

城市大气污染源追踪“广义判识”与 Nudging 源同化集成技术途径

徐祥德, 丁国安

(中国气象科学研究院, 北京 100081)

[摘要] 提出了城市大气污染源追踪“广义判识”综合应用平台、模式源同化及其卫星遥感应用等新技术。“广义判识”综合应用平台包括气溶胶源主因子分析方法、气溶胶周期变化谱分析法、城市冠层大气污染变化规律同位相特性分析、追溯远距离空气污染源的合成风场相关矢量法、后向轨迹示踪法和边界层影响足痕分析法;另外,为解决长期以来大气污染模式中排放源不确定性的关键技术难点,采用源同化牛顿逼近 Nudging 技术,获取具有季节、月变化动态变化特征的 SO_2 、 NO_2 区域反演源排放清单。将卫星遥感资料应用在同化模型,探索空气污染预报模式的卫星遥感产品应用技术,卫星遥感—地基观测综合分析平台亦可广泛地应用于城市污染源追踪、城市雾和城市热岛的研究,并提出多圈层水—土—气综合分析方法是一种追踪水污染源的探索性尝试。

[关键词] 广义判识;源同化;污染源追踪;卫星遥感—地基;水—土—气

[中图分类号] X51 [文献标识码] A [文章编号] 1009-1742(2012)10-0010-13

1 概况

20 世纪 30—60 年代,一些工业发达国家,曾先后发生了八起公害事件,其中如骇人听闻的英国伦敦 SO_2 、硫酸盐、气溶胶、烟雾事件死亡人数约 4 000 人^[1]。这些公害事件与城市大气污染密切相关,它们重演着如此情景:工业化城市污染源持续排放大量污染物进入大气,在城市边界层特殊大气动力结构及特殊天气条件背景下,如小风或静风、逆温等异常气象状况致使空气污染物在城市近地面层局地堆积,区域性高浓度大气污染导致人体健康受到严重危害。中国已进入经济和社会快速发展的新时代,亦面临着环境污染问题。地面观测、卫星遥感和数值模拟均显示我国华北、长三角、珠三角地区出现了绵延数百千米的大范围大气污染,跨越多个省市行政边界,已对人体健康、生态系统、局地气候产生严

重影响。其中,华北地区是我国范围最大、跨越省域最多的重污染区,也是全球大气污染严重的区域之一。近年来,我国已采用各方面有效措施,使城市大气环境显著改善,但仍面临十分严峻的环境问题。近年可吸入颗粒物(PM_{10})逐渐成为大多数城市的首要污染物,近期 $\text{PM}_{2.5}$ 又引起人们极大关注。北京已成为国际上大气污染严重的城市之一,据北京地区研究结果表明, $\text{PM}_{2.5}$ 占据了可吸入颗粒物(PM_{10})的 50%~60%,在污染天气条件下这个比例还会上升,最高甚至可到 80%~90%。

城市群边界层大气动力与大气化学过程相互耦合及其影响研究成为城市大气环境研究的重大前沿科学难题。很多大气科学与环境科学著名学者在此交叉领域理论与应用研究方面已做出了重要贡献。例如,1998 年周秀骥主持的长江三角洲大气—生态—环境系统研究项目^[2],21 世纪初唐孝炎主持的

[收稿日期] 2012-06-22

[基金项目] 国家环保部行业专项“大气重污染过程预测预警与量化分级技术研究”(200909008);自然科学基金面上项目“区域大气重污染的预测预警与防治研究”(51038001)

[作者简介] 徐祥德(1942—),男,浙江余姚市人,中国工程院院士,中国气象科学研究院研究员,博士生导师,研究方向为气象科学;
E-mail: cep99@cams.cma.gov.cn

北京地区大气污染细颗粒物成因及其调控机理研究项目^[3],郝吉明主持的我国大气SO₂减排城市空气质量改善理论与关键技术项目等^[4],王文兴、任阵海、冯宗炜等^[5]主持的中国大气酸雨等项目。上述著名专家、学者与其他相关领域科研、专业人员在大气与环境交叉学科方面做出了开拓性的重要贡献。

随着城市化进程加快,城市、城市群边界层结构变得日趋复杂,治理影响因素的目标难以确定,对此国家环保与科技部门正在加大治理力度;然而,由于对大气动力、物理化学过程耦合过程认知的困难,严重影响了治理工程应对效果。城市大气重污染过程中空气穹隆(俗称大锅盖)在某些季节频繁笼罩在城市群上空,使人常常思念“蓝天碧水”这令人神往的城市环境景象。北京空气污染日和清洁日所拍摄的同以中央电视台为背景的城市建筑群照片见图1,从图1可见,当PM_{2.5}处于高值时(2月3日)



(a) 2002-2-3



(b) 2002-2-6

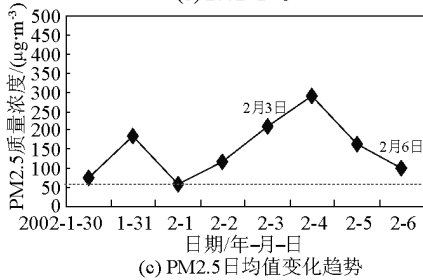


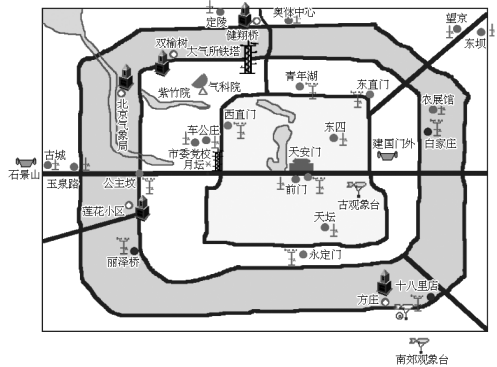
图1 不同PM_{2.5}浓度条件下中央电视台发射塔照片及相应观测的PM_{2.5}日均值

Fig.1 The CCTV tower photos at difference PM_{2.5} concentrations and observed PM_{2.5} daily meanvalue

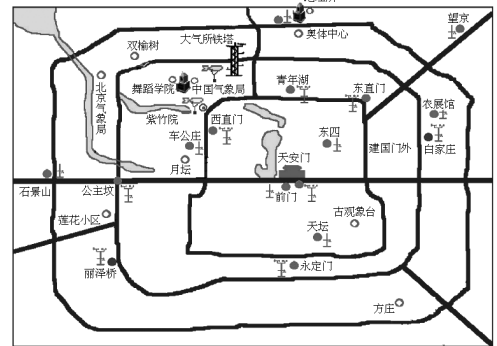
注:拍摄地点为北京舞蹈学院楼顶

中央电视台发射塔与周边建筑群无法辨认,能见度极低,当PM_{2.5}处于低值(2月6日)中央电视台发射塔与建筑群十分清晰,能见度极佳。

本文介绍的“973”城市环境项目将认识城市及周边区域边界层大气污染动力-化学过程三维立体结构作为现场观测试验核心科学问题,以获取城市大气污染异常时空分布试验设计具体目标,2001-2003年在北京城区及近郊大范围区域,协调水、土环境城近郊区的重点监测试验与典型环境采样调研计划,实施了冬夏两季共15期城市边界层大气动力-化学过程三维“立体”综合观测。该试验称为北京城市大气污染现场实验,简称为“BECAPEX”,试验布点及仪器布局见图2、图3^[6,7]。



(a) 冬季



(b) 夏季

图2 BECAPEX科学试验站点分布

Fig.2 Station site layout of BECAPEX

2 大气污染广义判识分析技术平台

为解决跨省域大气污染时空特征与输送影响理论综合分析难题, BECAPEX科学试验资料分析研究采用点-面结合综合判识技术,揭示了城市大气污染空间异常强信号,研究结果发现城市与周边大气

