

一次沙尘暴过程对大气痕量成分浓度影响的模拟研究^{*}

刘红年 蒋维楣

南京大学大气科学系, 南京 210093

摘要 利用一个包含地表起尘机制的尘粒表面非均相化学模式, 与区域气候-大气化学模式系统连接, 研究了沙尘气溶胶表面的非均相过程对城市大气中一些重要微量成分浓度的影响. 结果表明, 非均相过程使得二氧化硫, 氮氧化物和臭氧的浓度降低, 硫酸盐浓度增加. 沙尘暴对这些物种浓度的影响与沙尘浓度有关.

关键词 沙尘气溶胶 沙尘暴过程 非均相化学 大气痕量成分浓度

由于沙尘暴对大气环境质量以及交通运输等部门产生严重影响, 近 50 年来, 由于大气环流等气候方面的影响, 我国沙尘暴频数总体呈波动下降趋势, 但自 20 世纪 90 年代后期开始回升, 2000 ~ 2002 年为近 50 年之最, 年发生次数减少, 但强度增加很大. 沙尘暴已成为我国以及全世界重要环境问题之一. 目前沙尘暴课题研究的内容主要涉及沙尘暴的发生源地, 沙尘传输路径, 沙尘沉降地区及影响范围, 沙尘粒子的物理和化学性质, 海上观测及海底沉降, 高空探测技术以及沙尘暴对大气环境和气候变化的影响等问题. 然而近年来, 关于沙尘对环境影响的另一方面, 即通过沙尘粒子表面发生的非均相化学反应对大气中一些重要微量成分的影响, 逐渐引起了许多学者的关注, 非均相氧化过程是大气二氧化硫氧化的重要途径之一, 其原因是由于 SO_2 能与吸附在颗粒物表面上的 OH 自由基反应, 最后生成硫酸盐, 其反应速度与颗粒物的组成有关. 国内外一些学者对二氧化硫的非均相化学过程进行了观测和模拟研究^{1, 2}, 王自发通过非均相化学模型研究了影响二氧化硫在黄沙粒子表面氧化

速率的因子¹⁾, 此外, 沙尘表面的非均相过程还会影响大气氮氧化物的氧化和对流层臭氧的浓度. Yang^[3] 认为东亚地区春季一次尘暴可使二氧化硫浓度减少 10% ~ 53%, 氮氧化物浓度减少 16% ~ 100%, H_xO_y 减少 11% ~ 59%, 臭氧减少 11% ~ 40%.

本文建立一个包含地表起尘, 输送, 干湿沉积和非均相过程的尘粒表面非均相化学模式, 并将之与一个在线耦合的区域气候-大气化学模式系统连接, 尝试研究沙尘气溶胶表面的非均相过程对大气中一些重要微量成分浓度的影响.

1 模式与计算条件

1.1 区域气候-大气化学模拟系统

本文中的区域气候模式是中国科学院大气物理研究所东亚中心在 MM5v2 基础上发展起来的新版本 RIEMS1.0 模式 (regional integrated environmental model system). 化学模式是一个以 CBM4 为气相化学反应机制的包含输送, 扩散, 气相化学反应, 液相化学反应, 干湿清除过程的对流层化学输送模

2003-09-25 收稿, 2004-01-07 收修改稿

^{*} 国家重点基础研究发展规划(G1999043400)和国家自然科学基金(批准号: 40205016)资助项目

E-mail: liuhn@nj. edu. cn

1) 王自发, 我国和东亚地区硫化物与黄沙输送研究. 中国科学院大气物理研究所博士论文, 1997

式^[4], 区域气候模式与化学模式采用在线耦合的方法组成一个区域气候-大气化学模拟系统¹⁾. 模式分辨率 60 km.

1.2 非均相化学模式

沙尘输送方程如下:

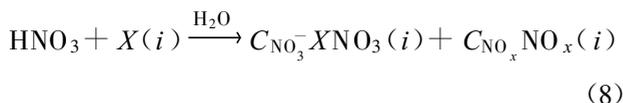
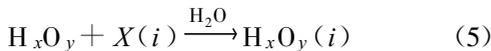
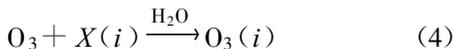
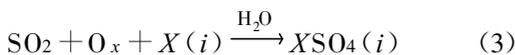
$$\frac{\partial C}{\partial t} = -\Delta \cdot (\mathbf{v}C) + \Delta \cdot (K_e \Delta C) + E + \left(\frac{\partial C}{\partial t} \right)_{\text{wet}} + \left(\frac{\partial C}{\partial t} \right)_{\text{dry}}, \quad (1)$$

