

中国环渤海地区 SO₂ 和 NO₂ 干沉降数值模拟及影响因子分析

苏航^{1,2,3}, 银燕^{1*}, 朱彬¹, 王自发³, 李杰³, 潘小乐³ (1.南京信息工程大学大气物理学院, 江苏 南京 210044; 2.辽宁省气象局, 辽宁 沈阳 110016; 3.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)

摘要: 利用耦合了 Wesely 大叶阻力干沉降模型的嵌套网格空气质量预报系统 NAQPMS, 对环渤海地区 SO₂ 和 NO₂ 的干沉降敏感因子、干沉降通量、空气质量进行模拟分析。结果表明, 大气稳定度、太阳辐射、季节、下垫面类型为干沉降的主要敏感因子。大气越稳定, 干沉降速率越小。太阳辐射越强, 干沉降速率越大。SO₂ 早秋干沉降速率最小, 冬季最大; NO₂ 春、夏、早秋、晚秋的干沉降速率大致相同, 冬季最小。SO₂ 的干沉降速率在水面上较大, 在沙漠上较小; NO₂ 的干沉降速率在农田上较大, 在水面上较小。由于不同敏感因子的共同作用, 使得环渤海大部分地区 SO₂ 干沉降通量密度为 0.05~0.25 μg/(m²·s), NO₂ 干沉降通量密度均为 0.05~0.30 μg/(m²·s), 高值区均主要分布在河北南部、山东西北部以及辽宁中部的部分地区。干沉降通量密度从大到小依次为秋季、春季、冬季和夏季, 白天干沉降通量密度普遍大于夜间, 且在渤海海面上也有一定的干沉降通量。由于干沉降、源排放、输送等作用的影响, 使得环渤海地区 SO₂ 平均浓度为 (5~20) × 10⁻⁶, NO₂ 平均浓度大致在 (20~60) × 10⁻⁶, 高值区主要出现在河北南部、山东西北部以及辽宁中部的部分地区。夏季个别地区浓度较高, 大部分地区浓度较低, 春、秋、冬 3 季大部分地区浓度较高。

关键词: 干沉降; SO₂; NO₂; 环渤海; 数值模拟

中图分类号: X511, P401 **文献标识码:** A **文章编号:** 1000-6923(2012)11-1921-12

Numerical simulation and sensitive factors analyse for dry deposition of SO₂ and NO₂ in Bohai Rim area of China.

SU Hang^{1,2,3}, YIN Yan^{1*}, ZHU Bin¹, WANG Zi-fa³, LI Jie³, PAN Xiao-le³ (1. Institute of Atmospheric Physics, Nanjing University of Information Science and Technology, Nanjing 210044, China; 2. Liaoning Provincial Meteorological Bureau, Shenyang 110016, China; 3. State Key Laboratory of Atmospheric Boundary Layer Physics and Atmospheric Chemistry, Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Science, Beijing 100029, China). *China Environmental Science*, 2012, 32(11): 1921~1932

Abstract: Nested air quality prediction modeling system (NAQPMS), had been coupled with the Wesely large leaf resistance dry deposition model from USA. The influencing factors of dry deposition and dry deposition flux of SO₂ and NO₂ in Bohai Rim area were simulated and analyzed. The main sensitive factors of dry deposition included atmospheric stabilities, solar radiation, seasons and surface pattern. The dry deposition velocity decreased with the increasing atmospheric stabilities and it rose more with intensive solar Radiation. The dry deposition velocity of SO₂ had the minimum value in early autumn and the maximum value in winter. The dry deposition velocity of NO₂ had the similar values during spring, summer, early autumn and late autumn, and reached its minimum value in winter. The dry deposition velocity of SO₂ was maximum on the water surface while minimum in desert area. To dry deposition velocity of NO₂ was lower on the water surface, while it remained higher on the farmlands. Because of the cumulative effect of different sensitive factors, the dry deposition flux of SO₂ in the most of the research area remained between 0.05~0.25 μg/(m²·s) whereas the dry deposition flux of NO₂ was between 0.05~0.30 μg/(m²·s). The higher value were noted in the south of Hebei, north west of Shandong and middle of Liaoning province. For the four season the dry deposition

收稿日期: 2012-03-26

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(41030962); 中国科学院知识创新工程重要方向项目(KZCX2-YW-205); 高等学校博士学科点专项科研基金博导类资助课题(20113228110002); 江苏高校优势学科建设工程项目(PAPD)

* 责任作者, 教授, yinyan@nuist.edu.cn

flux was ranked as: autumn>spring>winter> summer. The dry deposition flux was larger in daytime than at night, it included some dry deposition flux of SO₂ on the sea surface of Bohai region. In order of the effects of dry deposition、emission and transport, the concentration of SO₂ in Bohai Rim was between (5~20)×10⁻⁶, NO₂ between (20~60)×10⁻⁶. The maximum values of all the factors were observed in south of Hebei, north west of Shandong and the middle of Liaoning. The concentration was higher in summer in some area, while lower in most of the area, it remained higher during spring, autumn and winter.

Key words: dry deposition; SO₂; NO₂; Bohai Rim; numerical simulation

干沉降是大气中污染物清除的主要过程之一,直接影响着空气中污染物浓度和空气质量状况的时空分布^[1].特别在干旱地区、污染物长距离输送过程和酸雨研究^[2-3]中,干沉降过程更是不容忽视.另外,干沉降有可能导致自然或半自然生态系统富营养化、土壤或水体酸化以及生物多样性降低等危害^[4-9].干沉降也是生态系统从大气中获得营养元素的重要过程之一,同时也是各种元素循环的重要过程之一^[10-11].因此研究干沉降对环境和生态都有着重要意义.

早期对气体污染物干沉降速率的测定通常采用实验室测量的方法或野外观测的方法^[12-18].但由于直接观测技术难度大,且只能局限于单点,而干沉降数值模式具有灵活方便的优点,得到广泛应用^[19-27].第1代干沉降模式,主要考虑了影响干沉降的基本物理过程.第2代干沉降模式,开始用阻力相似的方法计算干沉降速率,但其中的表面阻力是从观测值积累的经验表中取值,这种方法不能很好地反映气象条件、冠层生理过程等因子的变化.Wesely^[28]提出了大叶阻力干沉降理论,将物质的干沉降和化学、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,从而发展成了第3代干沉降模式.随着研究尺度的扩展,对干沉降的研究逐渐从局地尺度扩展到区域尺度.石春娥等^[29]利用 MM5 模式和干沉降阻力模型计算了我国东部地区硫化物干沉降速率的区域分布.杨浩明等^[30]将干沉降大叶阻力模型耦合入区域酸沉积模式 RegADMS 中,不仅得到了华东地区硫的区域干沉降情况,并且在模式中考虑了污染物的输送、扩散、转化等过程.王体健等^[31]利用次网格技术,提高了气体污染物区域干沉降通量模拟的精度.中国科学院大气物理研究所王

自发等^[32]开发的嵌套网格空气质量预报模式系统是在充分借鉴吸收了国际上先进的天气预报模式、空气污染数值预报模式等的优点,并结合中国各区域、城市的地理、地形环境、污染源的排放资料等特点的基础上所建立的数值预报模式系统.此系统在计算技术上采用并行集群结构,从而加快了预报的时效;在运算原理上采用嵌套网格结构,从而提高了模拟的精度.