污染过程城市边界层结构、建筑群分布、山谷风、城市热岛的相关特征,提出了城市大气污染边界层结构影响因素综合物理图象(见图4)。发现城市与周边区域大气重污染过程“空气穹窿”三维结构及其周

边源多尺度输送特征。项目综合分析模式计算城市周边源贡献研究亦表明,此类输送除了城市周边区域外,跨省域输送转化亦是重要的城市大气污染影响源;揭示气溶胶颗粒物、臭氧等大气污染过程变化的垂直结构及其相互影响特征,发现了城市群气溶胶区域气候效应,提出了大气边界层与大气污染的耦合效应,解决了城市与周边区域大气污染过程及其成因分析理论难题,为城市与周边大气污染预报模式与控制技术提供科学依据。

2001年2月21—23日大气污染过程样本分析表明,尽管该时段北京处于相当部分工厂、交通车辆控制条件下,但由于当时特殊的大气环境场气象条件的影响,城市大气污染反而异常严重。2001年2月21日为减排日,由于气象条件异常,北京城区与郊区形成弧状类似“空气穹窿”逆温层,SO₂出现峰值,铁塔和激光雷达观测(见图5)亦可揭示出对应大气逆温(200~400 m)构成的大气污染垂直廓线低层出现峰值结构。图4综合描述出城市空气污染穹窿三维结构,如边界层综合结构,且描述了此次过程北京城市与郊区南—北向剖面温度、风速与城市测点上空大气污染垂直结构特征,揭示了空气穹窿成因^[8-11]。

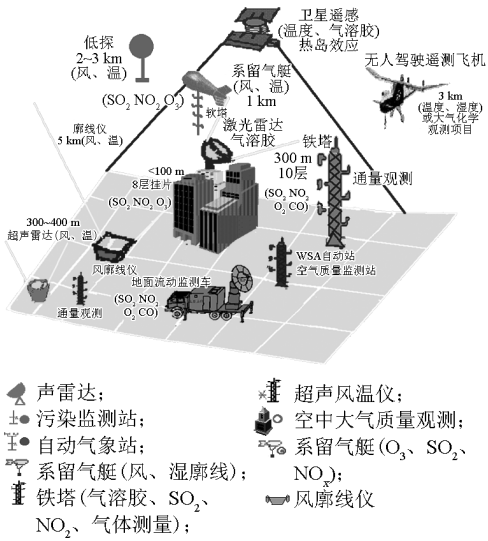


图3 北京城市大气边界层动力学三维立体观测试验设计示意图

Fig. 3 Sketch map of physical-chemical 3-dimensions monitoring experiment of atmosphere boundary layer in Beijing

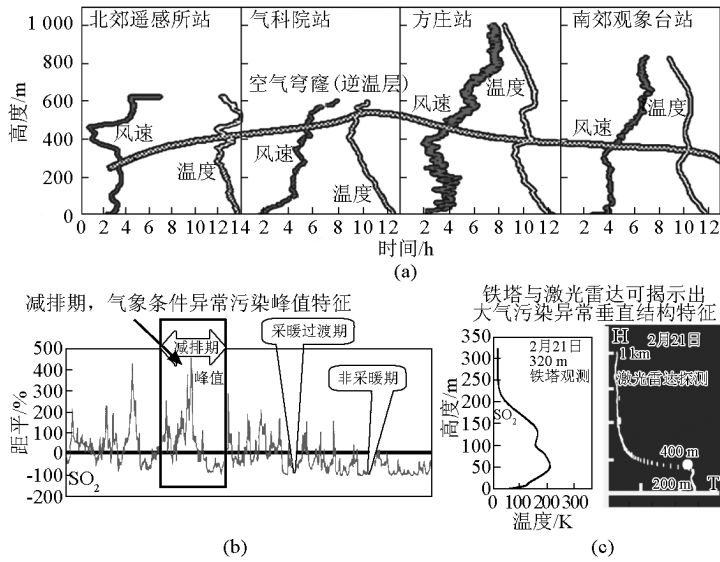


图4 城市空气污染穹窿三维结构

Fig. 4 Three-dimensions construction at city air pollution dome

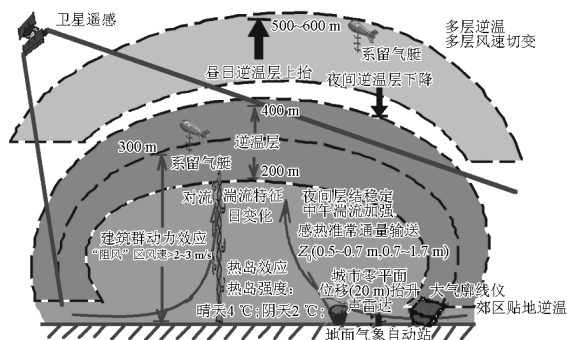


图5 城市空气穹隆动力-化学成份结构特征概念模型

Fig.5 Concept model of physical-chemical construction of city air dome

2.1 城市大气污染动力-统计模型集成分析平台

将气象动力-统计方法应用在大气污染成分及其时空变化诊断分析中,亦是“973”城市环境项目研究成果的特色,通过点-面结合的统计-动力模型,可揭示城市及周边跨省域大气污染物、气溶胶时空变化的区域周期性特征。研究结果揭示了局地与区域大气结构与 SO_2 、 NO_x 气溶胶颗粒物和臭氧等变化的相关性,发现跨省区域城市群大气污染过程呈区域性主周期、“同位相”及其多尺度特征,提出了大气污染动力过程多尺度相关结构理论^[6,7,12],为城市及周边跨省域污染源影响特征域分析提供技术支持。项目为跨省域城市群大气污染观测系统优化设计、污染源“追踪”以及大气污染预警系统提供了重要技术平台与应用理论基础。本文将各类动力-统计方法称为多源信息“广义判识”技术,以表明目前已取得的一些研究成果仅仅是将气象计算工具引入大气环境研究中的初步探索与尝试。

1) 大气污染物主成分判识。城市气溶胶是我国主要的大气污染物,由于成因极其复杂,如何在大量影响因子中筛选判识出主要污染物种,可为城市空气污染治理与评估提供分析依据。

Xu 和 Shi 等^[7]对 2003 年北京城市大气污染 BECAPEX 试验期间白石桥冬、夏季 PM_{10} 、 $\text{PM}_{2.5}$ 粒子浓度时间序列及各气体污染物种浓度样本序列进行经验正交函数(EOF)模型主成分分析,采用“一维空间 EOF”主成分分析模型,分析城市边界层复杂结构背景下气溶胶气、粒态季节变化以及污染物种间关联特征。并采用冬季(2003 年 2 月,672 样本)、夏季(2003 年 8 月,706 样本)紫竹院自动气象站(AWS)不同气象要素(温、湿、动能)构成主成分

分析样本集,进行大气成分与气象要素主因子组合结构分析。根据冬、夏季 PM_{10} 、 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度与各类污染物种成分组合的特征向量时间系数两者的相关性、主成分方差贡献所占的比例因素,分析 PM_{10} 、 $\text{PM}_{2.5}$ 主成分中 4 类气体污染物种成分组合第一特征向量系数矩阵。研究结果表明,北京冬季 PM_{10} 、 $\text{PM}_{2.5}$ 粒子主成分以 SO_2 和 NO_x 影响为主,其次是 O_3 与 CO ,夏季 PM_{10} 、 $\text{PM}_{2.5}$ 粒子主成分则以 CO 、 NO_x 影响为主。这种冬、夏季 PM_{10} 、 $\text{PM}_{2.5}$ 粒子污染物种影响主成分系数“权重”反映了北京城市大气污染源影响过程中气、粒态相关结构的季节特征,并描述出城区排放源影响的季节性差异。