这里 C 是沙尘浓度, \mathbf{v} 是格点上三维风速矢量, K_e 是用于次网格湍流参数化的扩散系数, E 是起沙通量, $\left(\frac{\partial C}{\partial t} \right)_{\text{wet}}$ 和 $\left(\frac{\partial C}{\partial t} \right)_{\text{dry}}$ 分别是由于降水和干沉降造成的沙尘浓度变化率. 干沉降模式采用阻力模式^[5], 湿清除过程的清除系数函数为 $\Lambda = 10.8 R^{0.16} / h$, 其中 h 为云厚或模式的层厚, R 为降水率. 模式中把降水分为对流性降水和非对流性降水, 清除系数为

$$\Lambda = (1 - a_p) \Lambda(R_n) + a_p \Lambda(R_n + R_c / a_p) \quad (2)$$

其中, a_p 为降水中对流性降水的比例, R_n 和 R_c 分别为非对流性降水和对流性降水率.

本文采用的是 Gillette^[6] 的起沙模型. 该机制认为当地面摩擦速度超过临界摩擦速度时, 气溶胶被吹进大气. 模式中尘粒表面非均相化学反应方程式如下:



O_x 代表不可溶氧化物, 如 O_3 , OH , H_2O_2 . $X(i)$ 代表在 i 个气溶胶尺度段气溶胶, $\text{XSO}_4(i)$ 代表在 i 个气溶胶尺度段的硫酸盐. (4)和(5)是 O_3 , H_xO_y ($\text{OH} + \text{HO}_2 + \text{H}_2\text{O}_2$) 被湿气溶胶粒子表面的吸收. $\text{XNO}_3(i)$ 代表在粒子表面形成的硝酸盐. 假设气体向粒子表面的扩散吸附为有限吸附, 采用 Heikes 等^[7] 的方法计算有限吸附系数 K_{pj} .

为了考虑粒子表面的非均相过程, 需要给出粒子的谱分布. 本文中取为对数谱分布^[8]:

$$\frac{dn}{d\log r} = \frac{n_0}{\sqrt{2\pi} \log \sigma} \exp \left[-\frac{(\log r / \bar{r})^2}{2(\log \sigma)^2} \right], \quad (9)$$

其中 n 为 $\log r \sim \log r + d \log r$ 尺度段间的粒子数浓度, n_0 为粒子的数浓度, r 为半径, σ 为半径的标准偏差, \bar{r} 为中值半径.

1.3 计算条件

利用 1998 年 4 月的 NCEP 资料为 RIEMS 模式提供初始条件和实时的侧边界条件, 本文进行了两个算例的模拟. 第一个算例作为对比个例不考虑非均相过程, 第二个算例考虑非均相过程. 两组算例计算结果相减即可视为非均相过程的作用.

2 模拟结果

图 1 为 1998 年 4 月 15 日 ~ 17 日不同时刻模拟的沙尘分布图. 这次沙尘暴主要起源于蒙古国的南部地区和我国内蒙边境地区, 随西北气流向东南方向输送, 15 日 14 时沙尘东端到达山西地区, 沙尘主要出现在我国的内蒙古、河套地区. 16 日 02 时沙尘继续向东移动, 东端已移到河北和北京, 沙尘中心浓度逐渐降低, 沙尘主要分布在甘肃、河套、山西、河北、河南等地区. 16 日 14 时沙尘继续向东南方向移动, 东端已到达山东地区, 南端已到达长江以南地区. 沙尘主要分布在山西、河北、湖北、安徽、江苏、山东等地区. 沙尘中心移到了湖北和河南地区, 沙尘强度逐渐降低. 17 日 02 时模拟的沙尘中心已移到了江西、江苏和浙江地区.

1) 刘红年. 气溶胶大气化学过程及其气候效应若干问题的研究. 南京大学大气科学系博士论文, 2002
 ©1994-2016 China Academic Journal Electronic Publishing House. All rights reserved. http://www.cnki.net

