文章编号: 1004-4965 (2005) 06-0615-08

硫酸盐直接辐射强迫的在线与固定转化率 模拟方法的对比研究

吴 涧^{1,2}, 刘红年³, 王卫国¹, 刘 罡³

(1. 云南大学资源环境与地球科学学院大气科学系,云南 昆明 650091;
 2. 中国科学院东亚区域气候-环境重点实验室,北京 100029;
 3. 南京大学大气科学系,江苏 南京 210093)

摘 要: 以 2000 年 1、4、7、10 月为例,利用区域气候模式,比较了模拟硫酸盐气溶胶 分布和直接辐射强迫的在线模拟方法与固定 SO₂ 到硫酸盐转化率方法,并与全球模式的结果 进行了对比检验。结果表明:在线模拟得到的主要结果与全球平均结果符合得很好,但固定 转化率方法存在明显偏差;两种方法硫酸盐柱含量的差异在-4~12 mg/m²范围内,占在线模拟 柱含量的 42%以上,7月份差异最显著,1月份差异最小;大气顶辐射强迫差异在-1.8~0.4 W/m² 之间,此差别占在线辐射强迫的 26%以上;采用 36.7%的固定转化率对冬季过大、夏季偏小, 只有春秋季的江南部分地区适合。由于固定转化率方法不能反映温度、辐射、水汽、云水等 气象要素的季节性变化对硫酸盐生成率的影响,因而对硫酸盐含量和分布的季节变化模拟存 在偏差,这是导致上述差异的重要原因。

关 键 词:硫酸盐气溶胶;辐射强迫;在线模拟;固定转化率模拟 中图分类号: P422 文献标识码: A

1 引 言

多数全球模式模拟结果表明:硫酸盐气溶胶直接辐射强迫的全球年平均值在-0.26~-0.4 W/m²范围内^[1],但不同模式的结果仍然存在一些差异,这些差异除与模式性能、排放资料、 化学反应方案、硫酸盐辐射性质等有关外,还与气候模式和大气化学模式的不同连接方法有 关^[2],说明硫酸盐直接辐射效应的不确定性是多方面的^[3]。目前全球气候模式与大气化学模 式逐渐采用在线方式连接,但是由于计算量过大的问题,这些大气化学模式的反应机制相对 简单,包含的化学反应也相对较少。

收稿日期: 2004-07-20; 修订日期: 2004-11-28

基金项目:国家自然科学基金资助项目(40205016);云南省自然科学基金资助项目(2003D0011);中国博士后科学基金 (2004036295)联合资助

作者简介:吴 涧(1973-),男,云南昆明人,副教授,博士,在职博士后,主要从事气候与环境变化的研究。E-mail: kmwujian@yahoo.com.cn;wujian@ynu.edu.cn

在区域尺度上研究硫酸盐辐射强迫和气候响应的工作主要有三种方法:第一种采用给定 SO₂到硫酸盐的转化率方法,将实际排放的 SO₂按比例折算为硫酸盐,在气候模式中建立硫 酸盐输送方程计算获得硫酸盐分布。由于一些全球模式模拟发现全球平均二氧化硫到硫酸盐 的质量转化率约为 50% ~ 60%,所以有的工作采用 55%的固定质量转化率^[4]。第二种方法是 将含有比较完善的硫化物大气化学反应的大气化学模式与区域气候模式在线连接,通过化学 反应和物质输送来获得硫酸盐分布^[5]。第三种方法利用较粗分辨率的全球模式模拟的硫酸盐 分布与区域气候模式离线连接模拟辐射效应与气候响应^[6]。在区域尺度在线方法采用得还较 少。通过在区域尺度在线与离线模拟方法的对比表明:硫酸盐的辐射气候效应受到不同方法 的显著影响,表现出较大的不确定性^[7]。