根据 PM_{10} 、 $\text{PM}_{2.5}$ 与气象要素 EOF 分解后时间系数的相关性,选取相关性最佳的主特征向量,列出冬、夏季 PM_{10} 、 $\text{PM}_{2.5}$ 与气象要素场的主因子相关矩阵。结果表明冬季 PM_{10} 、 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度偏高主要与弱动能(小风)、高湿气象条件有关,其贡献率占 58%~59%;夏季 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度主成分分析表明,夏季 $\text{PM}_{2.5}$ 浓度偏高的气象因子组合结构则为低温、高湿和弱动能(小风),其贡献率占 59%。

2) 城市大气污染时空变化过程“相位”特征。城市由于其复杂的下垫面,如何经济而又有实效地设计观测站点,以了解城市建筑群“冠层”中有代表性的大气成分时空分布状况,亦是长期以来研究城市气象条件和城市大气污染相关机理的难点。基于北京城市大气环境试验(BECAPEX)4 个高层楼顶观测点(代表城区不同方位)大气污染时空变化资料分析可发现,城市建筑群上边界(高层建筑楼顶观测点)冬季大气污染物 NO_x 、 SO_2 和 CO 日平均浓度变化具有城市区域尺度大范围“同位相”时间演变特征(见图 6), O_3 浓度亦在不同测点变化趋势一致,但与以上污染物呈“反位相”变化。夏季 BECAPEX 试验阶段大气污染物种(CO 、 SO_2 、 NO_x 和 O_3) 在城区尺度范围不同方位测点(地理所、中国气象局、南郊观象台)亦呈显著的“同位相”特征,即大气污染变化呈城市区域空间尺度“同步性”特征。城市尺度空气污染物同位相分布特征不仅表现在 SO_2 、 NO_x 、 CO 和 O_3 等气体污染物的时空分布方面,气溶胶也同样有此特征。而且 SO_2 、 NO_x 、 CO 和 O_3 以及气溶胶等同一空气污染物种在不同高度日平均浓度和小时平均浓度一样也都有同位相分布特征。需要注意的是北京这样特大城市尺度为 10~20 km 内,各测点空气污染物随时间变化位相差别很小。

对于城市群区域而言,在源排放的一次性污染过程中污染物向下风向输送、扩散、稀释,对于重污染过程,尽管其空气污染物时间变化曲线相似,但峰值出现的时间,在同一气团控制下随输送距离的增加而有滞后。其滞后时间随距离而不同,大约 100 km 为 12 h,但在非同一气团控制下,气团内外空气污染物随时间变化则没有相关性^[12]。

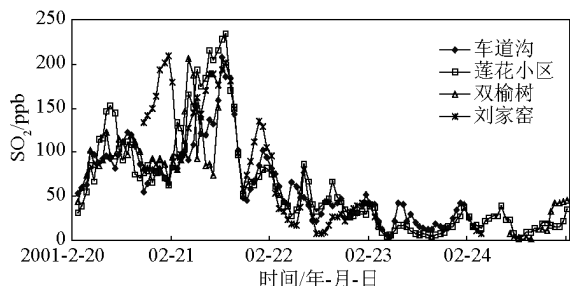


图 6 四个不同测点 SO_2 逐时变化图
(2001 年 2 月 20—24 日)

Fig. 6 Comparison of hourly mean concentrations of SO_2 in 4 stations (during February 20 – 24, 2001)

注: 1ppb = 10^{-9}

大气污染过程与城市边界层热力、动力结构密切相关,因此城市边界层风场、温度场等要素的变化将在不同空间尺度上“控制”与“制约”着城市大气污染的时空变化。选取天安门、奥体中心、公主坟、白家庄、天坛作为北京城市区域代表性自动气象站测点,分析了冬季和夏季 BECAPEX 试验阶段各测点逐时平均风速的变化,可发现冬、夏季北京城区 AWS 不同测点风速要素变化特征均呈显著同位相特征,另外,相应测点气温要素的变化亦存在类似的不同测点同位相变化特征。但必须指出, AWS 记录存在很多短周期更小尺度扰动。若采用时间滑动滤波后,城市尺度动力结构变化同位相特征可能更为显著。上述计算结果揭示了城市边界层大气变化的区域性特征及其湍流尺度及输送、混合效应。

3) 城市大气污染周期变化特征。众所周知,大气运动过程绝大多数情况下是由多种周期运动,即不同谱特征的大气运动叠加而成。那末与其相关的大气中的空气污染物是否也有如此特征呢? 这是一个饶有兴趣的问题。采用统计分析方法来揭示大气污染过程湍流扩散、转化过程的多尺度周期特征。对 2003 年冬、夏季(2 月、8 月) AWS 风、温连续记录与 PM_{10} 时间序列(672, 360 样本)进行了功率谱统计分析。计算时采用对时间序列自相关函数进行傅

里叶变换的间接法来估计功率谱,首先计算序列的自相关函数,最后对得到的平滑功率谱进行显著性检验,确定时间序列的显著周期^[12]。

研究结果表明冬、夏季 PM_{10} 粒子浓度变化均存在数小时短周期,冬季 PM_{10} 前 3 个主周期均为若干天“长周期”,此若干天显著“长周期”特征与气溶胶颗粒物具有 10 天左右衰减周期的规律相吻合,表现了冬季 PM_{10} 远距离大尺度输送特征及其影响效应。而夏季除个别主周期为 12 h 左右外,大部分主周期均呈 2 ~ 3 h 短周期特征。上述现象揭示出冬、夏季大气环流背景下城市局地风场变化周期特征差异,即冬季局地风场大尺度系统周期特征较夏季更为显著,此类大气环流系统演变季节性周期特征对气溶胶 PM_{10} 浓度变化周期亦具有重要影响效应,可能导致冬季大气污染过程 PM_{10} 粒子浓度出现与夏季不同的特有的长周期变化过程,此现象亦揭示了城区气溶胶颗粒物浓度变化过程冬季比夏季具有更长的衰减周期。

2.2 大气污染源追踪识别技术平台

针对城市周边源多尺度输送通道影响问题,采用气象与环境交叉领域相结合的新技术途径,根据城市边界层结构与周边输送流场综合相关分析^[13,14],提出了城市周边污染源与影响域的综合分析技术系统。其中包括跨省域大气污染输送合成相关风矢量追踪法^[12],多尺度滤波 HYSPLIT-4(混合单粒子拉格朗日积分)传输、扩散模式气象模式与轨迹分析模型相结合的计算分析新技术。发展了使用拉格朗日模式研究源-接收点关系的年逐日累计计算方案和跨省市区域化学模式中的源示踪等大气污染影响评估与调控新技术^[15,16]。采用源追踪相关矢新技术途径^[12],计算 2003 年 2 月北京白石桥测点 PM_{10} 浓度实测值与气象风场源追踪合成相关矢量场,发现冬季北京周边 PM_{10} 排放源可追溯到北京南部、河北、山东、山西省及天津等地,其与卫星遥感-地面观测变分订正实况分析结果吻合,该技术可应用于研究大气污染物的跨省域输送通道及其源追踪综合分析。

1) 城市大气污染输送多尺度特征与源轨迹追踪。污染源排放和输送是大气环境研究首要关心的问题,后向轨迹示踪法与 Flexpart 相关矢量等技术均是十分有效的分析工具,通过后向轨迹分析可以追踪空气污染物来向与污染源区。

Xu 和 Zhou^[12] 等采用由 NOAA(ARL) Draxler 等开发的 HYSPLIT-4 传输、扩散模式进行空气质点后

向轨迹分析试验,以跟踪北京地区周边源污染扩散路径。选取冬季白石桥测点 PM_{10} 重污染日(日平均粒子浓度 $\geq 180 \mu g/m^3$),采用滤波分离中尺度系统分析场进行 HYSPLIT-4 传输、扩散模式模拟空气质点后向轨迹(24 h, 300 m),即轨迹簇分析,发现 11 个重污染日空气质点后向轨迹中 8/11 的样本来自北京城区或西南或偏南路径,3/11 的样本为北京

