进行了模拟试验,对模拟的放射性污染物时空动态扩散特征

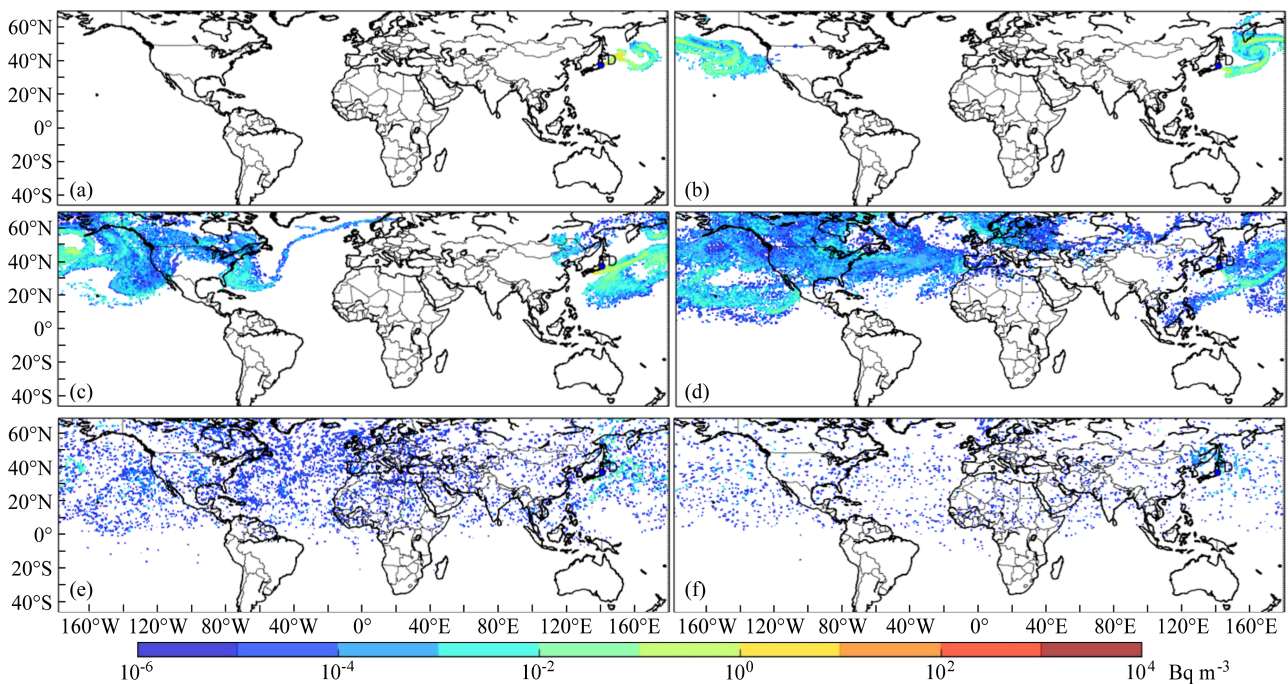


图 11 EXP-Terada2 试验获得的大气边界层内(2000 m 以下)的放射性物质 ^{137}Cs 浓度: (a) 2011 年 3 月 14 日 08:00; (b) 2011 年 3 月 17 日 14:00; (c) 2011 年 3 月 21 日 17:00; (d) 2011 年 3 月 28 日 00:00; (e) 2011 年 4 月 17 日 06:00; (f) 2011 年 4 月 24 日 00:00

Fig. 11 Temporal changes in radioactivity concentration in ABL (Below 2000 m) from EXP-Terada2: (a) 0800 UTC 14 Mar 2011; (b) 1400 UTC 17 Mar 2011; (c) 1700 UTC 21 Mar 2011; (d) 0000 UTC 28 Mar 2011; (e) 0600 UTC 17 Apr 2011; (f) 0000 UTC 24 Apr 2011

进行综合分析,发现了各自的特点,得到以下结论:

(1) 两种源项在放射性物质的释放总量、释放高度的划分及释放速率的变化等方面存在差异,但两者都呈现出早期释放速率高和后期释放速率低的特征,且描述的总体趋势相似。

(2) 基于 Terada 源项及 Stohl 源项的模拟烟云扩散过程及影响区域等基本一致。两模拟烟云均表现为自西向东扩散,经过太平洋、美洲大陆、欧洲,最后在整个北半球传输。基于两源项在亚洲—太平洋、北美大陆等近距离的模拟烟云的首次到达时间与首次监测时间吻合度较好,但在全球尺度上基于 Stohl 源项的模拟在首次到达时间方面表现更优。

(3) 基于两源项进行全球尺度的模拟,两次模拟在近距离站点的模拟效果优于远距离站点模拟效果,且基于 Stohl 源项的模拟精度较好, Terada 源项可能存在低估。

(4) FLEXPART 进行全球尺度的模拟时,基于同一源项对粒子数目进行设置,粒子数目较少时模拟精度可能下降,并且影响模拟烟云扩散后期的疏密程度,使得烟云更稀疏。

