

屈玉, 安俊岭, 周慧, 等. 2009. 全边界层选用相似理论对 O_3 、 NO_x 浓度及沉降的影响 [J]. 气候与环境研究, 14 (4): 363–372. Qu Yu, An Junling, Zhou Hui, et al. 2009. Impacts of the PBL similarity on concentrations and dry deposition velocities of O_3 and NO_x [J]. Climatic and Environmental Research (in Chinese), 14 (4): 363–372.

全边界层选用相似理论对 O_3 、 NO_x 浓度及沉降的影响

屈玉^{1,2} 安俊岭¹ 周慧³ 叶小峰⁴

1 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

2 中国科学院研究生院, 北京 100049

3 湖南省气象台, 长沙 410007

4 江西省萍乡市气象局, 萍乡 337002

摘要 将广泛应用于东亚地区的 LLA (Lurmann Lloyd Atkinson) 化学机制耦合到欧拉型区域空气质量模式 (RAQM), 并考虑区域污染物长期模拟研究中降水随时间变化的非均匀性, 讨论了湍流参数化过程中相似理论在近地层和全边界层的应用对湍流垂直扩散系数 (K_z) 与干沉降速度 (V), O_3 与 NO_x 浓度的影响。结果表明, 全边界层应用相似理论明显低估了 K_z 值, 近地层 50 m 处 K_z 值被低估 20% 以上, 750 m 处其值被低估约 70%; O_3 、 NO_x 的干沉降速度在日本东部与南部海域被低估了 10% 以上, 在朝鲜半岛东部和西部海域模拟值普遍偏高。 K_z 和干沉降速度的不同直接影响污染物的浓度和沉降量分布。 K_z 值的被低估对 NO_x 浓度有明显影响, 在近地层 50 m 处 NO_x 浓度最大可增加约 30%, 整个边界层中 NO_x 平均浓度除台湾省东北海域外普遍增加 5%~20%。 O_3 浓度则受干沉降作用的影响较大。虽然近地层、全边界层分别应用相似理论都较好地模拟了 O_3 与 NO_x 峰值浓度出现的时间, 但相似理论应用于全边界层会引起较大的误差。即使是大区域、长期空气质量模拟研究, 也建议相似理论仅应用于近地层, 且模式第一层高度应设置在常通量层内。

关键词 近地层 边界层 相似理论 O_3 NO_x

文章编号 1006-9585 (2009) 04-0363-11 **中图分类号** P401 **文献标识码** A

Impacts of the PBL Similarity on Concentrations and Dry Deposition Velocities of O_3 and NO_x

QU Yu^{1,2}, AN Junling¹, ZHOU Hui³, and YE Xiaofeng⁴

1 State Key Laboratory of Atmospheric Boundary Layer Physics and Atmospheric Chemistry, Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029

2 Graduate University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049

3 Hunan Provincial Meteorological Observatory, Changsha 410007

4 Pingxiang Meteorological Bureau, Pingxiang 337002

Abstract Spatial distributions of vertical eddy diffusivity (K_z), dry deposition velocity (V), and concentrations of O_3 and NO_x over East Asia are simulated using the surface-layer similarity and the whole PBL similarity in the turbulence parameterization, after coupling the widely applied LLA (Lurmann Lloyd Atkinson) chemical mechanism

收稿日期 2008-04-03 收到, 2009-05-22 收到修定稿

资助项目 中国科学院重大项目 KZCX1-YW-06-04、国家自然科学基金资助项目 40575068 和中国科学院重要方向性项目 KZCX2-YW-205

作者简介 屈玉, 女, 1979 年出生, 博士, 主要从事大气环境研究。E-mail: quyu@mail.iap.ac.cn

in East Asia into the Regional Air Quality Eulerian Model (RAQM) and considering the temporal heterogeneity in rainwater in long-term modeling studies of air pollutants over a large domain. Simulations indicate that K_z values are significantly underestimated by the whole PBL similarity, with above 20% at 50 m and around 70% at 750 m high above the ground, respectively. Dry deposition velocities of O_3 and NO_x are underestimated at least 10% in the sea area on the east and south of Japan, while in the sea area on the east and west of Korea Peninsula the values are generally higher. Large deviations in K_z and dry deposition velocity between the two schemes lead to different results of O_3 and NO_x . Underestimation of K_z values leads to large changes in NO_x concentrations, with a maximum increase of 30% at 50 m high above the ground and approximately 5%–20% increases in mean NO_x levels in the whole PBL except the sea area on the northeast of Taiwan. However, the concentrations of O_3 are dependent significantly on the dry deposition process. The surface-layer similarity and the whole PBL similarity well depict the timing of O_3 and NO_x peaks while the surface-layer similarity follows observations in amplitude better than the whole PBL similarity. The surface-layer similarity is a better choice than the whole PBL similarity and the first vertical model layer should be set within the surface constant flux layer even in long-term regional simulations of air pollutants.

Key words surface layer, planetary boundary layer, similarity, O_3 , NO_x

1 引言

大气边界层是大气与地面发生物质、能量交换的场所,大气中绝大部分水汽和污染物、多数气溶胶等都是通过大气边界层从地面输送进入自由大气。在大气边界层中,输送和沉积是污染物进入大气后经历的两个重要的物理过程。通过湍流交换可以把低层的热量、水汽、污染物等输送到上层大气,同时也可以把高层的动量等输送到低层。污染物一进入大气,就会稀释扩散,大气湍流越强,污染物的稀释扩散就越快。沉降过程则是大气边界层中很多污染物质的重要汇,而差不多一半以上是干沉降过程(蒋维楣等,2003)。在欧拉型区域污染物输送模式研究中,湍流扩散系数对于动量、热量、水汽通量、污染物浓度等的影响至关重要,尤其是湍流垂直扩散系数 K_z 。摩擦速度、M-O 长度等边界层参数是影响 K_z 和干沉降速度值的重要因子。根据相似理论计算这些边界层参数时,可将该理论应用于近地层,也可应用于全边界层,但两方法得到的边界层参数有差异,导致 K_z 和干沉降速度计算值的差别,并最终引起污染物浓度的改变。迄今为止,在近地面层或整个边界层内应用相似理论研究动量、热量输送等方面的工作较多(Monin et al., 1954; Businger et al., 1971; Louis, 1979; Holtslag et al., 1990; Byun, 1990, 1991),但利用该理论探究污染物浓度变化方面的工作很少(Byun et al.,

1995; An et al., 2007)。本文将区域空气质量模式(RAQM)中湍流参数化过程在近地层、全边界层分别应用相似理论,讨论两者的选择对 K_z 与干沉降速度值、 O_3 与 NO_x 浓度的影响。