郊区污染源扩散路径。这表明冬季北京城区的大气污染大部分情况可能与城市郊区或周边西南和南部污染源的输送有关。而夏季与冬季不同,模拟分析的空气质点后向轨迹主要来自城市近郊西南路径,部分来自近郊东南或偏北路径。同时还可发现冬季的周边污染源扩散效应比夏季尺度更大,即污染物输送距离更远(见图 7)。

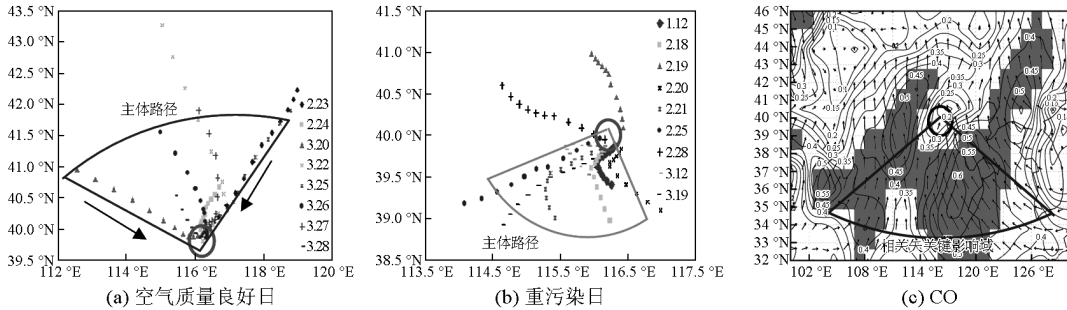


图 7 北京城市 2001 年 1—3 月 PM_{10} 各空气质量良好日(a) 和重污染日(b)(典型样本)空气质点后向轨迹(12 h); 北京南部莲花小区空气污染浓度(CO)与大气低层(925 hPa)气流相关合成矢量场, 2003 年 1 月(c)

Fig. 7 Simulation on backward trajectory of air particle on PM_{10} on fine days(a) and heavy pollution days(b) for 12 h during January - March, 2001; resultant correlation vector fields of CO and 925 hPa wind field in January 2003 at the Lianhua site (c)

注:影阴区为符合信度约束区

结合模式计算,后向轨迹示踪法还可以用于源贡献分析。颜鹏等^[17,18]采用分行业、分季节、高分辨的北京市 SO_2 排放源清单和美国国家环境预报中心(NCEP)气象分析场资料,用 HYSPLIT-4 污染扩散模式,计算了北京 2000 年和 2001 年地面 SO_2 逐日变化,分析了北京当地及周边地区不同类型排放源对北京地面 SO_2 的影响。计算分析表明总体上北京当地排放影响较大,周边源影响大约占 20%,但在一定天气条件下,周边源贡献仍可超过 30%,甚至个别时候超过 40%;对北京市划分的 7 类排放源分别计算其对北京地面 SO_2 的浓度贡献率发现,在北京市区的各类排放源中,占北京市区排放量较少部分(不到 1/3)的工业面源和锅炉面源对北京市区的 SO_2 贡献很大,是北京市 SO_2 污染治理的关键。

2)气象场相关矢判识大气污染输送。在气象研究领域经常用到合成相关矢量法,以了解气象要素与风场(即矢量场)之间的关系。将空气质量数据和风场相结合,从而可以追溯空气污染物的来向。将北京城区白石桥观测点同期时段(2003 年 2 月)的 PM_{10} 、 $PM_{2.5}$ 时间演变序列与美国国家环境预报中心/美国大气研究中心(NCEP/NCAR)低层

(925 hPa)风场(u, v)求合成相关矢量场。有关污染源追踪合成相关矢量数学模型如下:

$$\bar{R}(x, y) = \bar{R}u(x, y)\bar{i} + \bar{R}v(x, y)\bar{j}$$

式中, \bar{R} 为测点 PM_{10} 、 $PM_{2.5}$ 颗粒物浓度与风场 u, v 分量的合成相关矢量; $\bar{R}u$ 为 PM_{10} 、 $PM_{2.5}$ 浓度序列与 u 分量的相关系数场; $\bar{R}v$ 为 v 分量相关系数场。结果表明,冬季北京大气污染过程(白石桥测点) PM_{10} 、 $PM_{2.5}$ 颗粒物的排放源可追溯到北京南部周边地区河北、山东省及天津等地,表现了大气污染物的大尺度输送特征^[12]。

3)大气污染影响足痕分析。近年边界层研究中开始引进足痕分析法,从而反映上风向下垫面对接受点的影响。2003 年 8 月 10—25 日项目组在北京中国科学院大气物理研究所 325 m 铁塔 8 m、100 m、320 m 3 个高度进行了 PM_{10} 和 $PM_{2.5}$ 观测,观测资料表明 100 m 以下气溶胶浓度和风向无任何关系,其主要受本地源的影响,而在 320 m 高度能够明显地看到在西南和东南风向下 PM_{10} 和 $PM_{2.5}$ 出现高浓度。结合足痕分析表明该高度除北京局地源的贡献外,还包括河北省等更远一些地区,如保定、石家庄以及天津、山东等地污染源的影响^[10]。

3 空气污染模式源同化技术平台

多尺度空气质量模式(CMAQ)是美国环保局从20世纪90年代开始发展的第三代空气质量模拟系统Models-3的核心部分。由于该模式在设计思想上的先进性、框架结构上的通用性和灵活性,已成为国内外大气污染研究使用的重要数值模拟工具。然而由于我国排放源的不确定性,长期以来,导致使用该模式空气成分预报值远低于实测值。因此获取客观污染源分布是新一代空气质量预报模式预测能力提高的关键技术环节,也是空气质量模式发展的技术难题与“瓶颈”问题。针对当前国内外空气质量预报模式中排放源不确定性关键技术难题,通过分析研究和现场观测试验资料检验,研发了CMAQ-MOS动力-统计模型与模式源同化“反演”估算源相结合的数值预报系统新技术。通过大量样本分析,源同化有效解决了源清单不确定因素的瓶颈问题,其明显提高了原CMAQ模式预报水平,突破了长期以来大气污染模式中排放源难以确定的关键技术难点^[19,20]。

3.1 CMAQ模式“Nudging”源同化技术

通过CMAQ-AMS模式源同化与非源同化两种方案计算,并分别于2006年全国47个监测站实测值获取各季相关系数(近千个样本)不同方案模式计算误差状况,经对比可知,源同化技术显著优于原CMAQ模式预报水平,且源同化新技术亦可获取全国不同季节“动态反馈源”。该模式可以“反演”亦可应用于源影响评估^[21]。在IBM 21万亿次巨型机上实现了华北五省市与全国的空气质量区域准业务预报(见图8),产品发布全国30个省市。

项目采用2000年David Streets初始源模拟2006年1月、4月、8月、10月各月SO₂、NO₂浓度,模拟值与实测值的相关系数均较低,4个月SO₂、NO₂模拟浓度与实测值的平均相关系数分别为0.23、0.19;除1月、4月SO₂浓度模拟值与实测值的相关系数超过99%置信度临界线外,其他各月的相关系数均低于99%置信度水平,预报效果较差;而采用经过“Nudging”同化修正源时,4个月SO₂、NO₂浓度模拟值与实测值的相关系数均高于99.9%置信度水平,SO₂、NO₂模拟浓度与实测值的平均相关系数分别为0.44、0.49。与初始源相比,SO₂、NO₂浓度的预报效果均得到显著改进,尤其是NO₂浓度的预报效果改善更明显。