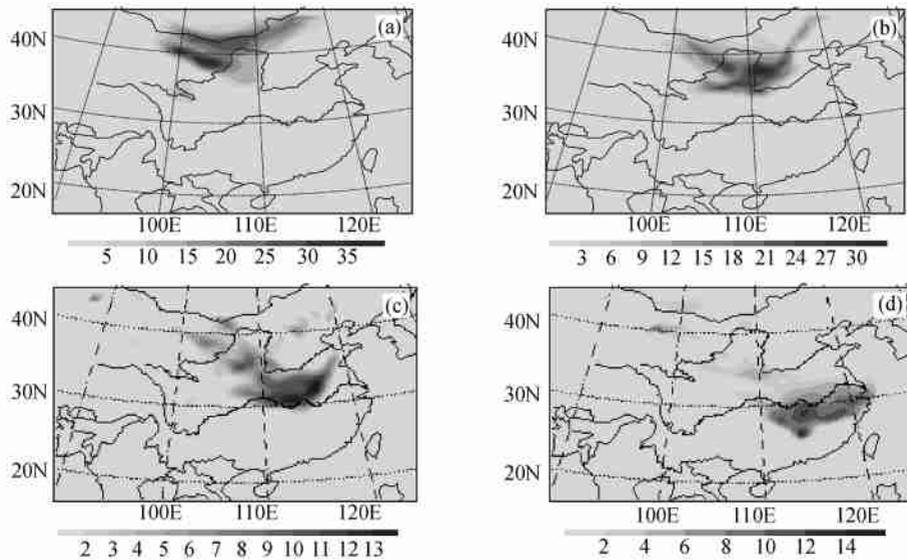


图1 地面沙尘浓度分布(单位: $\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$)

(a) 15日14时 (b) 16日02时 (c) 16日14时 (d) 17日02时

模拟的4月15日~19日的沙尘输送过程与观测的沙尘输送过程基本符合. 观测表明⁹, 1998年4月15~19日爆发的沙尘暴波及了长江以北的大部分地区, 内蒙西部地区观测的TSP最高达 $69\text{ mg}/\text{m}^3$, 是国家三级环境质量标准日均值的138倍, 部分地区能见度只有300 m, 长江以南地区也受到了影响, 4月16日杭州出现黄土飞扬的情景. 这次沙尘暴的爆发是由北方强气旋活动引起的, 在16日, 内蒙和黄河中游的大片地区出现强风天气¹⁾.

图2是北京、武汉和南京地区模拟的1998年4月份地面沙尘浓度和TOMS卫星观测的气溶胶指数变化, 虽然气溶胶指数不能与模拟结果进行定量的比较, 但是可以从气溶胶指数的变化上进行定性检验模拟结果. 由图可见, 北京、武汉和南京地区在4月16日前后都出现了沙尘浓度的峰值, 沙尘浓度最大值达到分别达到了1.3, 18和 $8\text{ mg}/\text{m}^3$. TOMS卫星遥感资料显示在1998年4月16日, 北京地区出现了沙尘云团, 在4月份的卫星观测的气溶胶指数图中, 在16日前后都出现了高值, 这与模拟的沙尘浓度能较好的吻合.

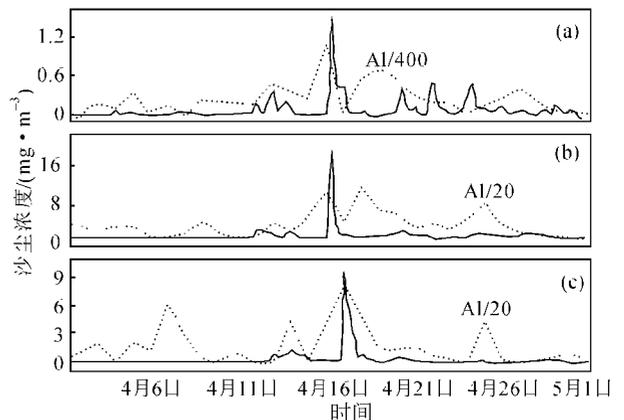


图2 地面沙尘浓度变化(mg/m^3)和气溶胶指数变化

(a) 北京; (b) 武汉; (c) 南京

图3是两个算例中北京地区地面微量成分浓度之差, 从图中可以看出尘粒气溶胶表面的非均相过程对许多重要物种的浓度都能产生影响. 各物种浓度的变化和沙尘浓度变化有非常好的对应关系, 在16日沙尘暴到达时, SO_2 , NO_x , OH自由基和 O_3 有明显的浓度下降趋势, 而硫酸盐浓度略有上升. 其中对 SO_2 , NO_x 和硫酸盐的影响最为明显, SO_2 , NO_x 在16日体积分数减少约 4×10^{-9} , 硫酸盐浓度

1) 见1998年4月15~16日天气图

增加约 $2\mu\text{g}/\text{m}^3$, 通过反应(3), 沙尘暴在使 SO_2 浓度减少的同时使硫酸盐浓度上升. 沙尘暴既可以通过反应(4)使 O_3 浓度减少, 同时又通过非均相反应减少了 O_3 前体物 NO_x 的浓度, 因此沙尘暴对 O_3 浓度的影响小于对 SO_2 的影响. O_3 浓度在16日减少约 5×10^{-9} . OH 自由基为非常活泼的中间物种, 模式采用准稳态近似法求解. OH 自由基和 O_3 及 NO_x 等物种之间存在着复杂的非线性关系, 总的说来, O_x 浓度减少使 OH 浓度减少, 而 NO_x 浓度减少将使 OH 浓度增加, 因此自由基浓度变化较小, 只有 10^{-15} .