2 模式与方法介绍

2.1 空气质量模式

区域空气质量模式(RAQM) (An et al., 2002, 2003; Han et al., 2006) 是一个三维欧拉型污染物输送模式,考虑了污染物的源排放过程、平流过程、湍流扩散过程、干湿沉降过程以及化学过程。RAQM 模式以东亚地区($0^\circ \sim 55^\circ N$, $75^\circ E \sim 155^\circ E$) 作为模拟区域,垂直方向采用地形追随坐标,从地表面到对流层顶分为 12 层(50、150、300、500、750、1500、2500、3500、4500、6000、7500、8950 m),边界层内有 6 层,模式最低层大约 50 m,水平分辨率为 $1^\circ \times 1^\circ$ 。干沉降模块采用 Wesely 参数化改进方案(Wesely, 1989; Walmsley et al., 1996),湿清除过程根据湿清除率(Brodzinsky et al., 1984; Okita et al., 1996) 计算。湍流垂直扩散系数采用区域酸沉降模式 RADM2.6 版本的计算方法(Byun et al., 1995)。气相化学模块选用简化的 CBIV 化学机制(An et al., 2002),含 31 个物种、52 个化学反应。与可靠的监测资料(来自 EANET, <http://www.adorc.gr.jp>) 对比表明,该模式能够很好地模拟污染物的长距离输送,反映天气尺度变化的主要

特征 (An et al., 2002; An et al., 2003)。最近, 酸沉降与氧化剂研究中心 (ADORC, <http://www.adorc.gr.jp>) 的研究人员利用 RAQM 模式模拟了 2002 年 3 月份发生的强沙尘暴事件 (Han et al., 2004)。日本京都大学在 RAQM 模式的基础上发展了可溶性颗粒物输送、沉降与转化模式系统, 并用该系统研究了强火山 Miyakejima 爆发对周边地区空气质量的影响 (Kajino et al., 2004)。安俊岭等 (1999) 指出简化的 CBIV 机制在自由基模拟方面有待改进。鉴于此原因, 本文耦合了在东亚地区得到广泛应用的 LLA (Lurmann Lloyd Atkinson) 化学机制的改进版本 (Lurmann et al., 1986; Carmichael et al., 1991), 包括 84 个物种, 178 个化学反应。污染源资料详见文献 (An et al., 2002)。模拟时段为 2000 年 3 月 29 日至 4 月 30 日, 前 3 天为初始化过程。

逐时气象场由美国 NCAR 与宾夕法尼亚州立大学 PSU 合作发展的第 5 代中尺度非静力 MM5 (Grell et al., 1994) 模式提供。其水平网格间距取为 81 km, 垂直方向 23 层。积云参数化方案选择 Anthes-Kuo 方案, 边界层参数化选用 MRF 方案, 混合相作为显式水汽方案, 云冷却作为辐射方案。运行 MM5 模式时, 每 6 小时与欧洲中尺度天气预报中心 (ECMWF) $1^\circ \times 1^\circ$ 的资料同化一次。在大区域污染物长期 (月、季、年) 模拟研究中, 降水的模拟值可信度较低 (Russell et al., 2000), 通常选用实测降水月均值, 因实测逐时降水量非常有限, 故月均降水量作时间平均得到均匀的逐时降水量。为了反映降水的时间非均匀性, 本文将降水作如下处理。某格点小时平均降水量定义为 $(R_{hr}/R_{mon}) \times R_{obs}$, 以保证格点月均降水量等于 R_{obs} , 并充分反映降水的时间非均匀性。其中, R_{hr} 、 R_{mon} 分别表示 MM5 模式计算的小时、月平均降水量, R_{obs} 是实测月均降水量。有观测站点时 (中国大陆有 700 个站点, 日本仅选用了 8 个站点) 格点降水由站点观测降水插值得到; 无观测站点时, 格点降水选用 NCEP 资料。

2.2 边界层参数计算方法

相似理论在近地层 (Byun et al., 1990, 1999) 和全边界层 (Byun et al., 1991, 1999) 的应用是把 MM5 模式输出的常规气象资料当作假探空资料, 重新估算边界层高度、摩擦速度、M-O 长

度、特征位温等边界层参数。两者都用到了相似性理论, 最大的区别在于后者将边界层高度作为外参数, 并将相似理论推广应用于近地层之上、自由大气之下的整个大气边界层的主体部分 (Byun, 1991)。

相似性理论是一种在 π 定理基础上的试验数据处理方法, 它的核心是找到边界层物理量之间的相似关系。莫宁-奥布霍夫 (Monin et al., 1954) 提出的 M-O 相似, 描述了在水平均一的大气近地层, 动量、感热、水汽的表面通量和风速、温度、湿度廓线之间的关系。

相似理论在近地层的应用 (简称方案 A) 须假设模式第一层始终处于常通量层内, 从而满足 M-O 相似理论。按照稳定度判据 $\zeta = z/L$ (ζ : 莫宁-奥布霍夫稳定度参数, z : 垂直高度, L : 莫宁-奥布霍夫长度) 分 3 种情况来考虑 (Byun, 1990):

(1) 稳定 ($\zeta \geq 1$) 条件下, 摩擦速度 u_* 、特征位温 θ_* 的表达式为

$$\begin{cases} u_* = \frac{\kappa \bar{u}_1}{\left[\beta_m \ln \frac{z}{z_0} + \left(\frac{z}{L} - \frac{z_0}{L} \right) \right]}, \\ \theta_* = \frac{\kappa (\theta_1 - \theta_0)}{Pr_0 \left[\beta_h \ln \frac{z}{z_0} + \left(\frac{z}{L} - \frac{z_0}{L} \right) \right]}, \end{cases} \quad (1)$$

其中, $\bar{u}_1$ 为水平风速, κ ($=0.4$) 为卡曼常数, z_0 为地表粗糙度, Pr_0 ($=0.95$) 为普朗特数。 β_m 、 β_h 均为普适函数系数 (下标 m 表示动量, 下标 h 表示感热, 下同), 采用 Hogstrom (1988) 的实验结果取值。

(2) 适度稳定 ($0 \leq \zeta < 1$) 和不稳定 ($\zeta < 0$) 条件下, u_* 、 θ_* 的表达式相同, 只是稳定度修正函数 ψ_m 、 ψ_h 不同:

$$\begin{cases} u_* = \frac{\kappa \bar{u}_1}{\ln \left(\frac{z}{z_0} \right) - \left[\psi_m \left(\frac{z}{L} \right) - \psi_m \left(\frac{z_0}{L} \right) \right]}, \\ \theta_* = \frac{\kappa (\theta_1 - \theta_0)}{Pr_0 \left\{ \ln \left(\frac{z_1}{z_0} \right) - \left[\psi_h \left(\frac{z}{L} \right) - \psi_h \left(\frac{z_0}{L} \right) \right] \right\}}, \end{cases} \quad (2)$$