2006年4个季节源同化技术模式预报效果检

验结果表明,SO₂、NO₂源同化模型可适用于中国不同地区、不同季节、不同天气过程。比较2006年8月1—25日中国47个重点监测城市敏感试验与控制试验模拟的SO₂、NO₂日平均浓度与观测值的API指数偏差平均值。总体而言,除个别城市外,采用同化修正源模拟的SO₂、NO₂浓度与观测值的API偏差明显低于初始源偏差,而且NO₂浓度的模拟误差减少的尤为显著^[21]。

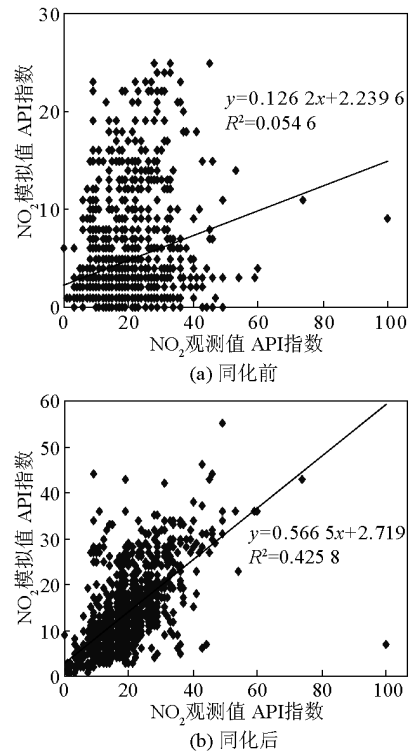


图8 47个城市源同化前后CMAQ模式模拟的NO₂日平均浓度API指数与观测值API指数的相关图

Fig. 8 Comparison of scatter plots of API indexes of forecast and observed data of the daily average concentrations of NO₂ between the nudging and non-nudging for 47 cities

注:2006年8月1—25日

3.2 模式卫星遥感数据同化应用技术

源同化反演模型是以CMAQ模式模拟的污染物浓度与实测值的偏差作为收敛判据的,因此地面空间分辨率较低的观测资料必然会限制源同化反演效果以及NO₂浓度预报水平。由于地面NO_x浓度观测资料有限,因此考虑采用1995年以来卫星观测反演的高分辨率、覆盖范围较大的NO₂对流层柱浓度资料用以弥补地基和飞机观测数据的不足,卫星遥感反演的NO_x柱浓度资料得到了广泛应用。

Martin 等指出,这些卫星遥感反演数据在 NO_x 源反演模型中的应用为改善源排放清单和提高 NO_x 排放源及其化学反应机理的认识提供了可能。研究指出由于臭氧观测仪 (OMI) 二级 NO₂ 柱浓度卫星产品的空间和时间分辨率相对较高,而且经过多种算法订正,适合于 NO_x 排放源的反演。对比分析了华北地区 OMI NO₂ 高分辨率柱浓度卫星资料与地面实测资料的一致性,并将同化反演计算获取的 OMI NO₂ 高分辨率源清单作为 CMAQ - ASM 空气质量模式所需的排放源分布场,进一步检验、分析高分辨率的卫星遥感 NO_x 同化源技术系统的模拟效果,为卫星遥感产品应用于空气质量预报模式新途径提供理论与技术依据,其技术路径框架详见图 9^[22]。

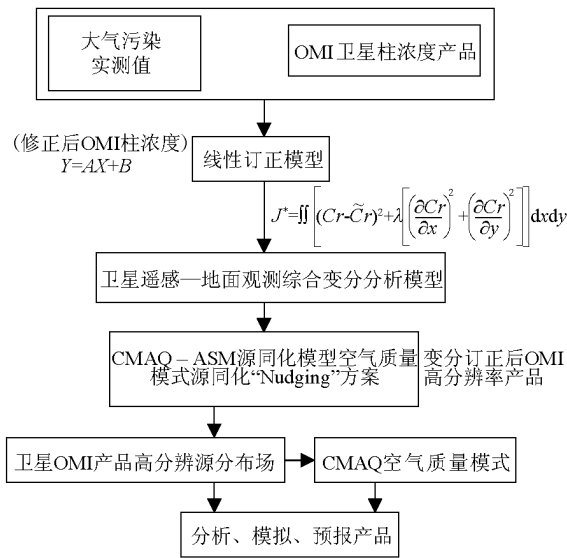


图 9 卫星产品源同化反演模型应用于 CMAQ 模式的工作流程图

Fig. 9 Workflow chart of application of nudging model of satellite data production in CMAQ model

各城市污染状况分布特征分析结果表明,高分辨率 OMI 柱浓度经过地面实测资料变分订正后的 NO₂ 空间分布与实况更为相近,采用高分辨率的 OMI NO₂ 卫星遥感资料同化修正排放源,NO₂ 模拟浓度与实测值较接近,两者的空间分布较一致。天气预报和研究模式 - 多尺度空气质量模式 (WRF-CMAQ) 对于华北地区冬季 NO₂ 趋势和浓度水平预报可取得改善。采用初始排放源时,10 天 5 个测站 (部分测站资料缺测) NO₂ 浓度模拟值与实测值的相关较差,相关系数为 0.06;而采用同化源时,两者相关性较显著,相关系数为 0.63,超过了 99.9% 置

信度水平。

研究表明,采用时空分辨率较高的地面和地基实测资料与 OMI NO₂ 卫星遥感产品实现再分析,将更有助于卫星遥感产品在污染源反演、区域污染调控和治理以及空气质量预报中的应用。

4 卫星遥感—地基综合观测再分析平台

对城市污染气体或气溶胶时空分布及其变化规律的认识一直是令研究人员困惑的难题,尽管卫星定位存在一些困难,但对于描述气溶胶分布和强度,卫星测量是较便利的方法。问题在于如何将高分辨率的卫星遥感和地面观测通过变分技术加以结合,获取再分析的高分辨率地面数据场,从而为城市大气污染研究服务。采用卫星遥感—地面气溶胶观测综合变分分析技术,研究发现污染日来自石家庄等南部区域周边源影响效应显著,呈南北带状分布,为城市大气污染预警系统提供了卫星遥感—地面观测相结合的周边源影响高分辨率分析新技术途径。

4.1 卫星遥感污染源追踪变分再分析

采用 2002 年冬季 Terra 卫星遥感中分辨率成像光谱仪 (MODIS) 气溶胶光学厚度资料结合地面光度计观测,并对比地面 PM₁₀ 粒子浓度资料,综合变分处理获取了气溶胶分布特征,揭示出北京与周边地区 (河北、山东等省) 之间气溶胶南 - 北向带状扩散、输送影响的显著特征。根据上述北京及周边气溶胶南 - 北向“大三角”分布特征,为进一步认识北京城市与周边大尺度远距离输送过程,并揭示大气污染周边扩散“输送”轨迹路径,用相关合成矢量场加以验证:将 2003 年 2 月北京城区白石桥观测点的 PM₁₀、PM_{2.5} 时间演变序列与 NCEP/NCAR 低层 (925 hPa) 风场求相关合成矢量场,发现冬季北京大气污染过程 (白石桥测点) PM₁₀、PM_{2.5} 颗粒物的排放源可追溯到北京南部周边地区河北、山东省及天津等地,表现了大气污染物的大尺度输送特征 (图 10 中黑箭头)。

利用 2003 年 1—2 月 BECAPEX 试验期间 MODIS 测量气溶胶光学厚度,经北京及周边河北、天津等地面粒子浓度实测值 (PM₁₀) 变分订正,获取试验阶段晴空、稳定天气条件多样本气溶胶变分订正合成场 (见图 10、图 11)。发现晴空条件下,北京及周边地区的气溶胶合成分布同样呈河北、山东省及天津等地至北京城区南 - 北向“大三角”气溶胶相关影响域。分析北京及周边地区居民户数的分布情况,可以发现北京及其南部天津、河北、山东等省、市