此外,模拟过程存在某些站点在某些监测时刻没有模拟到放射性物质,气象要素作为驱动因子直

接影响模式中粒子扩散过程,风速、风向等因素可能与上述现象有关。作为全球尺度模拟,所采用的气象数据(GFS)由于网格过粗,可能忽略次网格天气、局地天气等过程,进而影响模拟过程。另外,不同的地形及下垫面条件影响气流输送,会直接影响物质的扩散传输过程。降水、土地覆盖类型、地形等信息,通过影响粒子的干湿沉降等过程进而影响粒子扩散的过程。上述这些因素变化对于模式的影响作为后续研究的切入点需要进行一一探讨。

参考文献 (References)

- 安兴琴,姚波,李岩,等. 2014. 利用 FLEXPART 模式反演中国区域 SF_6 排放量 [J]. 环境科学学报, 34 (5): 1133–1140. An Xingqin, Yao Bo, Li Yan, et al. 2014. Estimating emission of SF_6 in China by atmospheric observation data and inverse modeling[J]. Acta Scientiae Circumstantiae (in Chinese), 34 (5): 1133–1140, doi: 10.13671/j.hjkxxb.2014.0178.
- Angevine W M, Brioude J, McKeen S, et al. 2014. Uncertainty in Lagrangian pollutant transport simulations due to meteorological uncertainty from a mesoscale WRF ensemble [J]. Geoscientific Model Development, 7 (6): 2817–2829, doi: 10.5194/gmd-7-2817-2014.
- Arnold D, Maurer C, Wotawa G, et al. 2015. Influence of the meteorological input on the atmospheric transport modelling with