适度稳定时:

$$\begin{aligned} \psi_m \left(\frac{z}{L} \right) - \psi_m \left(\frac{z_0}{L} \right) &= -\beta_m \frac{z}{L} + \beta_m \frac{z_0}{L} \\ \psi_h \left(\frac{z}{L} \right) - \psi_h \left(\frac{z_0}{L} \right) &= -\beta_h \frac{z}{L} + \beta_h \frac{z_0}{L} \end{aligned}$$

不稳定时:

$$\begin{aligned}\psi_m\left(\frac{z}{L}\right) - \psi_m\left(\frac{z_0}{L}\right) &= 2\ln\left(\frac{1+x}{1+x_0}\right) + \\ &\ln\left(\frac{1+x^2}{1+x_0^2}\right) - 2\tan^{-1}(x) + 2\tan^{-1}(x_0), \\ \psi_h\left(\frac{z}{L}\right) - \psi_h\left(\frac{z_0}{L}\right) &= 2\ln\left(\frac{1+y}{1+y_0}\right),\end{aligned}$$

其中,

$$\begin{aligned}x &= \left(1 - \gamma_m \frac{z}{L}\right)^{-1/4}, x_0 = \left(1 - \gamma_m \frac{z_0}{L}\right)^{-1/4}, \\ y &= \left(1 - \gamma_m \frac{z}{L}\right)^{-1/2}, y_0 = \left(1 - \gamma_h \frac{z_0}{L}\right)^{-1/2},\end{aligned}$$

普适函数系数 γ_m 、 γ_h 的取值采用 Hogstrom (1988) 的实验结果。

全边界层应用相似理论 (简称方案 B) 则把边界层高度 h 看作一个外部变量, 作为影响通量—廓线函数的因子, 并且使风速、温度阻抗定律在近地层满足 M-O 相似理论, 即认为在近地层无量纲廓线函数 ϕ_m 和 ϕ_h 不仅与 z 有关, 还与边界层高度 h 有关。这种方案解决了在一些特殊情况下, 比如稳定条件下模式最低层高于近地层, M-O 相似理论不适用的问题。引入无量纲变量 $\eta = z/h$, $\eta_0 = z_0/h$, $\mu = h/L$, 则有:

$$\begin{cases} u_* = \frac{\kappa u_1}{P_u(\eta_0, \eta, \mu)}, \\ \theta_* = \frac{\kappa(\bar{\theta}_1 - \theta_0)}{Pr_0 P_\theta(\eta_0, \eta, \mu)}, \end{cases} \quad (3)$$

其中, P_u 为动量积分边界层廓线函数, P_θ 为位温积分边界层廓线函数 (Byun et al., 1995)。

3 模拟结果与观测值的对比

东亚酸沉降监测网 (EANET) 拥有高质量观测资料, 本文选择 EANET 所属的中国重庆的观音桥、西安渭水园、厦门洪文和珠海香洲站点以及日本 Hedo、Okī、Tappi、Sado、Ijira、Ogasawa、Yusuhara 和 Happo 站点的观测资料用于模式比较。除观音桥、洪文、香洲为城区站点, 渭水园、Ijira 为郊区站点外, 其余均为清洁站点, EANET 及其站点的详细介绍请参阅文献 (An et al., 2002, 2003; Han et al., 2006)。

图 1 给出了两方案模拟的 2000 年 4 月 O_3 和

NO_x 的日均浓度 (只列出日本 4 个站点的结果, 其他站点情况相似, 故略), 以及对应时间序列的 K_z 和干沉降速度值的变化情况, 其中 NO_x 干沉降速度:

$$\begin{aligned}V_{NO_x} &= (M_{NO}/M_{NO_x}) \times V_{NO} + \\ &(M_{NO_2}/M_{NO_x}) \times V_{NO_2},\end{aligned} \quad (4)$$

其中, V_{NO} 、 V_{NO_2} 表示 NO 、 NO_2 的干沉降速度, M_{NO_x} 、 M_{NO} 、 M_{NO_2} 表示 NO_x 、 NO 、 NO_2 的分子量。

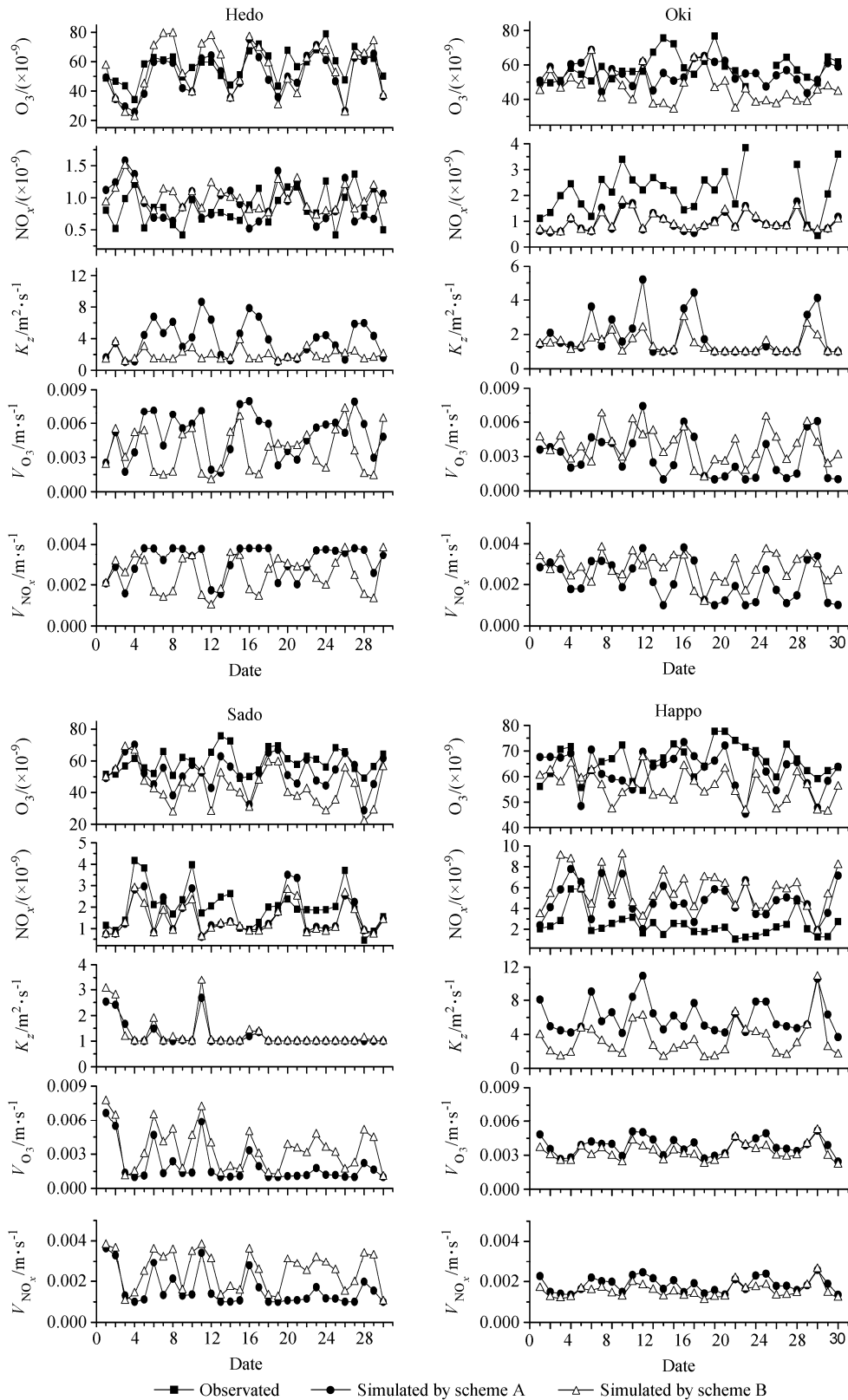
对于 Hedo 站, 两方案都很好再现了天气尺度的变化, 较准确地模拟了 O_3 和 NO_x 峰值浓度出现的时间, 尤其是方案 A。方案 B 在 6~8 日及 11~13 日模拟值明显偏高, 这与同期 K_z 和干沉降速度值明显被低估有关, K_z 值偏低引起局地湍流作用减弱, NO_x 浓度增升, 而清洁站点 NO_x 含量的增大, 有利于局地 O_3 生成; 干沉降速度偏低则使 O_3 和 NO_x 干沉降量减少, 空气中浓度升高。