居民户数高值区,其亦呈近似南-北向带状分布,与

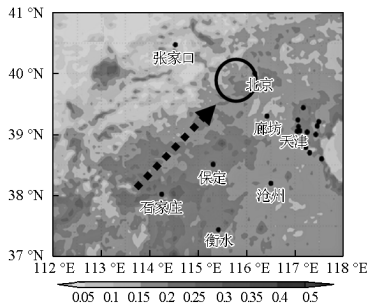


图 10 2003 年 1—2 月 BECAPEX 试验期间晴空、稳定天气条件下合成 MODIS 卫星气溶胶 PM_{10} 变分订正场

Fig. 10 Composite surface PM_{10} variation - corrected MODIS AOD field under clear sky and stable weather condition in the BECAPEX during January to February, 2003

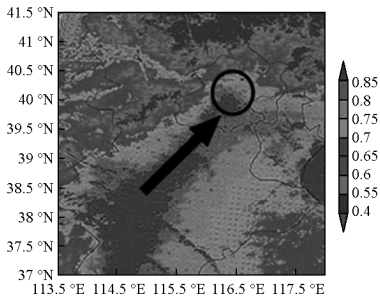


图 11 卫星遥感-地面 $PM_{2.5}$ 变分订正气溶胶光学厚度场(2002-02-03)

Fig. 11 Composite surface $PM_{2.5}$ variation - corrected MODIS AOD field during February to March, 2002

图中气溶胶光学厚度高值区的分布相吻合。这反映了北京及其南部周边天津、河北、山东等省、市的城市群落中,工业与居民生活燃煤等排放及其扩散导致的气溶胶效应。采用上述卫星遥感-地基监测变分技术途径,可进一步实现卫星遥感-移动车载观测试验以获取卫星遥感-地基监测变分系统各时刻不同空间位置动态数据^[23]。

4.2 卫星遥感分析区域雾与气溶胶分布变化趋势

卫星遥感-地基综合分析方法同样也适用于城市雾的研究。从北京及周边城市冬季(当年 12 月至次年 2 月,下同)雾日数的年代际变化统计分析结果发现,20 世纪 60—90 年代,冬季平均雾日数在北京及南部周边地区呈显著上升趋势,尤其在北京西南部山区边缘为冬季平均雾日数年代际变率高值中心区域(见图 12a,阴影区 ≥ 0.2 ,单位:天/10 年),统计 1996—2001 年当年 11 月至次年 3 月华北地区逐月臭氧总量测绘分光计(TOMS)气溶胶光学厚度与各站雾日数的相关系数分布可发现,自南部周边地区到北京城区,TOMS 气溶胶光学厚度与局地月平均雾日数呈正相关特征(见图 12b,深浅阴影区分别通过 90%、95% 信度检验,样本数 ≥ 25),此高相关系数区域与冬季平均雾日数年代际变率高值中心区域较为吻合。尤其值得注意的现象是,冬季雾日数增多极值区、气溶胶与月平均雾日数高相关区均位于京津周边西南部保定等地区,且该区域内北京西南部周边相当范围属气溶胶分布高值区,说明气溶胶和雾有十分密切的关系(见图 12c,20 世纪 80—90 年代华北冬季平均雾日数年代际偏差场,单位:天, $0.4 >$ 浅色阴影 ≥ 0 ,深色阴影 ≥ 0.4)^[7]。

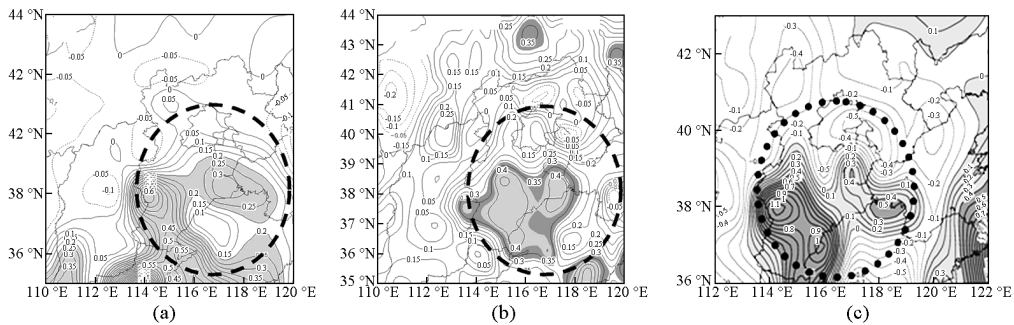


图 12 20 世纪 60—90 年代冬季平均雾日数年代际变率

Fig. 12 Interdecadal change rates of mean fog days in winter over 1960s-1990s

4.3 城市热岛卫星遥感—地基观测综合分析

由于地面气温观测点有限,近年来将卫星遥感温度资料用于城市热岛的研究亦成为热点。采用北京城区及近郊区 32 个自动气象站小时平均气温资料与卫星遥感晴空辐射亮温(TBB)遥感亮温场资料进行综合变分订正分析。考虑对上述 TBB 变分订正效果的客观性检验问题,将订正后的相应于剔除点卫星遥感 TBB 值与 AWS 地面气温实况真值进行误差检验,计算分析结果发现两者相关显著。检验结果表明,采用变分订正方案既发挥了卫星遥感信息高分辨率的优点,又构成了与地面气温实测“真值”最佳“逼近”的订正函数。变分订正后的 TBB 变分场在一定程度上反映了北京城郊区气温的多尺度非均匀分布特征,弥补了地面气温观测站点稀少的局限性。变分订正前 TBB 分布场中的虚假高值区被消除,订正后结果和实况较为一致:表明海淀区中东部、石景山地区、崇文区的强热岛群区及城区古建筑群区、绿化园区的弱热岛区较突出,北京晴空过程城区及近郊区多尺度热岛效应可由强、弱程度不同的热岛群“合成”,北京地区热岛分布呈多尺度非均匀特征,即城区东西两侧为强热岛区,城西北园林区与古城中轴线区域为相对弱热岛区(见图 13)^[24]。

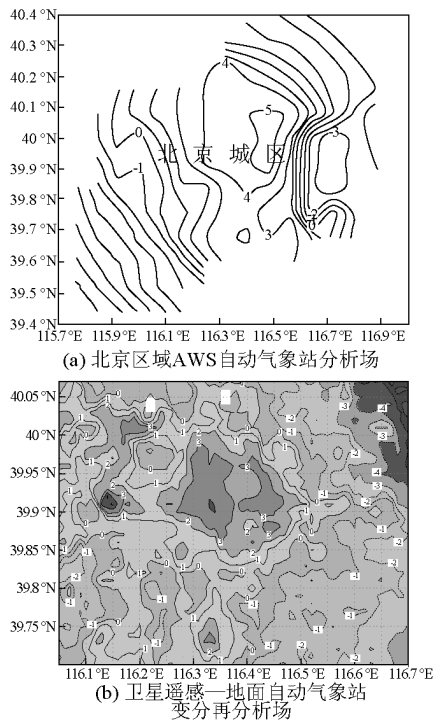


图 13 对比分析北京城近郊区温度分析场
Fig. 13 Comparison of temperature field of urban and suburb

4.4 水、土、气多圈层相互作用污染影响概念模型

随着城市规模日益扩大和人口持续增长,城市水、土环境亦面临重大挑战。据统计,1999 年北京局部地表饮用水源存在隐患,浅层地下水亦受到一定程度的污染;区域性土壤重金属和有机污染不同程度的累积效应及其生态危害已经显露,某些耕地、蔬菜重金属含量超标,这些现象预示着水、土环境已出现爆发“化学定时炸弹”的危险信号。因此水、土、气环境治理问题已成为制约城市社会经济发展过程中重大“瓶颈”问题。但以往的城市环境研究仅偏面从单一环境介质或单一学科视角剖析问题,事实上大气、水、土壤环境污染形成过程呈复杂的物理、生物、化学耦合过程,污染物活化、激化过程均为环境介质间的相互作用,尤其超级大城市不同功能区呈大气、水与土壤环境交叉污染特征。上述水、土、气交互污染问题已成为大城市可持续发展亟待解决的复杂问题与跨学科的技术难题。