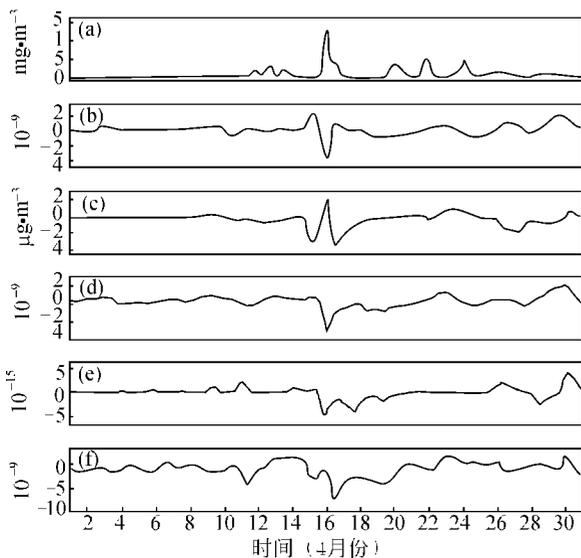


图3 沙尘暴对北京4月份地面微量成分浓度的影响 (a) 沙尘; (b) SO_2 ; (c) 硫酸盐; (d) NO_x ; (e) OH; (f) O_3

图4是沙尘暴对武汉地面微量成分浓度的影响, 由图可见, 污染物浓度变化与北京类似, 非均相过程使得二氧化硫, 臭氧和 NO_x 的浓度减小, 硫酸盐浓度增加. 非均相过程对于二氧化硫浓度有两方面的作用, 一是通过界面上的化学反应使二氧化硫浓度减少, 另一方面非均相过程可使 OH 自由基和臭氧浓度减少, 从而使二氧化硫的氧化过程减弱, 即减小二氧化硫的损失速度. 总的来讲, 前一种作用占主导地位, 因此非均相过程使二氧化硫的浓度降低, 向硫酸盐的转化率增加, 导致硫酸盐浓度增加.

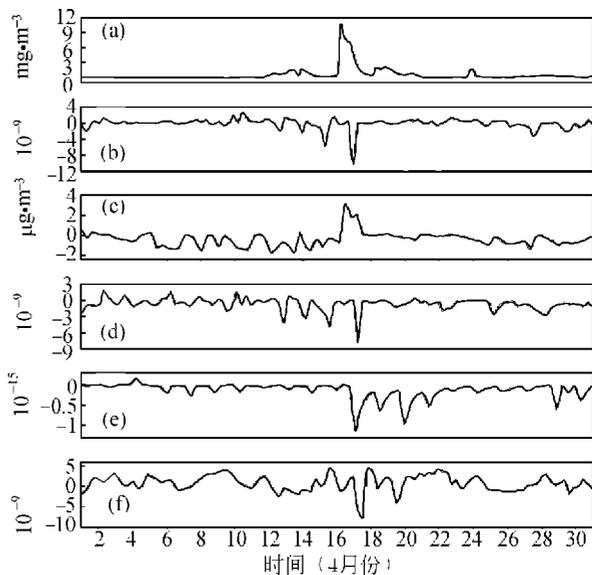


图4 沙尘暴对武汉4月份地面微量成分浓度的影响 (a) 沙尘; (b) SO_2 ; (c) 硫酸盐; (d) NO_x ; (e) OH; (f) O_3

图5是沙尘暴对南京地面微量成分浓度的影响, 在沙尘暴到达时, SO_2 , OH 自由基, O_3 和 NO_x 的浓度减小, 硫酸盐浓度增加. 但南京地区模拟得到的沙尘浓度达 $11\text{mg}\cdot\text{m}^{-3}$, 高于北京和武汉, 微量成分浓度变化也比北京和武汉大, 其中 SO_2 浓度减少达 11×10^9 , NO_x 浓度减少达 8×10^9 , 硫酸