- FLEXPART of radionuclides from the Fukushima Daiichi nuclear accident [J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 139: 212–225, doi: 10.1016/j.jenvrad.2014.02.013.
- BGR. 2011. Ausbreitungssimulationen von Radionukliden emittiert durch den Reaktorunfall in Fukushima, Japan [EB/OL]. http://www.bgr.bund.de/DE/Themen/Erdbeben-Gefahrungsanalysen/Seismologie/Kernwaffenteststopp/Verifikation/Atmosphaer-Transport/Besondere%20Ereignisse/atm_fukushima_inhalt.html.
- 蔡旭晖. 2008. 湍流微气象观测的印痕分析方法及其应用拓展 [J]. *大气科学*, 32 (1): 123–132. Cai Xuhui. 2008. Footprint analysis in micrometeorology and its extended applications [J]. *Chinese Journal of Atmospheric Sciences* (in Chinese), 32 (1): 123–132, doi: 10.3878/j.issn.1006-9895.2008.01.11.
- 陈晓秋, 杨端节, 李冰. 2012. 利用福岛第一核电站事故期间环境监测资料反推事故释放源项 [J]. *核化学与放射化学*, 34 (2): 83–87. Chen Xiaoqiu, Yang Duanjie, Li Bing. 2012. Reverse estimation of accidental release amounts from Fukushima Daiichi nuclear power plant by environmental monitoring data [J]. *Journal of Nuclear and Radiochemistry* (in Chinese), 34 (2): 83–87.
- Chino M, Nakayama H, Nagai H, et al. 2011. Preliminary estimation of release amounts of ^{131}I and ^{137}Cs accidentally discharged from the Fukushima Daiichi nuclear power plant into the atmosphere [J]. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 48 (7): 1129–1134, doi: 10.1080/18811248.2011.9711799.
- Christoudias T, Lelieveld J. 2013. Modelling the global atmospheric transport and deposition of radionuclides from the Fukushima Dai-ichi nuclear accident [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13 (3): 1425–1438, doi: 10.5194/acp-13-1425-2013.
- Draxler R, Arnold D, Chino M, et al. 2015. World Meteorological Organization's model simulations of the radionuclide dispersion and deposition from the Fukushima Daiichi nuclear power plant accident [J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 139: 172–184, doi: 10.1016/j.jenvrad.2013.09.014.
- Gahein A, Wahab M M A, Gaheen M A, et al. 2013. Simulation of nuclear accident caesium-137 contamination using FLEXPART mode [J]. *International Journal of Advanced Research*, 1 (8): 516–526.
- James P, Stohl A, Forster C, et al. 2003. A 15-year climatology of stratosphere–troposphere exchange with a Lagrangian particle dispersion model 2. Mean climate and seasonal variability [J]. *J. Geophys. Res.*, 108 (D12), doi: 10.1029/2002JD002639.
- Katata G, Ota M, Terada H, et al. 2012a. Atmospheric discharge and dispersion of radionuclides during the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident. Part I: Source term estimation and local-scale atmospheric dispersion in early phase of the accident [J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 109: 103–113, doi: 10.1016/j.jenvrad.2012.02.006.
- Katata G, Terada H, Nagai H, et al. 2012b. Numerical reconstruction of high dose rate zones due to the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident [J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 111: 2–12, doi: 10.1016/j.jenvrad.2011.09.011.
- Korsakissok I, Mathieu A, Didier D. 2013. Atmospheric dispersion and ground deposition induced by the Fukushima nuclear power plant accident: A local-scale simulation and sensitivity study [J]. *Atmos. Environ.*, 70: 267–279, doi: 10.1016/j.atmosenv.2013.01.002.
- Leadbetter S J, Hort M C, Jones A R, et al. 2015. Sensitivity of the modelled deposition of Caesium-137 from the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant to the wet deposition parameterisation in NAME [J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 139: 200–211, doi: 10.1016/j.jenvrad.2014.03.018.
- Lin W, Chen L, Yu W, et al. 2015. Radioactivity impacts of the Fukushima nuclear accident on the atmosphere [J]. *Atmos. Environ.*, 102: 311–322, doi: 10.1016/j.atmosenv.2014.11.047.
- Marandino C A, Tegtmeier S, Krüger K, et al. 2013. Dimethylsulphide (DMS) emissions from the western Pacific Ocean: A potential marine source for stratospheric sulphur? [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(16): 8427–8437, doi: 10.5194/acp-13-8427-2013.
- Marzo G A. 2014. Atmospheric transport and deposition of radionuclides released after the Fukushima Dai-ichi accident and resulting effective dose [J]. *Atmos. Environ.*, 94: 709–722, doi: 10.1016/j.atmosenv.2014.06.009.
- Morino Y, Ohara T, Nishizawa M. 2011. Atmospheric behavior, deposition, and budget of radioactive materials from the Fukushima Daiichi nuclear power plant in March 2011 [J]. *Geophys. Res. Lett.*, 38 (7): L00G11, doi: 10.1029/2011GL048689.
- Ryan M T. 2012. Editor's note on Fukushima [J]. *Health Physics*, 102 (5): 481, doi: 10.1097/HP.0b013e31824d52b7.
- Sakamoto M S, Ambrizzi T, Poveda G. 2011. Moisture sources and life cycle of convective systems over western Colombia [J]. *Advances in Meteorology*, 2011: 890759, doi: 10.1155/2011/890759.
- 盛黎, 宋振鑫, 胡江凯, 等. 2014. 大气扩散集合预报技术和确定性预报技术在日本福岛核事故全球扩散中的对比分析 [J]. *中国科学: 地球科学*, 44 (11): 2554–2564. Sheng Li, Song Zhenxin, Hu Jiangkai, et al. 2015. The comparison of ensemble or deterministic dispersion modeling on global dispersion during Fukushima Dai-ichi nuclear accident [J]. *Science China Earth Sciences*, 58 (3): 356–370, doi: 10.1007/s11430-014-4872-x.
- Stohl A, Hittenberger M, Wotawa G. 1998. Validation of the Lagrangian particle dispersion model FLEXPART against large-scale tracer experiment data [J]. *Atmos. Environ.*, 32 (24): 4245–4264, doi: 10.1016/S1352-2310(98)00184-8.
- Stohl A, Sodemann H, Eckhardt S, et al. 2011. The Lagrangian particle dispersion model FLEXPART version 8.2 [K]. FLEXPART User Guide. <https://www.flexpart.eu/downloads/26>.
- Stohl A, Seibert P, Wotawa G, et al. 2012. Xenon-133 and Caesium-137 releases into the atmosphere from the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant: Determination of the source term, atmospheric dispersion, and deposition [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12 (5): 2313–2343, doi: 10.5194/acp-12-2313-2012.
- Terada H, Katata G, Chino M, et al. 2012. Atmospheric discharge and dispersion of radionuclides during the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident. Part II: Verification of the source term and analysis of regional-scale atmospheric dispersion [J]. *Journal of Environmental Radioactivity*, 112: 141–154, doi: 10.1016/j.jenvrad.2012.05.023.
- 王海洋, 黄树明, 王晓霞, 等. 2011. 日本福岛第一核电站事故源项及后

- 果评价 [J]. 辐射防护通讯, 31 (3): 7–11. Wang Haiyang, Huang Shuming, Wang Xiaoxia, et al. 2011. Fukushima Daiichi NPS accident source term and consequence assessment [J]. Radiation Protection Bulletin (in Chinese), 31 (3): 7–11, doi: 10.3969/j.issn.1004-6356.2011.03.003.
- 王鹏飞, 费建芳, 程小平, 等. 2013. 气旋活动对福岛核污染物扩散影响的模拟研究 [J]. 环境科学研究, 26 (1): 50–56. Wang Pengfei, Fei Jianfang, Cheng Xiaoping, et al. 2013. Simulation study of extratropical cyclone activities on the nuclear material dispersion from the damaged Fukushima nuclear power plant [J]. Research of Environmental Sciences (in Chinese), 26 (1): 50–56.
- Weaver C, Kiemle C, Kawa S R, et al. 2014. Retrieval of methane source strengths in Europe using a simple modeling approach to assess the potential of spaceborne lidar observations [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 14 (5): 2625–2637, doi: 10.5194/acp-14-2625-2014.