两方案在 Okī 和 Sado 站对 O_3 和 NO_x 的变化趋势反映得都很好, 方案 A 与观测值吻合得更好。 K_z 的模拟结果非常相似, 但干沉降速度有一定差异。尤其是 18~30 日方案 B 计算的干沉降速度普遍偏高, 导致其对 O_3 的模拟浓度明显偏低, 但是对 NO_x 浓度影响不大。

与 Okī 和 Sado 站不同, Happo 站尽管是一个相对清洁的观测站点, 但该站周围工业区较多, $1^\circ \times 1^\circ$ 过粗的水平分辨率高估了该地的 NO_x 排放量 (NO_x 模拟结果表现得很清楚)。方案 B 对 K_z 值的明显低估, 引起该方法模拟的 NO_x 浓度普遍比方案 A 模拟值还要高, NO_x 含量过高的地区 (O_3 浓度对 VOCs 敏感) (王勤耕等, 2002) 反而不利于 O_3 形成, 导致该地 O_3 浓度模拟值偏低。

除 Ijira、观音桥、洪文、香洲站点外, 方案 A 较好地反映了 NO_3^- 湿沉降量的空间变化 (图 2)。Ijira、观音桥、洪文、香洲 4 个站点的模拟值明显低于观测值, 与这 4 个站点都处于非清洁区, 模式水平分辨率过粗导致这些站点的源排放量偏低有关。而方案 B 则整体低估了硝酸盐的月均湿沉降量。比较而言, 方案 A 对 NO_3^- 湿沉降量的模拟效果较好。

总体来看, 方案 A 的模拟结果较好地刻画了大气中 O_3 和 NO_x 的浓度变化, 无论从趋势上还是量值上均与观测值符合得较好。

图 1 2000 年 4 月 O_3 、 NO_x 浓度日均值以及 K_z 和干沉降速度的变化Fig. 1 Daily variations of O_3 and NO_x concentrations, K_z , and dry deposition velocities of O_3 and NO_x in Apr 2000

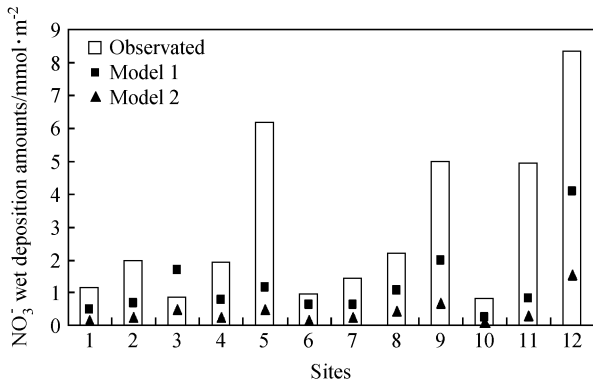


图2 2000年4月NO₃⁻湿沉降量观测值与两方案模拟值的对比。
横坐标: 1 Hedo; 2 Oki; 3 Tappi; 4 Sado; 5 Ijira; 6 Ogasawa; 7 Yusu-hara; 8 Happo; 9 观音桥; 10 渭水园; 11 洪文; 12 香洲
Fig. 2 Comparison of NO₃⁻ deposition amounts in Apr 2000 between observations and simulations with the two schemes. Sites: 1 Hedo; 2 Oki; 3 Tappi; 4 Sado; 5 Ijira; 6 Ogasawa; 7 Yusu-hara; 8 Happo; 9 Guanyinqiao; 10 Weishuiyuan; 11 Hongwen; 12 Xiangzhou

4 讨论与分析

与湍流有关的边界层参数中,摩擦速度的取值至关重要,因为其在模式中还是计算M-O长度、特征位温等其他边界层参数的一个重要因子。方案B与A摩擦速度的计算值存在很大差异,尤其在中国大陆东部的广大海域(图3),继而引起K_z和干沉降速度的取值差异,并最终影响了O₃与NO_x浓度和沉降量的空间分布。图3给出了方案B与A计算的摩擦速度的偏差。物理量偏差定义为

$$D = \frac{m_B - m_A}{m_A} \times 100\%, \quad (5)$$

其中, m_A 表示方案A模拟值, m_B 代表方案B的结果。可以看出,渤海海岸、朝鲜东部海岸、越南海岸存在D的大值区,这是因为模式计算的边界层高度在这些地区较低,使得模式第一层(50 m)可能高于近地层,外参数边界层高度产生了很大影响。