近几十年来我国工业化发展及城市化进程迅猛加快,使得以硫化物、氮氧化物等为代表的城市型污染逐渐加重,而且呈现出一定程度的区域范围污染特征.环渤海地区是我国重要的大中城市聚集区、重工业聚集区和粮食种植聚集区,并且环渤海地区经济的发展对渤海的海洋生态、海洋环境造成较大影响.因此深入研究和探讨大气污染物在该地区的干沉降情况对该地区的生态环境保护,以及经济可持续发展有着重要的指导意义.

本研究以嵌套网格空气质量预报模式系统 NAQPMS 为基础,耦合入 Wesely 的大叶阻力干沉降模型,将原模式中利用查表法计算干沉降方案提升到利用参数化法计算干沉降,并将干沉降过程与污染源排放、输送、转化、湿沉降等过程联合考虑,综合大气物理、化学、生物过程之间的相互作用,提高时间和空间分辨率,对环渤海区域气体污染物的干沉降敏感因子、干沉降速率及干沉降通量进行模拟研究,旨在得出干沉降对于该地区空气质量的影响.

1 研究方法

首先根据 Wesely^[28]的大叶阻力干沉降理论编写的干沉降模型,模拟分析出环渤海地区 SO₂ 和 NO₂ 的干沉降敏感因子.然后将 Wesely 的大叶

阻力干沉降理论编写的干沉降模型耦合到嵌套网格空气质量预报模式系统(NAQPMS)^[32]中.之后以美国国家环境预报中心(NCEP)和美国国家大气研究中心(NCAR)提供的 6h 间隔的全球分析资料 FNL 为基础,利用中尺度气象模式 MM5 模拟环渤海地区基准年(2007 年)春(4 月)夏(7 月)秋(10 月)冬(1 月)四季的气象场结果.最后将模拟出的气象场结果和利用 SMOKE 模型得到的环渤海地区排放源结果,驱动耦合 Wesely 干沉降模型的嵌套网格空气质量模式系统 NAQPMS,模拟出环渤海地区基准年春夏秋冬四季的污染场结果,同时模拟分析出环渤海地区 SO₂ 和 NO₂ 干沉降通量的时空分布特征.

1.1 研究区域

环渤海地区是指环绕着渤海全部及黄海的部分沿岸地区所组成的广大地域(图 1),包括北京、天津、河北、辽宁、山东等地,位于中国沿太平洋西岸的北部,是国家基本建设与技术装备改造的重点区域.目前已成为重要的重化工基地和北方经济核心区,也是目前经济发展的新兴地带和重要支点.本文涉及的环渤海沿海地区包括北京、天津、河北、辽宁、山东,共 2 市 3 省.总面积达 51.55 万 km²,总人口达 22138 万人,分别占全国的 5.37% 和 16.15%.

1.2 中尺度气象模式 MM5 及其参数设置

MM5 是由美国国家大气科学研究中心和宾夕法尼亚州州立大学共同研制开发的流体非静力中尺度数值天气预报模式,其完全可压缩,支持多网格嵌套,且其物理过程全面,有多种物理过程可供选择,具有四维资料同化功能,对从天气尺度、中尺度到积云尺度的天气系统均能进行模拟.

根据本研究的需要,中尺度气象模式 MM5 共设置 4 层区域,中心点坐标为 E118.0°,N32.0°.4 层区域分辨率为 81,27,9,3km;X 方向的网格数分别为:88、154、220、280;Y 方向的网格数分别为:75、145、217、268.具体区域设置情况如图 2 所示.

采用敏感性实验对比分析,最终对 MM5 中尺度气象模式选用了以下参数化方案:Grell 简单云方案,(2)浅积云方案 (ISHALLO),(3)MRF 边界

层方案,(4)水汽的垂直扩散方案(IMVDIF),(5)Simple Ice 简单冰相方案,(6)云辐射方案,(7)层土壤模式,(8)松弛/流入-流出侧边界方案,(9)底层边界条件,(10)上层辐射边界条件,(11)双向嵌套初始化选项(IOVERW),(12)带有平滑-反平滑器的 1 点反馈方案.

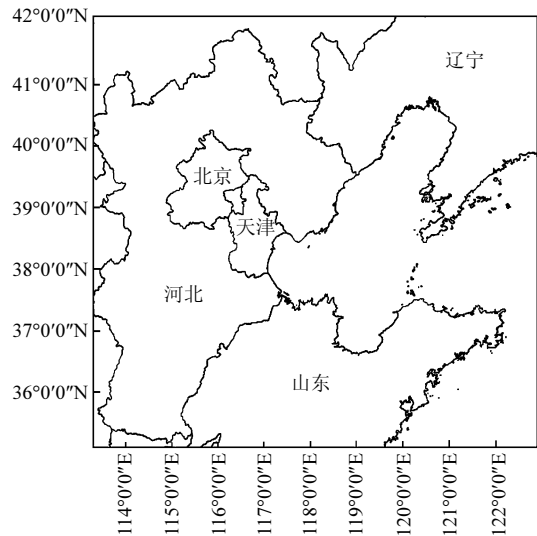


图 1 环渤海地区地理区位

Fig.1 Geography map of Bohai Rim area

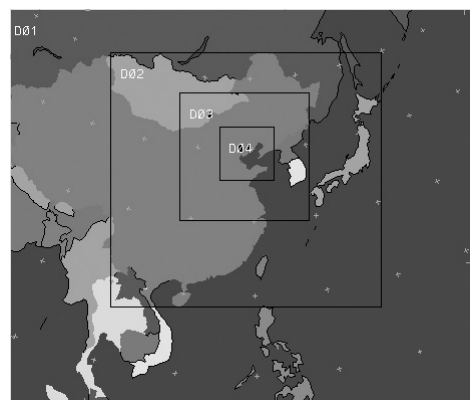


图 2 环渤海地区中尺度气象模式 MM5 区域设置

Fig.2 Study area map of Bohai Rim area drawn by using mesoscale model MM5

1.3 污染模式 NAQPMS 及其参数设置

本研究的空气质量模式采用中国科学院大气物理研究所自主开发研制的嵌套网格空气质量预报模式系统(NAQPMS)^[32].该模式第 1、2、3

层嵌套区域的排放源采用 2006 年的排放源清单^[33],空间分辨率为 0.5°。对于第 4 层嵌套区域,排放源则根据环渤海各省 2007 年电厂、工业、锅炉、机动车等点源和面源排放清单,经 SMOKE 模型处理后并分配到网格上。经 SMOKE 处理后生成的气体污染物排放源(以 2007 年 1 月第 4 区域 SO₂ 排放源分布为例)如图 3 所示。