研究人员曾在北京城市东北向密云水库进行了大气干湿沉降对水库水质影响的观测分析,就水库水、土、气环境相互影响效应对降水径流问题进行了初步探讨。BECAPEX 试验资料统计分析结果表明,密云水库周边相关流域面空间尺度存在与夏季局地强降水相关的水、土、气多圈层污染影响源,发现了密云水库周边及上游大范围区域降水冲刷与汇聚流对水库区域尺度范围水质污染影响的关键区。水库区域尺度范围水质的变化可归结为相关流域面空间尺度范围气、水、土多圈层相互影响的综合效应:库区周边及远距离的地表扬尘和扬沙进入大气,经大气干、湿沉降直接进入水库,然后在水中经各种生化过程作用于库水;通过流域面地表水、径流水、地下水进入水库的物质属于间接进入库水的物质,这类水在进入水库前要流经地表或进入地下深层,再汇集到水库,当水与地表、地深层的土壤及土壤的组成进行交换和反应后进入水库会影响库水的酸碱度;密云水库周边相关流域均为复杂的山地,此类河谷型流域面空间尺度大气降水,尤其夏季暴雨对流域周边分布的污染源的冲刷、汇流效应,将对密云水库的水质造成严重威胁。此类多尺度污染源交互影响特征可采用水、土、气多圈层污染影响源概念模型来描述(见图 14)。项目通过大气与水库污染综合分析,提出通过构建高影响区降水径流水库水质相关模型,动态追踪水库周边污染源的监控途径,即采用有关空气污染源追踪相关分析法,分析密云

水库上游白河流域周边山谷工矿业或农田、居民点污染源,发现夏季降水水库上游白河流域通过地表冲刷汇流影响水库的影响关键区^[25]。

中国气象局酸雨观测分析结果(见图 15)表明,由于大气偏南气流背景下空气污染物可沿中国西部大地形边缘如太行山脉东麓大地形(见图 15a)由南向北输送,且在平原北端燕山附近“受阻”,因此酸雨多年平均图上在中国区域 30°以北出现南—北向带状 pH 低值区域,且在上述南北带状“端点”北京东北处上甸子本底测站出现一个“舌尖”状的 pH 低值区(图 15 b)。即北京上甸子观测站位于舌尖状 pH 低值区的顶端,图 15c 还描述出 2000 年夏季 925 hPa 近地层在中国东部平均偏南风场,这可能与大气污染物在中国东部区域南—北向平均偏南气流输送总体效应有关。

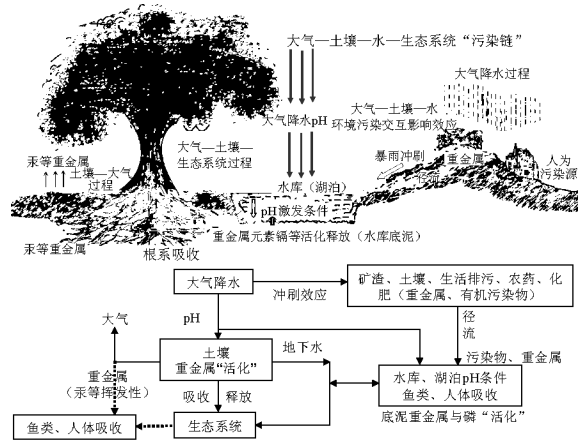


图 14 密云水库大气、水、土环境污染多圈层交互影响模型图

Fig. 14 Sketch map for the complex pollution path of the air-land-water multi-sphere interaction in the Miyun Reservoir

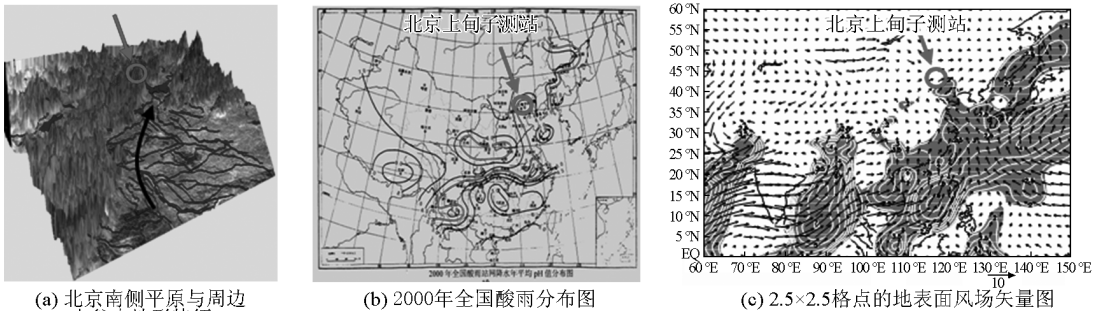


图 15 全国酸雨分布图和相关矢量场

Fig. 15 The distribution of year average pH of acid rain network in China and correlation vector fields

5 结语

归纳了 BECAPEX 科学试验研究中各类环境学与气象学相结合的诊断分析与模式改进的计算方法,以尝试寻找环境学、气象学交叉学科研究途径,本文中有关城市大气污染源追踪多源信息“广义判识”技术仅仅是一种探索,各类研究方法并非成熟,有待于进一步深入认识与改进。

提出了大气污染广义判识方法。其中,针对气溶胶和其他空气污染物自身规律的技术方法包括确定气溶胶主要来源的主因子分析方法和气溶胶变化时间尺度的谱分析法;代表城市冠层空气污染物特征的同位相分析法;追溯空气污染物来源的合成相关矢量法、后向轨迹示踪法和足痕分析法。提出了空气污染 CMAQ 模式源同化技术。采用源同化方案,特别是采用具有季节和月变化特征的、动态的 SO_2 、 NO_2 区域同化反演源排放清单,进而是卫星遥

感资料同化在空气污染预报中的应用技术,明显改进了预报效果,突破了长期以来大气污染模式中排放源难以确定的关键技术难点;通过卫星遥感—地基观测综合分析平台可以广泛地应用于城市污染源追踪、城市雾和城市热岛的研究。阐述的多圈层水—土—气综合分析方法是一种对水污染源追踪新的尝试(见图 16)。

环境学和气象学虽然是两个独立的学科,但复杂的大气环境研究过程使这两门学科日益互相交融、互相渗透,并产生了越来越多的研究“闪光点”与新的学术“生长点”,此两门学科的交叉领域问题已是当今环境与气象学科理论研究发展的重点目标。当前城市化进程加速的形势下,特大城市大气环境研究经典理论受到挑战,地面观测资料以及传统的一些数理分析方法以已不能满足现实研究的需求,大气成分新设备、仪器,边界层铁塔和其他自动站等探测数据分析都要求引进新方法、新技术。另