下面以方案A为基准,分别讨论两方案模拟的K_z和干沉降速度值、O₃与NO_x浓度的空间分布差异。

4.1 K_z和干沉降速度月均值的空间分布

K_z的取值与摩擦速度、M-O长度等边界层参数呈非线性关系,而且在不同的大气稳定度条件下,表达式也不同,详细的计算方法参考Byun et al. (1995)。

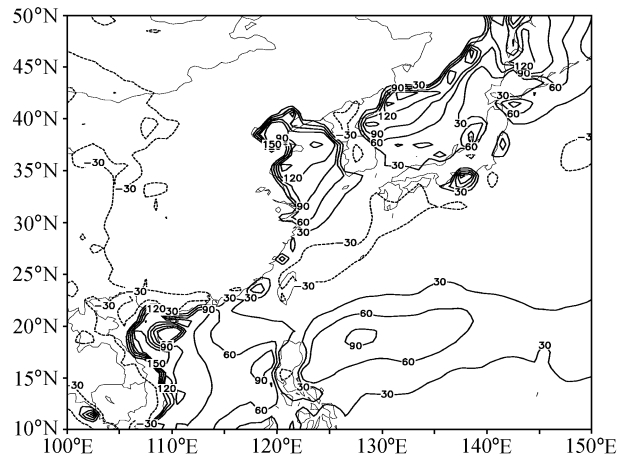


图3 两方案模拟的摩擦速度月均值偏差的空间分布(%)
Fig. 3 Spatial distributions of deviation of mean monthly friction velocity (%) between the whole PBL scheme and the surface-layer diagnostic scheme

方案A模拟的K_z月平均值有明显的空间变化。近地层50 m高度上,K_z大值区主要出现在30°N以南的大陆沿海区、朝鲜半岛、日本大部分地区以及东京东部海域(32°N~40°N、145°E~150°E),最大值通常小于10 m²·s⁻¹(图4a)。在边界层中,K_z随高度呈现递增趋势。在750 m高度,朝鲜半岛、日本南部及东部海域仍出现大值区,最高值超过100 m²·s⁻¹(图4b)。与50 m高度相比,35°N以北、110°E以西内陆地区的K_z值显著增大,峰值均大于100 m²·s⁻¹。

与方案A相比,方案B计算的K_z值普遍偏小。在近地层偏低20%以上(图4c);在750 m高度上,不少地区偏低约70%,部分地区(如台湾东北近海域)甚至低约80%(图4d)。

方案B与A模拟的O₃、NO_x干沉降速度月均值的差别主要出现在中国大陆东部的广大海域(图5),与摩擦速度偏差的空间分布极为相似(图3)。比较而言,方案B的模拟结果对日本东部与南部海域低估了10%以上;而在朝鲜半岛东部和西部海域模拟值普遍偏高,O₃干沉降速度最多被高估100%,NO_x最多被高估70%。

4.2 O₃和NO_x干沉降量偏差以及浓度偏差的空间分布

方案B与A模拟的O₃和NO_x干沉降量的偏差(图6)在中国大陆东部广大海域与干沉降速度的偏差分布形式基本一致,除台湾东北海域模拟值偏小外其它地区普遍偏大;由于方案B模拟的

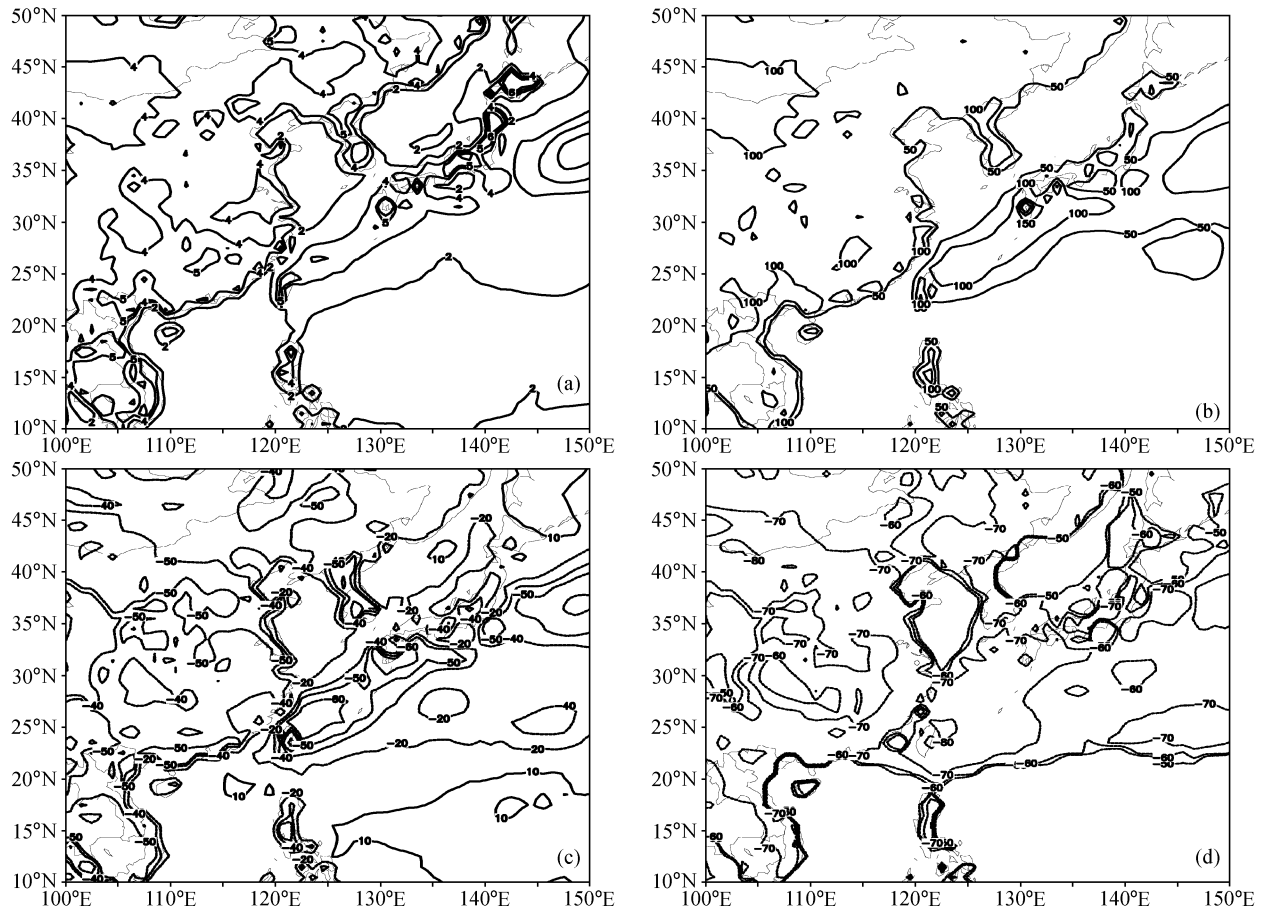


图4 50 m (a、c) 和 750 m (b、d) 高度上方案 A 计算的 K_z 月均值 (a、b, 单位: $m^2 \cdot s^{-1}$) 及两方案模拟的 K_z 月均值偏差 (c、d, %) 的分布