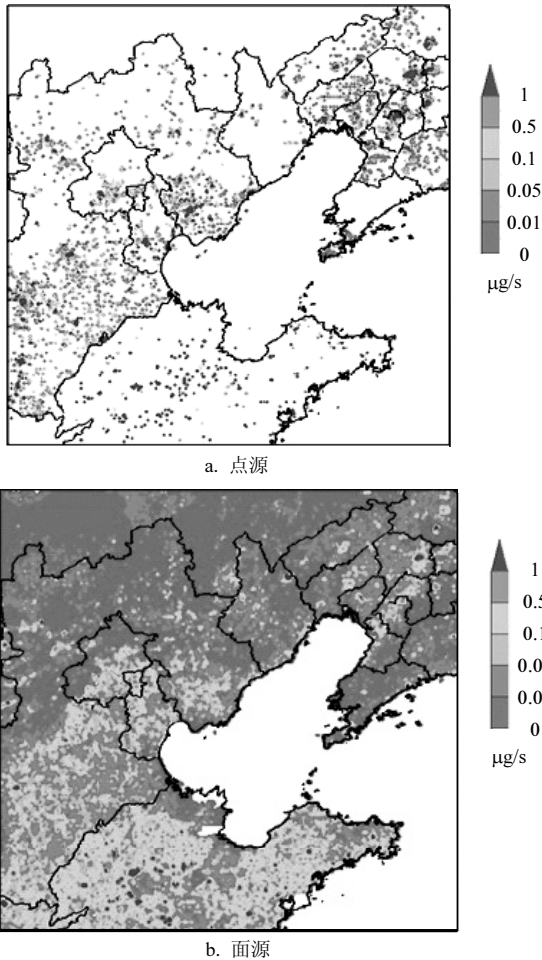


图3 2007年1月NAQPMS模式第4区域SO₂排放源
Fig.3 The fourth regional SO₂ emission of NAQPMS mode in January 2007

1.4 WESELY 干沉降模型

Wesely^[28]干沉降模型是基于大叶阻力干沉降理论发展起来的干沉降模型。它对表面阻力的计算充分考虑了下垫面上植被的生长结构和分布特征,又根据每个部分的实际特征再予以细分,

最终得到了与表面阻力有关的 7 个阻力因子,它们的运算叠加就得到了表面阻力的值。这样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。

气体污染物的干沉降速度受多种因子的制约,这些因子大致可以分为 3 类,即大气特性、地表特性和污染物本身特性,而每一类又包括许多因子。阻力模型认为大气污染物的干沉降速度与 3 个阻力之和成反比,即:

$$V_d = (R_a + R_b + R_c)^{-1} \tag{1}$$

式中: R_a 是空气动力学阻力(s/m); R_b 是片流层阻力(s/m); R_c 是表面阻力(s/m)。

1.4.1 空气动力学阻力 R_a 空气动力学阻力 R_a 是污染物向最低空气层输送时受到的阻力,主要决定于这层以上的湍流混合,利用大气稳定性和最低大气层的风速、地面粗糙度来计算。其表达式为:

$$R_a = \frac{\ln\left(\frac{z}{z_0}\right) - \phi_h}{ku_*} \tag{2}$$

式中: z 是模式最低层的高度(m); z₀ 是粗糙度(m); φ_h 是稳定度校正函数;k 是卡门常数,取为 0.4; u* 是摩擦速度(m/s)。

1.4.2 片流层阻力 R_b 在陆面或冰面上,片流层阻力 R_b 为污染物通过大气与地表交界时受到的阻力,它是由地表上的分子扩散过程决定的。Wesely 在讨论过这种阻力时建议使用(3)式计算 R_b:

$$R_b = \frac{2}{ku_*} \left(\frac{K}{D_g}\right)^{2/3} \tag{3}$$

式中:K 是空气的热扩散率(无量纲); D_g 是痕量成分在大气中的分子扩散率(无量纲)。

在水面上, R_b 据(4)式计算:

$$R_b = \frac{1}{ku_*} \ln\left(\frac{ku_* z_0}{D_g}\right) \tag{4}$$

在雪面上, R_b 取为 200.0s/cm。

1.4.3 表面阻力 R_c 表面阻力 R_c 与地表类型有关,且随季节、地点、不同物质而变化,是目前最难确定的量。对于 R_c,原来的阻力模式是通过一系列观测试验归纳得到不同季节、不同下垫面、不同辐射条件下的 R_c 值。而使用 Wesely 的方法计算

R_c 则充分考虑了下垫面上植被的生长结构和分布特征,先总体上将其分为高层覆盖物、低层覆盖物和地面覆盖物 3 部分来考虑,对于每个部分又根据其实际的特征再予以细分,最终得到了与 R_c 有关的 7 个阻力因子,它们的叠加就得到了 R_c 的值.具体的计算公式如下:

$$R_c = \frac{1}{\frac{1}{r_s + r_m} + \frac{1}{r_{lu}} + \frac{1}{r_{dc} + r_{cl}} + \frac{1}{r_{ac} + r_{gs}}} \quad (5)$$

其中, r_s 表示植物叶表气孔部分的表面阻力(s/m); r_m 表示植物叶肉部分的表面阻力(s/m); r_{lu} 表示植物叶片角质层部分及高层覆盖物其他表面部分的表面阻力(s/m); r_{dc} 表示覆盖物间由于对流作用引起气体交换所造成的表面阻力(s/m); r_{cl} 表示低层覆盖物中裸露在外的叶片、嫩枝、茎皮等部分的表面阻力(s/m); R_{ac} 表示受覆盖物高度和生长分布密度影响气体迁移所引起的表面阻力(s/m); r_{gs} 表示地面的土壤落叶层、枯叶层等部分的表面阻力(s/m)^[28].

2 结果与讨论

2.1 干沉降敏感因子分析

影响气体污染物干沉降速率的敏感因子主

要包括:大气稳定度、太阳辐射、季节变化及下垫面类型 4 个方面.

2.1.1 大气稳定度对干沉降的影响 大气稳定度类型是空气动力学阻力 R_a 和片流层阻力 R_b 的主要敏感因子.表 1 给出了干沉降模式根据不同风速和温度梯度情况划分的北京不同大气稳定度级别,SO₂ 和 NO₂ 干沉降速率及若干稳定度衡量参数的变化情况,其中摩擦速度(U*)、理查森数(Ri)、莫宁-奥布霍夫长度(L)是根据 Louis^[34]的边界层参数化方案,利用干沉降模式计算得出.从表 1 中可以看出,SO₂ 和 NO₂ 的干沉降速率均随大气稳定度的增加而减小.这是由于大气稳定度的增强,导致边界层内湍流交换作用减弱,从而使 SO₂ 和 NO₂ 的干沉降速率减小.随稳定度的增加,U* 逐渐减小,Ri 逐渐增大,L 从小于零到近于无穷再到大于零变化.这表明近地层机械湍流交换逐渐减弱;表明气象场在从动力促进、热力促进的状态向动力抑制、热力抑制的状态发展.随稳定度的增加,R_a 和 R_b 都逐渐在增大,而 R_c 没有变化,这说明大气的稳定度主要是影响 R_a 和 R_b 的敏感因子.从 R_a、R_b 和 R_c 的相对大小可以看出,R_a 和 R_b 对干沉降速率的影响较弱,而 R_c 则是干沉降速率的主要影响因子.