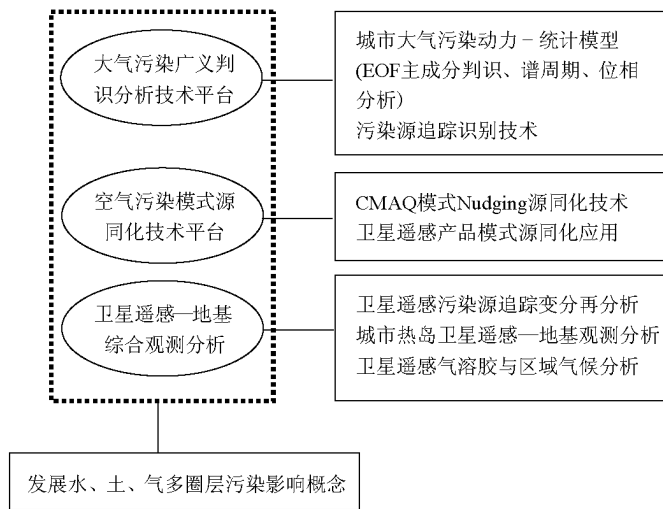


图 16 大气动力—化学过程多源信息广义判识与模式

Fig. 16 Generalized method and model of multi information of atmospheric physical-chemical process

外,卫星气象学就是伴随卫星探测技术的提升而发展的。未来 10 到 20 年,以遥感手段特别是基于空间的卫星遥感技术将逐步成为主要探测手段,进而在城市大气环境中,卫星遥感产品的应用也有广阔的天地。

参考文献

[1] 北京市环境保护研究所. 国外城市公害及其防治[M]. 北京:石油化学工业出版社,1977.

[2] 周秀骥等. 长江三角洲低层大气与生态系统相互作用研究[M]. 北京:气象出版社,2004.

[3] 唐孝炎,张远航,邵敏. 大气环境化学[M]. 北京:高等教育出版社,2006.

[4] Hao Jiming, Wang Litao, Li Lin, et al. Air pollution concentration and control strategies of energy-use related sources in Beijing [J]. Science in China (Series D), 2005, 48 (Supp. II): 138 - 146.

[5] 任阵海,王文兴,冯宗炜,等. 酸雨的分布与控制[C]//王文兴文集. 北京:科学出版社. 2007. 225 - 254.

[6] Xu Xiangde, Ding Guoan, Zhou Li, et al. Localized 3D-structural features of dynamic-chemical processes of urban air pollution in Beijing winter[J]. Chinese Science Bulletin (SCI), 2003, 48 (8): 819 - 825.

[7] Xu Xiangde, Shi Xiaohui, Zhang Shengjun, et al. Aerosol influence domain of Beijing and peripheral city agglomeration and its climatic effect [J]. Chinese Science Bulletin (SCI), 2006, 51 (16): 2016 - 2026.

[8] 卞林根,程彦杰,王欣,等. 北京大气边界层中风和温度廓线的观测研究[J]. 应用气象学报,2002,13(特刊):13 - 25.

[9] Zhou Xiuji, Xu Xiangde, Yan Peng, et al. Dynamic characteristics of spring sandstorms in 2000[J]. Science in China: Series D,

2002, 45 (10): 577 - 594.

[10] Ding Guoan, Chen Zhunyu, Gao Zhiqiu, et al. Vertical structures of PM₁₀ and PM_{2.5} and their dynamical characters in low atmosphere in Beijing urban [J]. Science in China: Series D, 2005, 48 (Supp. II): 38 - 54.

[11] Xu Xiangde, Zhou Li, Zhou Xiuji, et al. Influencing domain of peripheral sources in the urban heavy pollution process of Beijing Science in China [J]. D Earth Sciences, 2005, 48 (4): 565 - 575.

[12] Xu Xiangde, Zhou Xiuji, Shi Xiaohui. Spatial structure and scale feature of the atmospheric pollution source impact of city agglomeration [J]. Science in China: Series D, 2005, 48 (Supp. II): 1 - 24.

[13] 高志球,卞林根,逮昆贵,等. 城市下垫面空气动力学参数的估算[J]. 应用气象学报,2002,13(特刊):26 - 33.

[14] Zhou Mingyu, Yao Wenqing, Xu Xiangde, et al. Vertical dynamic and thermodynamic characteristics of urban lower boundary layer and its relationship with aerosol concentration over Beijing [J]. Science in China: Series D, 2005, 48 (Supp. II): 25 - 37.

[15] Ma J, Tang J, Li S M, et al. Size distributions of ionic aerosols measured at Waliguan Observatory: implication for nitrate gas-to-particle transfer processes in the free troposphere [J]. Journal of Geophysical Research, 2003, 108 (D17): ACH8 - 1 - 8 - 12.

[16] Liu Yu, Li Weiliang, Zhou Xiuji. Simulation of secondary aerosols over North China in summer [J]. Science in China (Series D), 2005, 48 (Supp. II): 185 - 195.

[17] 颜鹏. 近年来大气气溶胶模式研究综述[J]. 应用气象学报, 2004, 15(5): 629 - 640.

[18] Yan Peng, Huang Jian, Roland Draxler. The long term simulation of surface SO₂ and evaluation of source contributions from the different emissions to Beijing City [J]. Science in China: Series D, 2005, 48 (Supp. II): 196 - 208.

[19] Xu Xiangde, Xie Lian, Cheng Xinghong, et al. application of an

- adaptive nudging scheme in air quality forecasting in China[J]. Journal of Applied Meteorology and Climatology, 2008, 47:2105 - 2114.
- [20] Xu Jianming, Xu Xiangde, Liu Yu, et al. A study of statistically correcting model CMAQ-MOS for forecasting regional air quality [J]. Science in China; Series D, 2005, 48 (Supp. II): 155 - 172.
- [21] Xu Xiangde, Xie Li'an, Ding Guoan. Beijing air pollution project to benefit 2008 summer olympic game[J]. American Meteorological Society Bulletin, 2005, 86(11): 1543 - 1544.
- [22] Cheng Xinhong, Xu Xiangde, Ding Guoan. An emission source inversion model based on satellite data and its application in air quality forecasts[J]. Science in China; Series D, 2010, 53(5): 752 - 762.
- [23] Xu Xiangde, Zhou Xiuji, Weng Yonghui, et al. Study on variational aerosol fields over Beijing and its adjoining areas derived from Terra-MODIS and ground sunphotometer observation [J]. Chinese Science Bulletin (SCI), 2003, 48(18): 2010 - 2017.
- [24] 徐祥德. 城市大气环境污染动力学理论问题[J]. 应用气象学报, 2002, 13(特刊): 1 - 12.
- [25] Yang Dongzhen, Xu Xiangde, Liu Xiaoduan, et al. Complex sources of air-soil-water pollution processes in the Miyun Reservoir Region [J]. Science in China; Series D, 2005, 48 (Supp. II): 230 - 245.

Generalized method of urban air pollutant source tracking and integration approach of nudging source assimilation

Xu Xiangde, Ding Guoan

(Chinese Academy of Meteorological Sciences, Beijing 100081, China)

[**Abstract**] An ensemble platform on generalized source tracking of urban air pollutants and an emission source assimilation with application of satellite remote sensing has been proposed. The ensemble platform of generalized urban air pollutant source tracking is built on principal factor analysis of aerosol emissions, aerosol variation spectrum analysis, feature analysis on aerosol changes with phase within urban canopy layer, wind vectors correlating with remote pollutant transport, back-forward trajectories and boundary layers affecting the foot mark methods. Also, in order to reduce the emission source uncertainties, which is a key difficulty in air quality modeling, the Newton approximation nudging technology has been applied in the air pollutant modeling based on the seasonal or monthly SO₂ and NO₂ emissions, and the remote sensing data of air pollutants have been applied on the data assimilation in air pollutant modeling. The integration approach with remote sensing and ground-based observations could be used in the research on urban air pollutant tracking, urban haze and heat island. The comprehensive analysis of land-water-air cycles is attempted as an exploratory study on water pollutant source tracking.

[**Key words**] generalized method; nudging source; pollutant source tracking; satellite remote sensing-surface; land-water-air