Fig. 4 Spatial distributions of (a, b) mean monthly K_z values ($m^2 \cdot s^{-1}$) calculated with the surface-layer diagnostic scheme and (c, d) mean monthly K_z deviations (%) between the two diagnostic schemes at (a, c) 50 m and (b, d) 750 m

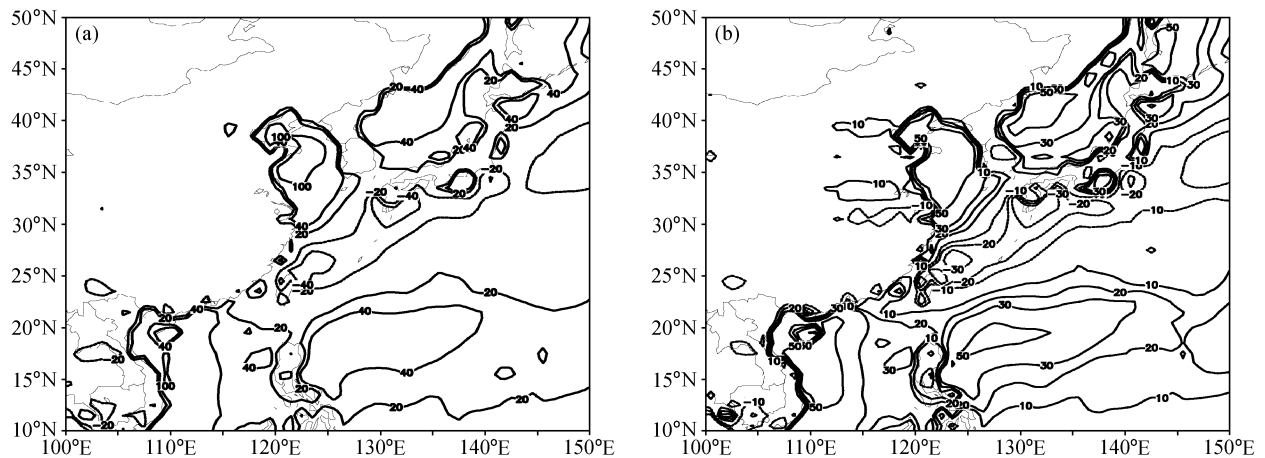


图5 方案 B 计算的 (a) O_3 和 (b) NO_x 干沉降速度的月均值 (单位: $m \cdot s^{-1}$) 与方案 A 计算值的偏差分布 (%)

Fig. 5 The distributions of mean monthly dry deposition velocity deviations (%) of (a) O_3 and (b) NO_x between the whole PBL diagnostic scheme and the surface-layer diagnostic scheme

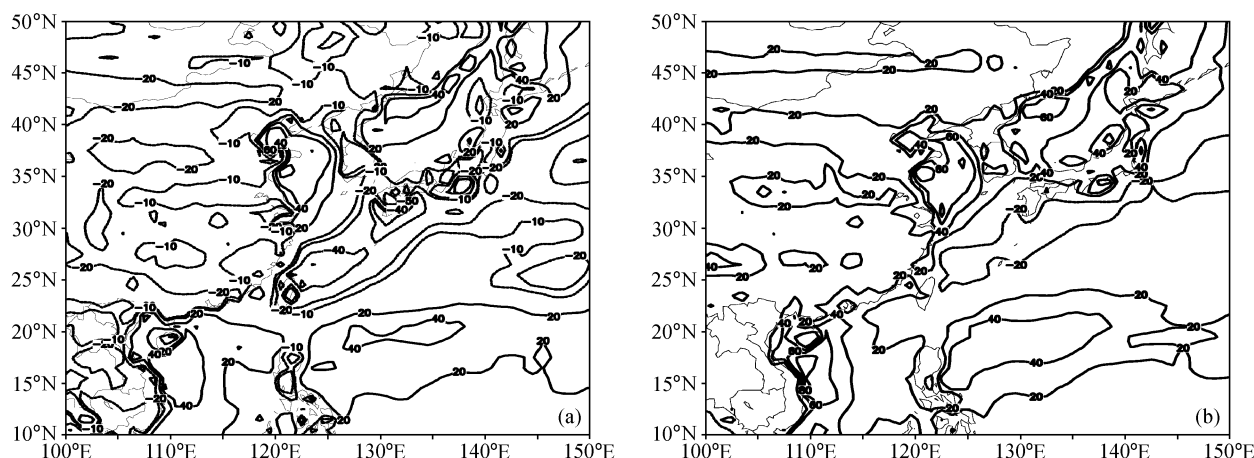


图6 方案B和方案A计算的 O_3 (a)、 NO_x (b) 月总干沉降量的偏差分布 (%)

Fig. 6 The total dry deposition deviations (%) of (a) O_3 and (b) NO_x in April between the whole PBL diagnostic scheme and the surface-layer diagnostic scheme

K_z 值偏低 (图 4c、d), 在中国大陆地区特别是排放源区附近, 局地湍流作用减弱, NO_x 浓度增大, NO_x 干沉降量的模拟结果较方案 A 偏大, 同时 NO_x 浓度过大会抑制 O_3 生成, O_3 干沉降量偏小。

方案 B 模拟的近地层 O_3 浓度在大部分区域减少 5%~25% (图 7a), 但在台湾东北海域出现了 O_3 增大区, 增大幅度为 5%~10% (图 7a)。方案 B 对近地层 K_z 值的低估 (图 4c) 引起局地 NO_x 浓度的增大, 增大幅度通常大于 10%, 最大值超过 30% (图 7b)。750 m 高度处 O_3 浓度变化幅度降低, 陆地普遍约为 2%, 增幅最大区仍发生在台湾东北邻近海域, 约 14% (图 7c); 该高度处 NO_x 浓度减少范围集中在我国东部沿海区及台湾岛、朝鲜半岛、日本南部及其邻近海域 (图 7d), 变化幅度约为 5%~10%。

从整个边界层中的平均浓度 (从地面到边界层顶的浓度平均值) 来看, O_3 浓度差在陆地上几乎未发生改变, 在中国大陆东部海域 O_3 浓度变化范围约 5%~10% (图 7e), 其空间分布形式与干沉降速度相似, 台湾东北部海域干沉降量偏小 (图 6a), O_3 浓度偏大, 朝鲜半岛东部和西部海域干沉降量偏大, O_3 浓度偏小, 说明 O_3 浓度受干沉降作用的影响较大。 NO_x 浓度增大区主要集中在 30°N 以北大部分地区, 幅度为 5%~20%, 台湾东北海域 NO_x 干沉降量偏小 (图 6b), 其浓度也偏小约 5%~10% (图 7f), 干沉降作用对 NO_x 浓度的影响不如对 O_3 大。值得注意的是, 在 NO_x 排