表 1 不同大气稳定度级别下 SO₂ 和 NO₂ 干沉降速率和相关参变量的变化

Table 1 Dry deposition velocity and correlative parameter of SO₂ and NO₂ in different stabilized atmospheric

物质	稳定度类型	U* (m/s)	Ri	L (m)	R _a (s/m)	R _b (s/m)	R _c (s/m)	V _d (cm/s)
SO ₂	A	0.24	-0.37	-10.72	0.13	9.52	264.29	0.365041
	B	0.22	-0.16	-23.90	0.89	10.39	264.29	0.362887
	C	0.21	-0.10	-35.35	1.16	10.74	264.29	0.362075
	D	0.19	0.11	19.37	3.35	11.71	264.29	0.357969
	E	7.66×10 ⁻²	0.29	4.91	5.86	28.91	264.29	0.334386
	F	1.10×10 ⁻²	1.89	0.18	103.50	201.38	264.29	0.175695
NO ₂	A	0.24	-0.37	-10.72	0.13	8.49	1360.71	0.073028
	B	0.22	-0.16	-23.90	0.89	9.27	1360.71	0.072947
	C	0.21	-0.10	-35.35	1.16	9.58	1360.71	0.072916
	D	0.19	0.11	19.37	3.35	10.45	1360.71	0.072753
	E	7.66×10 ⁻²	0.29	4.91	5.86	25.78	1360.71	0.071821
	F	1.10×10 ⁻²	1.89	0.18	103.50	179.60	1360.71	0.060834

注:从A到F表示稳定度逐渐增加

2.1.2 太阳辐射对干沉降的影响

太阳辐射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,从而影响气体表面阻力的大小,进而影响气体干沉降速率的大小.从图4中可以看出,随着太阳辐射强度的增加,SO₂和NO₂的表面阻力均减小,干沉降速率均相应逐渐增加,并且与表面阻力近似成反比变化.这主要是由于太阳辐射越强,下垫面叶表气孔张开程度就越大,越有利于对物质的吸附,以致表面阻力越小,而表面阻力又是影响干沉降速率的主要因子,从而导致了越大的干沉降速率.

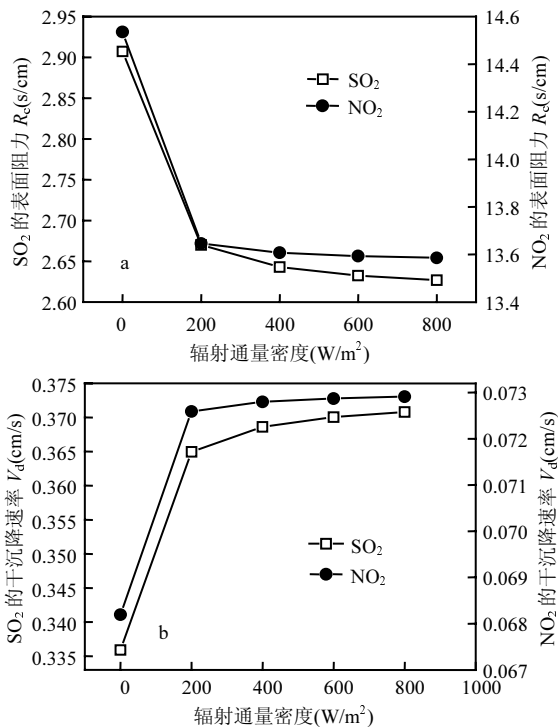


图4 不同太阳辐射条件下农田下垫面上SO₂和NO₂在表面阻力和干沉降速率变化

Fig.4 Surface resistance and dry deposition velocity of SO₂ and NO₂ in different solar radiation conditions on farmland

2.1.3 季节变化对干沉降的影响 季节也是影响气体干沉降速率变化的一个重要因素,它通过改变温度和下垫面植被属性来综合影响干沉降速率的变化.以农田下垫面季节变化为例,从图5中可以看出季节的变化对气体的V_d和R_c有着较明显的影响,并且R_c与V_d的变化近似成反比关系,这说明季节的变化主要是通过影响R_c,进而影响

V_d.对于SO₂来说,春、夏、晚秋3季的干沉降速率差别不大,早秋出现极小值,而冬季的干沉降速率有明显的上升,这是由于SO₂易溶于水,而冬季的下垫面易结积雪,为SO₂的干沉降提供了类水下垫面的原因,因此SO₂在冬季的干沉降速率最大,这与张艳^[36]等观测计算结果相一致.对于NO₂来说,春、夏、早秋、晚秋的干沉降速率大致相同,但存在波动性变化,而冬季的干沉降速率明显下降,这是由于NO₂易被植物性下垫面吸附,而北方冬季植物性下垫面急剧减少所引起的.综上所述,气体的水溶性和下垫面植被覆盖情况是决定气体干沉降季节变化的重要因素.

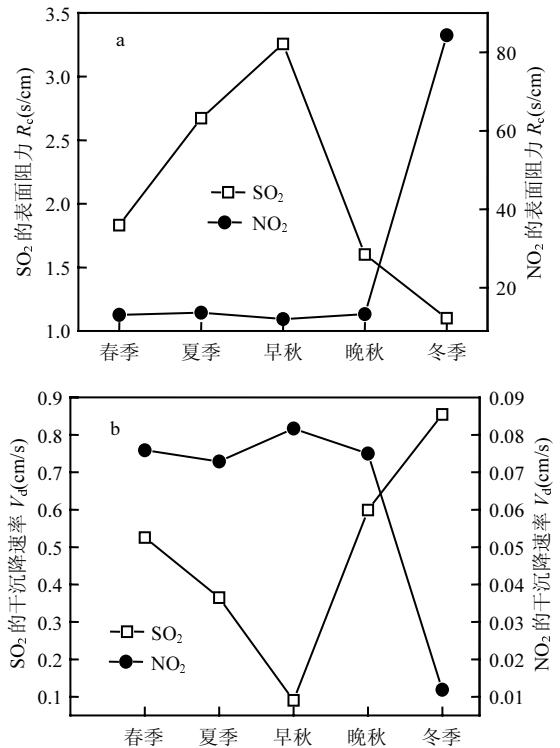


图5 不同季节农田下垫面上SO₂和NO₂的表面阻力和干沉降速率的变化

Fig.5 Surface resistance and dry deposition velocity of SO₂ and NO₂ in different seasons on farmland

2.1.4 下垫面类型对干沉降的影响 从表2中可以看出,SO₂、NO₂两者的干沉降速率随下垫面类型的变化而变化.同一物种在不同下垫面上的干沉降速率不同,不同物种在同一下垫面上的干

沉降速率也存在着差别.从 R_c 与 V_d 近似成反比关系变化可知,下垫面条件主要通过影响 R_c 进而影响干沉降速率 V_d 的变化.通过对比不同下垫面上气体的 V_d 可以看出,SO₂ 的 V_d 在水面上最大,在沙

漠上最小,在植物性沉积面上的 V_d 普遍大于非植物性沉积面上的 V_d ;NO₂ 在水面上的 V_d 明显小于陆地上的 V_d ,而 NO₂ 较易吸附于植物表面,所以 NO₂ 的 V_d 在农田和梯田上较大.

表 2 SO₂ 和 NO₂ 在不同下垫面表面阻力和干沉降速率变化

Table 2 Surface resistance and dry deposition velocity of SO₂ and NO₂ in different surface conditions

气体	参量	下垫面类型									
		城市	农田	山脉	落叶林	混合林	水域	沙漠	湿地	梯田	灌木林
SO ₂	R_c (s/m)	5.0000	2.6429	3.1758	7.5378	7.1285	0.1000	10.000	2.4547	2.7553	4.6579
	V_d (cm/s)	0.1972	0.3686	0.3081	0.1314	0.1389	5.8817	0.0993	0.3961	0.3539	0.2115
NO ₂	R_c (s/m)	31.000	13.607	16.055	25.210	28.845	99.000	40.000	42.761	15.163	17.355
	V_d (cm/s)	0.0321	0.0728	0.0618	0.0395	0.0345	0.0100	0.0249	0.0233	0.0654	0.0572

从以上分析可以看出,气体的干沉降速率较强烈地依赖于沉积表面的特性,植物性沉积面上的 V_d 值一般大于非植物性沉积面上的 V_d 值,气体与沉积表面的溶混性越强,其干沉降速率越大.表面潮湿状况通过改变表面阻力从而对气体沉积速率产生显著的影响,当表面非常潮湿时,可溶性气体的干沉降速率呈现迅速增大的趋势,而不可溶性气体的干沉降速率则呈现相反的变化趋势.