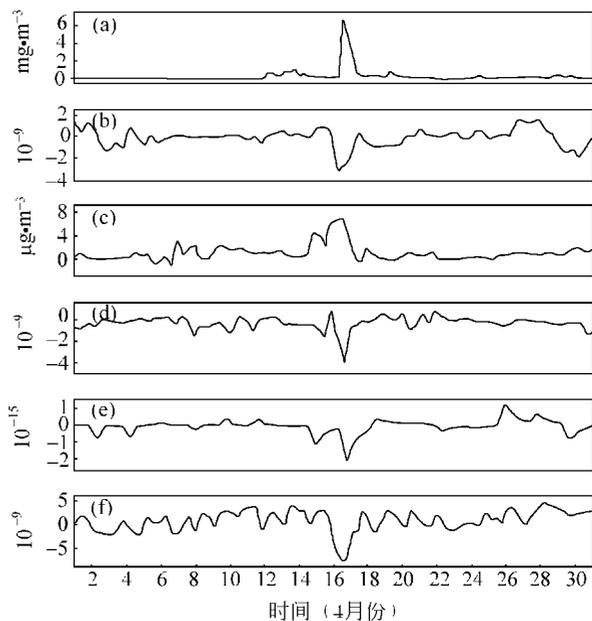


图5 沙尘暴对南京4月份地面微量成分浓度的影响 (a) 沙尘; (b) SO_2 ; (c) 硫酸盐; (d) NO_x ; (e) OH; (f) O_3

盐浓度的增加也大于北京, 臭氧浓度变化与武汉类似. 但南京的物种浓度变化滞后与武汉和北京. 以上分析表明, 非均相过程对微量成分浓度的影响与沙尘浓度关系密切, 对 SO_2 和 NO_x , 硫酸盐的影响超过了对 OH 自由基和臭氧的影响. 从图 3~5 中还可以看出, 在沙尘暴到达之前和过去之后, 各微量成分浓度都有变化, 这是由于在模式中同时考虑了本底气溶胶的非均相化学过程. 另外, 由于区域气候模式与化学模式采用的是在线耦合的方式, 考虑了气溶胶和气候之间的双向反馈作用, 这种双向反馈作用使得沙尘暴的非均相过程影响了大气痕量成分的浓度, 而痕量成分如硫酸盐浓度的变化又对气候产生影响, 从而反过来又影响大气痕量成分的浓度. 这种复杂的非线性作用使得大气痕量成分的浓度变化和沙尘的浓度变化并不呈线形关系.

3 结论

通过以上分析, 主要得到以下一些结论:

(1) 模式比较准确地模拟了 1998 年 4 月的一次强沙尘暴的爆发和输送过程, 一次北方干旱半干旱地区爆发的强沙尘暴能影响到长江以南的许多地区, 沙尘暴所过之处, 沙尘浓度急剧上升, 严重恶化当地大气环境质量.

(2) 尘粒气溶胶表面的非均相过程对许多重要物种的浓度都能产生影响. 各物种浓度的变化和沙

尘浓度变化有非常好的对应关系, 沙尘暴到达时, SO_2 , NO_x , OH 自由基和 O_3 浓度有明显的下降趋势, 而硫酸盐浓度则为增加.

(3) 非均相过程对微量成分浓度的影响与沙尘浓度关系密切, 对 SO_2 和 NO_x , 硫酸盐的影响超过了对 OH 自由基和臭氧的影响.

参 考 文 献

- 1 Seevering H, et al. Heterogeneous sulfur conversion in sea-salt aerosol particle: The role of aerosol water content and size distribution. *Atmos. Environ.* 1991, 25: 1479
- 2 Nishikawa M, et al. Kosa aerosol as eolian carrier of anthropogenic material. *The Science of the Total Environment*, 1991, 107: 13
- 3 Yang Z, et al. The role of mineral in tropospheric chemistry in east Asia—A model study. *Journal of Applied Meteorology*, 1999, 38: 353
- 4 刘红年, 等. 中国对流层二氧化硫光化学氧化过程的数值研究. *环境科学学报*, 2001, 21(3): 359
- 5 Wesely M L. Parameterization of surface resistances to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models. *Atmos Environ.* 1989, 23: 1293
- 6 Gillette D A, et al. Modeling dust emission caused by wind erosion. *J Geophys Res.* 1988, 93(11): 14234
- 7 Heikes B G, et al. Effects of heterogenous processes on NO_3 , HONO , and HNO_3 chemistry in the troposphere. *Journal of Geophysical Research*, 1983, 88(15): 10883
- 8 牛生杰, 等. 贺兰山地区沙尘气溶胶粒子谱分布的观测研究. *大气科学*, 2001, 25(3): 243
- 9 高庆先, 等. 沙尘暴. 北京: 化学工业出版社, 2002. 3