放量较大的中国京津唐地区、长江三角洲、珠江三角洲、韩国以及日本东京附近地区, 虽然方案 B 模拟的 NO_x 的干沉降量较大 (图 6b), 但是其对 K_z 值的低估阻碍了 NO_x 的扩散, NO_x 的平均浓度仍是偏高的, 所以与干沉降作用相比, NO_x 浓度受 K_z 的影响更大。

5 结论

本文将广泛应用于东亚地区的 LLA 化学机制耦合到欧拉型区域空气质量模式 (RAQM), 并充分考虑了大区域污染物长期 (月、季、年) 模拟研究中普遍忽略的问题, 即降水随时间变化的非均匀性, 选用湍流参数化过程中近地层和全边界层分别应用相似理论模拟了 2000 年 4 月东亚地区湍流垂直扩散系数 (K_z) 和干沉降速度、 O_3 与 NO_x 浓度的空间分布, 得到的主要结论如下:

(1) 近地层与全边界层应用相似理论都较好地模拟了大气中 O_3 和 NO_x 浓度随时间的变化, 近地层应用相似理论在演变趋势和数值上同观测值符合得更好, 全边界层应用相似理论显著低估了硝酸盐的月均湿沉降量。

(2) 与近地层应用相似理论相比, 全边界层应用相似理论模拟的 K_z 值在近地层 50 m 处被低估 20% 以上; 在 750 m 处被低估约 70%。 O_3 、 NO_x 干沉降速度的差别主要出现在中国大陆东部的广大海域, 在日本东部与南部海域低估了 10% 以上; 而在

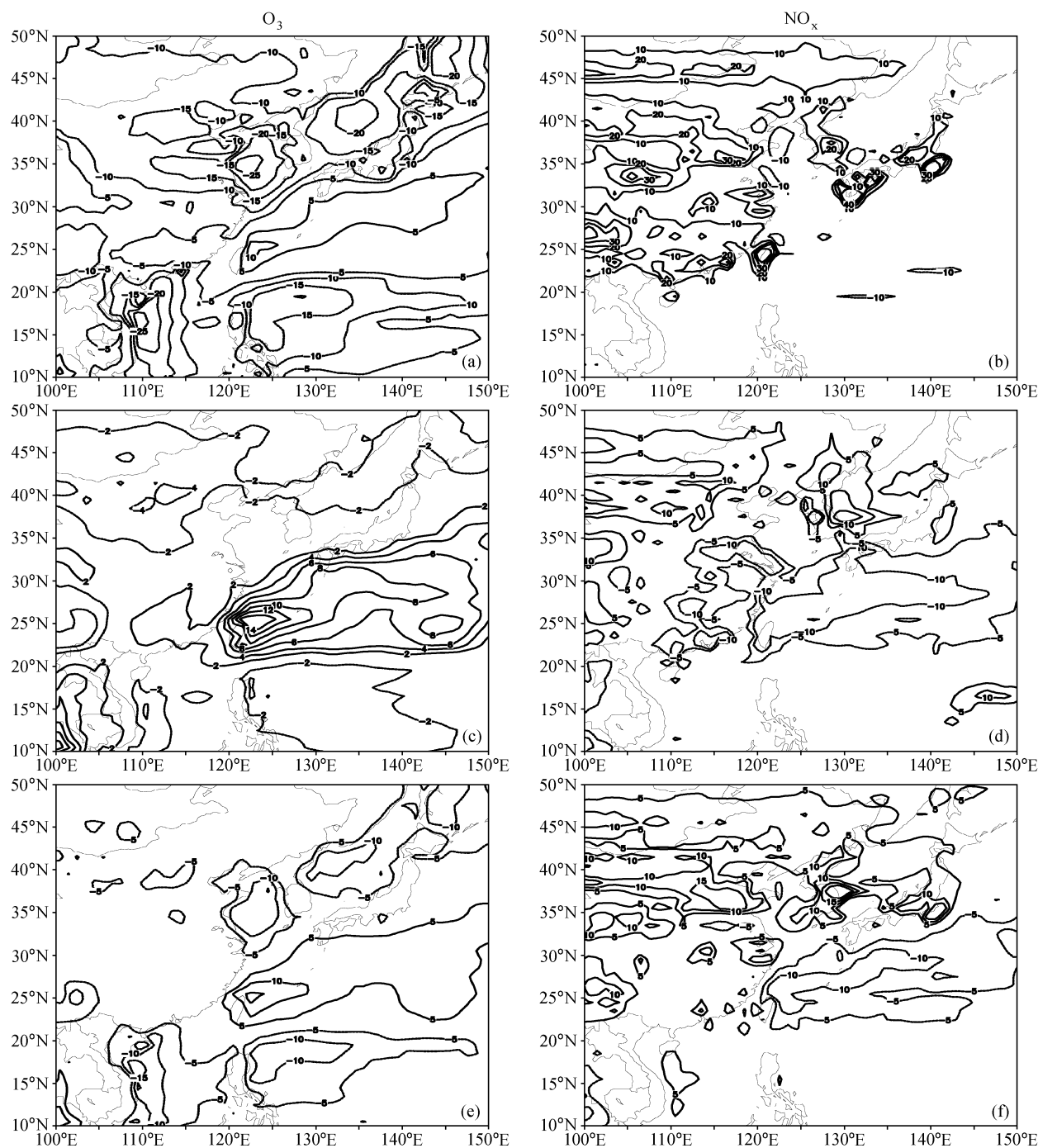


图7 方案B和方案A模拟的 O_3 (左列)、 NO_x (右列) 月均浓度偏差分布 (%): (a)、(c) 分别为 50 m、750 m O_3 浓度偏差; (b)、(d) 分别为 50 m、750 m NO_x 浓度偏差; (e)、(f) 分别为边界层中 O_3 、 NO_x 的平均浓度偏差

Fig. 7 Spatial distributions of mean monthly concentration deviations of O_3 (left) and NO_x (right) between the whole PBL diagnostic scheme and the surface-layer diagnostic scheme (%): (a) and (c) denote concentration deviations of O_3 at 50 m and 750 m, respectively; (b) and (d) denote concentration deviations of NO_x at 50 m and 750 m, respectively; (e) and (f) denote simulated deviations of O_3 and NO_x concentrations in the planetary boundary layer, respectively