2.2 环渤海地区 SO₂ 和 NO₂ 干沉降通量模拟

2.2.1 环渤海 SO₂ 干沉降通量密度时空分布特征

SO₂ 主要为一次污染物,故干沉降通量密度高值区距污染物排放源区较近.环渤海大部分地区 SO₂ 干沉降通量密度均为 0.05~0.25 μg/(m²·s),高值区主要分布在河北南部、山东北部以及辽宁中部的部分地区(图 6).

春季环渤海地区白天 SO₂ 干沉降通量密度高值区主要分布在山东西北部、辽宁中部以及渤海等地区,部分地区可达 0.25 μg/(m²·s)左右.夜间环渤海地区 SO₂ 的干沉降通量密度整体有所降低,这是由于夜间大气稳定度增加、太阳辐射减小,使得 SO₂ 干沉降速率减小,最终导致夜间 SO₂ 的干沉降通量密度有所降低.

夏季环渤海地区白天 SO₂ 干沉降通量密度高值区也主要分布在山东西北部、河北南部以及辽宁中部部分地区,量级约在 0.20~0.25 μg/(m²·s)之间.夜间同样由于太阳辐射能量减少且边界层处于更为稳定的状态,故大部分地区干沉降通量

密度略有减小.

秋季环渤海地区白天 SO₂ 干沉降通量密度的最大值出现在山东西北部、河北南部以及辽宁中部等地区,量级可达 0.25 μg/(m²·s).夜间河北南部、辽宁中部及渤海地区 SO₂ 的干沉降通量有较明显降低,这与环渤海地区秋季夜晚大气稳定度增加、太阳辐射减小及人为排放减少有关.

冬季环渤海地区处在采暖期,大量的化石燃料燃烧使得冬季环渤海地区空气中 SO₂ 浓度明显升高,但由于环渤海地区冬季 SO₂ 干沉降速率也有明显减小,故 SO₂ 干沉降通量密度提高不大,仅超过夏季 SO₂ 干沉降通量密度.冬季夜间大气稳定度增加、太阳辐射减小及人为活动减少导致的 SO₂ 排放量减少,使得冬季夜间 SO₂ 干沉降通量密度有所减小.

干沉降通量密度的大小与污染物的干沉降速率和污染物的浓度有关,且均成正比.从季节整体变化特征来看,每年采暖期开始,化石燃料使用量增加,环渤海地区大气中 SO₂ 浓度往往明显升高,但该时段植被开始凋谢枯萎,其冠层本身对 SO₂ 等污染物的吸收有所减弱;夏季则相反(植被生长旺盛,植被冠层吸收能力较强,但大气中 SO₂ 浓度较低).以上 2 个因素的共同作用使得环渤海地区四季干沉降通量密度从大到小依次为秋季、春季、冬季和夏季,且白天干沉降通量密度大于夜间.

还应指出的是,由于 SO₂ 具有一定水溶性,其在渤海海面上也有一定的干沉降,其量级一般为

0.05~0.2 $\mu\text{g}/(\text{m}^2\cdot\text{s})$,其中春季和秋季夜间海面上的干沉降通量稍高,约在 0.2 $\mu\text{g}/(\text{m}^2\cdot\text{s})$ 。

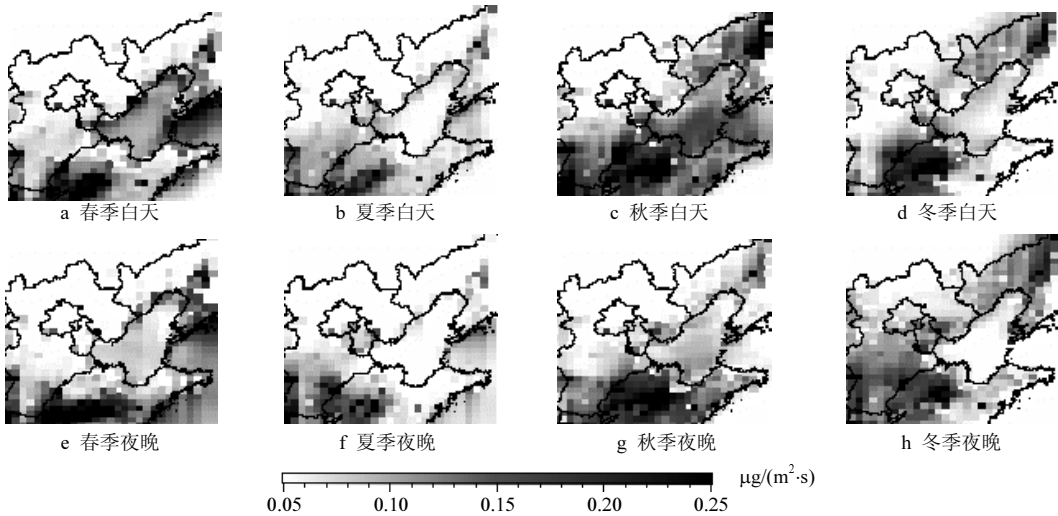


图 6 环渤海地区 SO₂ 四季昼夜干沉降通量密度分布

Fig.6 Dry deposition flux of SO₂ during four seasons day and night in Bohai Rim

2.2.2 环渤海 NO₂ 干沉降通量密度时空分布特征 NO₂一般由城市排放NO等前体物经光化学反应后生成,且具有较强的反应活性,因此很难参与长距离的输送,因而其干沉降通量密度的大小和分布与排放源的分布、大气稳定度、太阳辐射和气温密切相关.环渤海大部分地区 NO₂ 干沉降通量密度均为 0.05~0.30 $\mu\text{g}/(\text{m}^2\cdot\text{s})$ 之间,高值区主要分布在河北南部、山东西部以及辽宁中部的部分地区(图 7)。

春季环渤海地区白天 NO₂ 干沉降高值区域主要分布在北京、天津、河北南部、山东西北部、辽宁中部等地区,可达 0.25 $\mu\text{g}/(\text{m}^2\cdot\text{s})$ 左右.其他地区一般在 0.15 $\mu\text{g}/(\text{m}^2\cdot\text{s})$ 左右.这主要是由于春季环渤海地区仍有部分时间处于采暖期,NO_x 排放量较高所致.夜间 NO₂ 干沉降通量普遍有所减少,尤其是在河北南部地区,NO₂ 的干沉降通量密度仅为 0.10 $\mu\text{g}/(\text{m}^2\cdot\text{s})$ 左右.这是由于夜间大气稳定度增强、太阳辐射减小所致。

夏季环渤海地区植被茂盛,干沉降速率有所增加,但已度过采暖期,NO_x 排放量有较明显减少,故总的 NO₂ 干沉降通量密度较春季略有减少,高值区也主要分布在北京、天津、河北南部、辽宁中部等地区,量级可达 0.20 $\mu\text{g}/(\text{m}^2\cdot\text{s})$ 左右.夜间由于太阳辐射能量减少,使地表植被气孔关闭有关,

且边界层处于更为稳定的状态,故大部分地区干沉降通量密度略有减小。

秋季环渤海地区 NO₂ 干沉降通量密度的区域分布与夏季差别不大,但由于农作物成熟,植被茂盛,使得干沉降速率有所增加,且部分时间处于环渤海地区的采暖期,故秋季称为一年中干沉降通量密度最高的季节.NO₂ 白天的干沉降通量密度平均在 0.20 $\mu\text{g}/(\text{m}^2\cdot\text{s})$ 左右,在天津唐山和石家庄等地干沉降通量密度相对较大.秋季白天 NO₂ 干沉降通量密度最大地区在北京南部、天津、河北南部、山东西部以及辽宁中部都有较大范围高值区,数值可达 0.3 $\mu\text{g}/(\text{m}^2\cdot\text{s})$ 左右.夜间的干沉降通量密度较白天有明显下降,可见在植被茂盛的时期,太阳辐射、大气稳定度等气象因子对干沉降通量密度有着较强的影响。

冬季环渤海地区白天 NO₂ 的干沉降通量密度的高值区主要集中于北京和天津的南部,河北南部、山东西部等地区,可达 0.25 $\mu\text{g}/(\text{m}^2\cdot\text{s})$ 左右.由于夜间冬季人为活动减少,NO₂ 的前体物排放量显著减少,且太阳辐射减少,故环渤海地区冬季夜间 NO₂ 的干沉降通量密度较白天有较明显降低.仅在北京、天津、河北南部地区有约 0.20 $\mu\text{g}/(\text{m}^2\cdot\text{s})$ 左右的高值区。

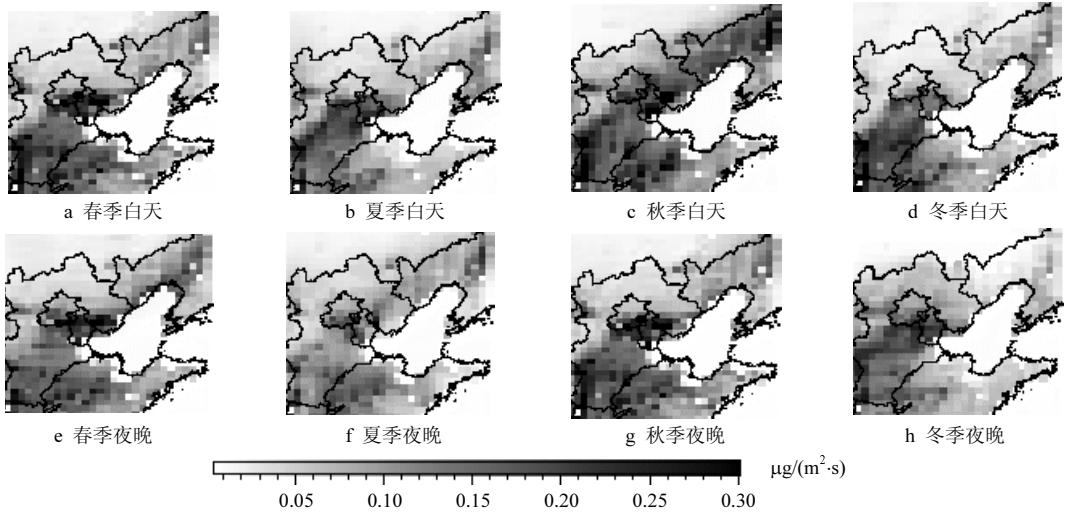


图 7 环渤海地区 NO₂ 四季昼夜干沉降通量密度分布

Fig.7 Dry deposition flux of NO₂ during four seasons day and night in Bohai Rim

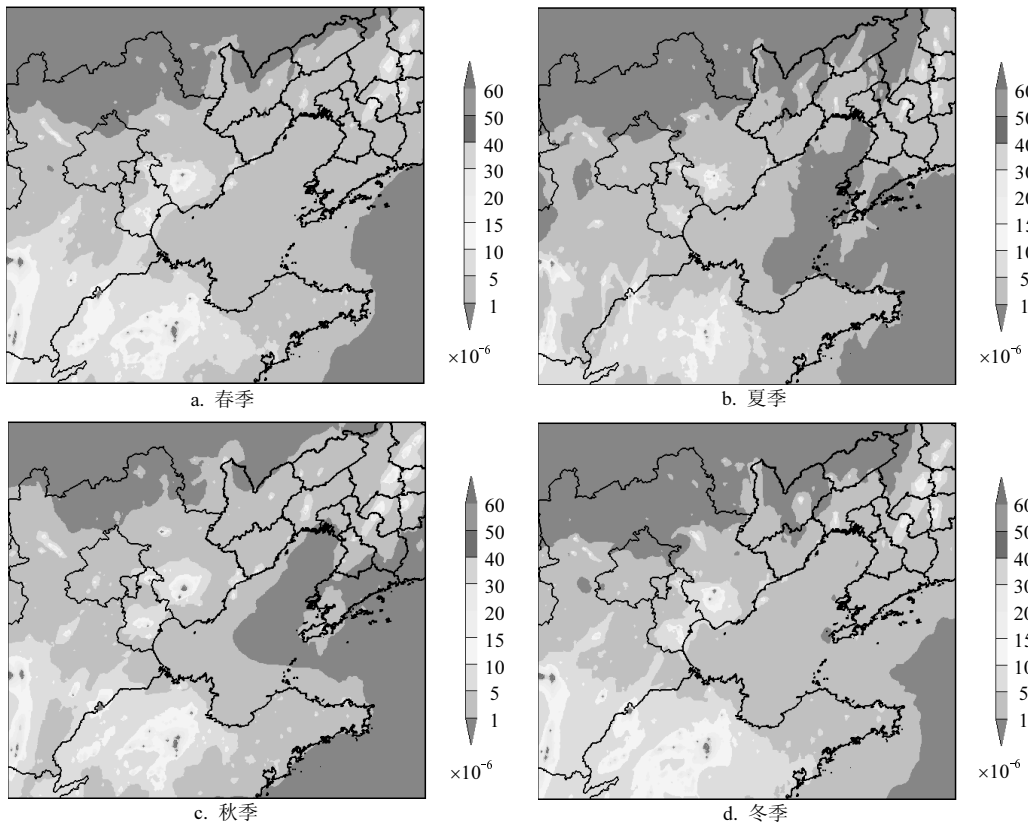


图 8 环渤海地区春夏秋冬四季 SO₂ 平均浓度变化

Fig.8 Average concentration of SO₂ during four seasons in Bohai Rim

从总体季节分布来看,春秋季 NO₂ 的干沉降通量较大,平均为 0.2~0.3 $\mu\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{s})$ 之间,夏冬季相

对较低,平均为 0.2 $\mu\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{s})$ 以下.白天大气中的光化学反应剧烈,NO₂ 浓度较高,植被的光合作用

叶面气孔打开,因此 NO_2 的干沉降通量密度一般高于夜间.

2.3 环渤海地区 SO_2 和 NO_2 浓度分布模拟分析

2.3.1 环渤海地区 SO_2 浓度时空分布特征 从图 8 中可以看出:环渤海地区 SO_2 平均浓度大致在 5 至 20×10^{-6} 之间,高值区主要出现在河北南部、山东西北部以及辽宁中部的部分地区,其值可达 60×10^{-6} 左右.夏季环渤海个别地区 SO_2 浓度较高,大部分地区浓度较低,春、秋、冬 3 季大部

分地区 SO_2 平均浓度较高.这是由于北方冬季为采暖期,该地区春、秋、冬 3 季污染物排放量明显大于夏季所致;且该地区风向随季节性变化明显,冬、春季受盛行西北风,该地区的上游为空气质量较差的内蒙古地区;而夏、秋季以西南风为主,其上游地区为空气质量较好的海洋.环渤海地区春、秋季 SO_2 较强的干沉降作用,及夏、冬季 SO_2 较弱的干沉降作用也是非常重要的因素.因此,夏季的空气污染程度要小于春、秋、冬 3 季.