朝鲜半岛东部和西部海域模拟值普遍偏高。

(3) 与近地层应用相似理论相比, 全边界层应

用相似理论模拟的 O_3 浓度在 50 m 高度处普遍降低 5%~25%; 在 750 m 高度上减少约 2%, 但在台湾

东北海域出现了 O_3 增大区。近地层 50 m 处 NO_x 浓度增大约 10%~30%; 750 m 处 NO_x 浓度变化幅度为 5%~10%。

(4) 在大区域、长期空气质量模拟研究中, 建议仅在近地层选用相似理论, 且模式第一层的高度应该设置在常通量层内。

参考文献 (References)

- 安俊岭, 王自发, 高会旺, 等. 1999. 区域性光化学模式与 LLA-C 机制的模拟性能比较 [J]. 大气科学, 23 (4): 422-426.
- An Junling, Wang Zifa, Gao Huiwang, et al. 1999. Comparison of a simplified photochemical model for regional air quality simulation (SRAS) with the LLA-C mechanism [J]. Chinese Journal of Atmospheric Sciences (in Chinese), 23 (4): 422-426.
- An Junling, Hiromasa Ueda, Wang Zifa. 2002. Simulations of monthly mean nitrate concentration in precipitation over East Asia [J]. Atmospheric Environment, 36: 4159-4171.
- An Junling, Hiromasa Ueda, Kazuhide Matsuda. 2003. Simulated impacts of SO_2 emissions from the Miyake volcano on concentration and deposition of sulfur oxides in September and October of 2000 [J]. Atmospheric Environment, 37: 3039-3046.
- An Junling, Cheng Xinjin, Qu Yu, et al. 2007. Influence of vertical eddy diffusivity parameterization on daily and monthly mean concentrations of O_3 and NO_y [J]. Advances in Atmospheric Sciences, 24: 573-580.
- Brodzinsky R, Cantrell B K, Endlich R M, et al. 1984. A long-range air pollution transport model for Eastern North America—II. Nitrogen oxides [J]. Atmospheric Environment, 18: 2361-2366.
- Businger J A, Wyngaard J C, Izumi Y. 1971. Flux-profile relationship in the atmospheric surface layer [J]. J. Atmos. Sci., 28: 181-189.
- Byun D W. 1990. On the analytical solutions of flux-profile relationships for the atmospheric surface layer [J]. Journal of Applied Meteorology, 29: 652-655.
- Byun D W. 1991. Determination of similarity functions of the resistance laws for the planetary boundary layer using surface-layer similarity functions [J]. Boundary-Layer Meteorology, 57: 17-48.
- Byun D W, Dennis R. 1995. Design artifacts in Eulerian air quality models: evaluation of the effects of layer thickness and vertical profile correction on surface ozone concentrations [J]. Atmospheric Environment, 29: 105-126.
- Byun D W, Pleim J E, Tang R T. 1999. Chap 12: Meteorology-chemistry interface processor (MCIP) for models-3 community multiscale air quality (CMAQ) modeling system [EB/OL]. <http://www.epa.gov/asmdnerl/CMAQ/CMAQscienceDoc.html>
- Carmichael G R, Peters L K, Saylor R D. 1991. The STEM-II regional scale acid deposition and photochemical oxidant model: I. An overview of model development and applications [J]. Atmospheric Environment, 25: 2077-2092.
- Grell G A, Dudhia J, Stauffer D R. 1994. A description of the fifth-generation Penn State/NCAR mesoscale model (MM5) [EB/OL]. NCAR Technical Note/TN-398 + STR. <http://www.mmm.ucar.edu/mm5/documents/mm5-desc-doc.html>
- Han Zhiwei, Ueda H, Matsuda K, et al. 2004. Model study on particle segregation and deposition during dust events in March 2002 [J]. J. Geophys. Res., 109 (D19205), doi: 10. 1029/2004 JD004920.
- Han Zhiwei, Hiromasa Ueda, Tatsuya Sakurai. 2006. Model study on acidifying wet deposition in East Asia during wintertime [J]. Atmospheric Environment, 40: 2360-2373.
- Hogstrom U. 1988. Nondimensional wind and temperature profiles [J]. Bound.-Layer Meteor., 42: 55-78.
- Holtstlag A A, Bruijn D. 1990. A high resolution air mass transformation model for short-range weather forecasting [J]. Mon. Wea. Rev., 118: 1561-1575.
- 蒋维楣, 孙鉴泞, 王雪梅, 等. 2003. 空气污染气象学 [M]. 南京: 南京大学出版社: 36-85.
- Jiang Weimei, Sun Jianning, Wang Xuemei, et al. 2003. Air Pollution Meteorology [M] (in Chinese). Nanjing: Nanjing University Press: 36-85.
- Kajino M, Ueda H, Satsumabayashi H, et al. 2004. Impacts of the eruption of Miyakejima volcano on air quality over far east Asia [J]. J. Geophys. Res., 109 (D21204), doi: 10. 1029/2004 JD004762.
- Louis J F. 1979. A parametric model of vertical eddy fluxes in the atmosphere [J]. Bound.-Layer Meteor., 17: 187-202.
- Lurmann F W, Lloyd A C, Atkinson R. 1986. A chemical mechanism for use in long-range transport/acid deposition computer modeling [J]. J. Geophys. Res., 91: 10905-10915.
- Monin A S, Obukhov A M. 1954. Basic laws of turbulent mixing in the atmosphere near the ground [J]. Akad. Nauk. SSSR Geofiz. Insr., 24 (151): 163-187.
- Okita T, Hara H, Fukuzaki N. 1996. Measurements of atmospheric SO_2 and SO_4^{2-} , and determination of the wet scavenging coefficient of sulfate aerosols for the winter monsoon season over the Sea of Japan [J]. Atmospheric Environment, 30: 3733-3739.
- Russell A, Dennis R. 2000. NARSTO critical review of photochemical models and modeling [J]. Atmospheric Environment, 34: 2283-2324.
- Walmsley J L, Wesely M L. 1996. Modification of coded parameterizations of surface resistances to gaseous dry deposition [J]. Atmospheric Environment, 30: 1181-1188.
- 王勤耕, 韩志伟, 雷孝恩. 2002. 当前对对流层臭氧数值模拟研究中的若干问题 [J]. 气候与环境研究, 7 (1): 42-48.
- Wang Qinggeng, Han Zhiwei, Lei Xiaoen. 2002. Scientific problems in current numerical studies of tropospheric ozone [J]. Climatic and Environmental Research (in Chinese), 7 (1): 42-48.
- Wesely M L. 1989. Parameterization of surface resistances to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models [J]. Atmospheric Environment, 23: 1293-1304.