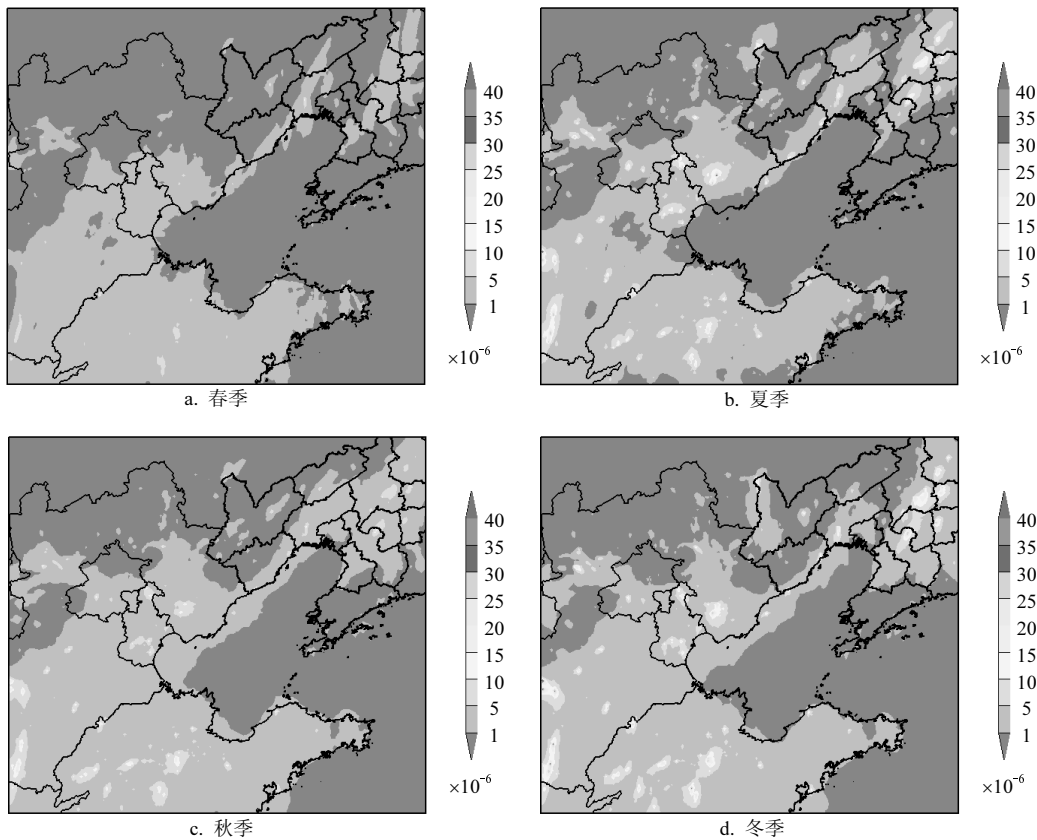


图 9 环渤海地区 NO_2 春夏秋冬四季浓度变化

Fig.9 Average concentration of NO_2 during four seasons in Bohai Rim

2.3.2 环渤海地区 NO_2 浓度时空分布特征 NO_2 一般由城市排放的 NO 等前体物经光化学反应后生成,且具有较强的反应活性,因此很难参与长距离的输送,因而其干沉降通量密度的大小和分布与排放源的分布,干、湿沉降关系密切.从图 9 中可以看出:环渤海地区 NO_2 平均浓度大致在 $(20\sim 60) \times 10^{-6}$ 之间,高值区主要出现在辽宁中部、

河北东南部、以及山东西部地区,其值可达 40×10^{-6} 左右.夏季个别地区 NO_2 浓度略高,大部分地区 NO_2 浓度略低,而冬季环渤海地区 NO_2 浓度略高.这与秋、冬季辐射条件减弱,减少了 NO_2 光化学反应消耗的过程有关;同时冬季边界层较稳定,污染物可较长时间累积也与环渤海地区 NO_2 平均浓度的季节分布有关;并且环渤海地区

春、秋季 NO₂ 较强的干沉降作用,及夏、冬季 SO₂ 较弱的干沉降作用也是不可忽略的因素。

3 结论

3.1 大气稳定度、太阳辐射、季节、下垫面类型为干沉降的主要敏感因子.其中大气稳定度为空气动力学阻力 R_a 的主要敏感因子.随着稳定度的逐渐增加,干沉降速率逐渐减小.空气动力学阻力 R_a 和片流层阻力 R_b 对干沉降速率影响较弱,而表面阻力 R_c 是影响干沉降速率变化的主要因子.一般而言,随着太阳辐射强度的增加,表面阻力 R_c 逐渐减小,干沉降速率逐渐增加。

3.2 季节变化对气体的干沉降速率有较明显的影响.SO₂ 春、夏、晚秋 3 季的干沉降速率大致相同,早秋出现极小值,而冬季的干沉降速率有明显的上升;NO₂ 春、夏、早秋、晚秋四季的干沉降速率大致相同,但存在波动性变化,而冬季的干沉降速率有明显的下降.气体的水溶性和下垫面植被覆盖情况是决定气体干沉降季节变化的重要因素.气体干沉降速率随下垫面类型的变化而变化.SO₂ 的 V_d 在水面上最大,在沙漠上最小,在植物性沉积面上的 V_d 普遍大于非植物性沉积面上的 V_d ;NO₂ 在水面上的 V_d 明显小于陆地上的 V_d ,在农田上的 V_d 较大.一般而言,气体与沉积表面的溶湿性越强,其 V_d 越大。

3.3 SO₂ 干沉降通量密度高值区距污染物排放源区较近.环渤海大部分地区 SO₂ 干沉降通量密度均在 0.05~0.25 $\mu\text{g}/(\text{m}^2\cdot\text{s})$ 之间,高值区主要分布在河北南部、山东西北部以及辽宁中部的部分地区.从总体季节分布来看,环渤海地区四季干沉降通量密度从大到小依次为春季、夏季、冬季和秋季,其中夏季白天干沉降通量密度大于夜间,春、秋、冬三季夜间干沉降通量密度大于白天.且在渤海海面上也有一定的 SO₂ 干沉降通量。

3.4 NO₂ 干沉降通量密度的高值区与排放源的分布、太阳辐射和气温关系密切.环渤海大部分地区 NO₂ 干沉降通量密度均为 0.05~0.30 $\mu\text{g}/(\text{m}^2\cdot\text{s})$ 之间,高值区主要分布在河北南部、山东西北部以及辽宁中部的部分地区.从总体季节分布来看,冬夏季 NO₂ 的干沉降通量较大,平均为

0.2~0.3 $\mu\text{g}/(\text{m}^2\cdot\text{s})$, 春秋季相对较低,平均在 0.2 $\mu\text{g}/(\text{m}^2\cdot\text{s})$ 以下.白天 NO₂ 干沉降通量密度一般高于夜间,但由于冬夜采暖高峰期的处在,使得冬季夜间环渤海地区干沉降通量密度出现异常的高值。

3.5 经过干、湿沉降、源排放及输送的作用,环渤海地区 SO₂ 平均浓度大致在 $(5\sim 20)\times 10^{-6}$ 之间,高值区主要出现在河北南部、山东西北部以及辽宁中部的部分地区,其值可达 60×10^{-6} 左右.夏季个别地区浓度较高,大部分地区浓度较低,春、秋、冬三季大部分地区浓度较高.NO₂ 平均浓度大致为 $(20\sim 60)\times 10^{-6}$,高值区主要出现在辽宁中部、河北东南部、以及山东西北部地区,其值可达 40×10^{-6} 左右.夏季大部分地区浓度略低,而冬季大部分地区浓度略高。

参考文献:

- [1] Brook J, Zhang L, Di-Giovanni F, et al. Description and evaluation of a model of deposition velocities for routine estimates of air pollutant dry deposition over North America. Part I: model development [J]. Atmospheric Environment, 1999, 33(30):5037-5051.
- [2] 杨新兴,高庆先,姜振远,等.我国硫输送和沉降量规律的研究 [J]. 环境科学研究, 1998,11(4):27-34.
- [3] 高会旺,黄美元,安峻岭.污染源、干沉降和气相化学影响硫沉降的数值研究 [J]. 大气科学, 1998,22(1):25-31.
- [4] Bobbink R, Hornung M, Roelofs J. The effects of airborne nitrogen pollutants on species diversity in natural and semi natural European vegetation [J]. Ecology, 1998,86:717-738.
- [5] Fenn M, Baron J, Allen E, et al. Ecological effects of nitrogen deposition in the western United States [J]. Bio. Science, 2003, 53:404-420.
- [6] Michopoulos P, Baloutsos G, Economou A, et al. Effects of nitrogen deposition on nitrogen cycling in an Aleppo pine stand in Athens Greece [J]. Science Total Environ., 2004,323:211-218.
- [7] 胡正义,王体健,曹志洪,等.大气干沉降向农田生态系统输入硫素通量研究 [J]. 土壤学报, 2001,38(3):357-364.
- [8] 肖辉林.大气氮沉降对森林土壤酸化的影响 [J]. 林业科学, 2001,37(4):111-116.
- [9] 张金良,于志刚,张 经.大气的干湿沉降及其对海洋生态系统的影响 [J]. 海洋环境科学, 1999,18(1):70-76.
- [10] 杨龙元,秦伯强,胡维平,等.太湖大气氮、磷营养元素干湿沉降率研究 [J]. 海洋与湖沼, 2007,38(2):104-110.
- [11] 徐国良,莫江明,周国逸,等.土壤动物与 N 素循环及对 N 沉降的

- 响应 [J]. 生态学报, 2003,23(11):2453-2463.
- [12] Sheih C, Wesely M, Hicks B. Estimated dry deposition velocities of sulfur over the Eastern United States and surrounding regions [J]. *Atmos. Environ.*, 1979,13:1361-1368.
- [13] Clarke J, Edgerton E, Martin B. Dry deposition calculations for the Clean Air Status and Trends Network [J]. *Atmos. Environ.*, 1997,31:3667-3678.
- [14] 洪钟祥,周乐义,沈剑青,等.气溶胶粒子干沉降速率的测量 [J]. *大气科学*, 1987,11(2):138-144.
- [15] 范思泓,洪钟祥,周乐义,等.二氧化硫干沉降的测量 [J]. *大气科学*. 1993,17(1):106-111.
- [16] 毛节泰,胡新章.我国南昌地区若干污染物干沉降速度的测量 [J]. *气象科技*, 1996,(2):36-42.
- [17] 黎云,孙庆瑞.氮的干沉降速率测定 [J]. *环境化学*, 1996,15(5):399-403.
- [18] 张仁健,浦一芬,徐永福.青岛大气气溶胶的浓度分布和干沉降的观测研究 [J]. *气候与环境研究*, 2004,9(2):390-395.
- [19] Luecken D, Berkowitz C, Easter R. Use of a three-dimensional cloud-chemistry model to study the transatlantic transport of soluble sulfur species [J]. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 1991,96(D12):22477-22490.
- [20] Harley R, Russell A, McRae G, et al. Photochemical modeling of the Southern California air quality study [J]. *Environ. Sci. Technol.*, 1993,27(2):378-388.
- [21] Kain J. Convective parameterization for mesoscale models: The Kain-Fritsch scheme. The representation of cumulus convection in numerical models [J]. *Meteor. Monogr.*, 1993,46: 165-170.
- [22] Gao W, Wesely M. Numerical modeling of the turbulent fluxes of chemically reactive trace gases in the atmospheric boundary layer [J]. *Journal of Applied Meteorology*, 1994,33(7): 835-847.
- [23] Ganzeveld L, Lelieveld J. Dry deposition parameterization in a chemistry general circulation model and its influence on the distribution of reactive trace gases [J]. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 1995,100(D10):20999-21012.
- [24] Gao W, Wesely M. Modeling gaseous dry deposition over regional scales with satellite observations—I. Model development [J]. *Atmospheric Environment*, 1995,29(6):727-737.
- [25] Ganzeveld L, Lelieveld J, Roelofs G. A dry deposition parameterization for sulfur oxides in a chemistry and general circulation model [J]. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 1997,103(D5):5679-5694.
- [26] Loubet B, Cellier P, Milford C, et al. A coupled dispersion and exchange model for short-range dry deposition of atmospheric ammonia [J]. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 2006,132(618):1733-1763.
- [27] Li J, Wang Z F, Akimoto H, et al. Modeling study of ozone seasonal cycle in lower troposphere over east Asia [J]. *Journal of Geophysical Research- Atmospheres*, 2007,112(D22):D22S25.
- [28] Wesely M. Parameterization of surface resistances to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models [J]. *Atmos. Environ.*, 1989,23(6):1293-1304.
- [29] 石春娥,王水,黄美元,等.用MM5模式和阻力模型计算硫化物的干沉降速度 [J]. *中国科学技术大学学报*, 2003,33(6):692-700.
- [30] 杨浩明,王体健,程炜.华东典型地区大气硫沉降通量的观测和模拟研究 [J]. *气象科学*, 2005,25(6):560-568.
- [31] 王体健,张艳,杨浩明.利用次网格技术模拟华东地区大气硫氮沉降 [J]. *高原气象*. 2006,25(5):870-876.
- [32] 王自发,谢付莹,王喜全,等.嵌套网格空气质量预报模式系统 (NAQPMS)的发展与应用综述 [J]. *大气科学*, 2006,30(5):778-790.
- [33] Zhang Q, Streets D, Carmichael G, et al. Asian emissions in 2006 for the NASA INTEX-B mission [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2009,9:5151-5153.
- [34] Louis J. A parametric model of vertical eddy fluxes in the atmosphere [J]. *Vertical Eddy Fluxes in the Atmosphere*, 1979, 17:187-202.
- [35] 蒋维楣,孙鉴汀,曹文俊,等.空气污染气象学教程 [M]. 北京:气象出版社, 2004:72-95.
- [36] 张艳,王体健,胡正义,等.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 [J]. *气候与环境研究*, 2004,9(4):591-604.

作者简介: 苏航(1984-),男,辽宁沈阳人,博士,主要从事大气物理与大气环境方向研究.发表论文4篇.