虽然采用在线耦合模式是目前研究大气成分对气候影响的大趋势,但是由于大气化学过 程的复杂性,尤其是影响硫酸盐生成的液相化学过程的复杂性,在线模式也有可能得到不甚 合理的结果,模式效能也有待进一步提高。所以在线模式的一些结果还需要进一步与观测比 较,以不断改进和完善化学机制。另一方面,尽管由于固定转化率方法采用了比较强的假定, 但是该方法不需要求解化学反应过程,大大减小了计算量,因此对在较长时间段内模拟硫酸 盐气溶胶辐射气候效应是有利的,因而目前还有一些应用,并且许多利用全球在线耦合模式 开展的研究也非常关注 SO₂到硫酸盐的转化率^[1]。

为了解在线和固定转化率方法主要结果的差异,并进一步认识两种方法的适用性。本文 以中国地区为例,利用区域气候模式和大气化学模式比较固定转化率方法和在线模拟方法获 得的硫酸盐分布、辐射强迫和气候响应等方面的主要差异,并探讨产生的原因,为深入认识 硫酸盐直接气候效应及其不确定性提供参考。

2 模式简介

区域气候模式 RegCM2 中包括大气环流模式 CCM3 的柱辐射模式^[8],考虑了全球平均 本底硫酸盐气溶胶的辐射过程。在国内该模式已经广泛用于研究我国和东亚地区的气候模 拟,并经过不同方式的检验,具有很好的模拟能力^[9-11]。所用的大气化学模式采用目前国际 上认为比较合理的 CB4 大气化学反应机制,其中包含 36 个物种,83 个化学反应,其中有 11 个光解反应,72 个热反应,可以模拟 SO₂、SO₄、O₃、NO_x等常见物种和多种稀有物种的 分布。模式中详细考虑了各物种的输送、扩散、清除过程,其中干沉降过程包含空中的重力 沉降和地面附近的惯性沉降,重力沉降速率可以取固定值,也可以利用 Stokes 公式计算; 湿沉降过程利用一个零维云雨模式计算,考虑了液相化学反应和降水对各物种的清除作用。 该区域气候和大气化学耦合模拟系统已多次用于模拟硫酸盐、臭氧等的分布及其气候效应工 作^[5,12],具有较强的模拟能力。

3 资料和模拟方案

利用 2000 年 1、4、7、10 月的 NCEP 再分析资料为区域气候模式提供初始场和每 6 小

时一次的强迫侧边界条件,每个例子的积分时间为45天,其中前15天作为区域气候模式的 初始化时间,分析后30天的结果。模拟区域中心在(105°E,35°N),水平网格距90km,垂 直方向包含15层,模式顶在100hPa。模拟所用的排放资料为2000年1°×1°的年平均全球 污染排放资料^[13],不考虑排放的季节性变化将排放量插值到每个格点。

对 1、4、7、10 月分别进行 3 个例子的模拟,第1 个只积分气候模式,作为不含人为硫酸盐的结果;另外 2 个分别采用固定转化率方法和在线模拟方法模拟硫酸盐的分布和辐射效应,分析其差异。

固定转化率方法选取 SO₂ 排放量的 36.7%(摩尔比)作为硫酸盐的物质排放量(相当于 55%的质量转化率)^[4],并在模式中采用与在线模拟的硫酸盐相同的输送、沉降过程。同时 在化学模式中再增加一个物种用于表示只参与物理过程,不参与化学反应的 SO₂。模式结果 中可由新 SO₂ 与真实 SO₂ 的浓度求出化学过程导致的 SO₂ 向硫酸盐的转化率。

4 结果分析

4.1 在线模拟结果的对比检验

为进行在线与固定转化率方法的比较,首先需要认识在线方法的模拟效果。由于缺乏大范围可靠的硫酸盐柱含量的观测资料,为了解本文模拟结果的效果,选取了IPCC第三次评估报告上列举的几种模式离线或在线模拟的全球年平均的硫酸盐柱含量、大气顶直接辐射强迫和标准化的辐射强迫与本文全区域的4个月平均值进行对比^[1],如表1所示。全球年平均硫酸盐柱含量大约在1.7~4.0 mg/m²,并且多数结果分布在1.7~3 mg/m²之间。本文模式采用在线与离线方法模拟的硫酸盐含量分别为2.432、2.418 mg/m²和全球结果符合很好。全球

作者	硫酸盐 柱含量/ (mg・m ⁻²)	直接辐 射强迫/ (W · m ⁻²)	标准化 辐射强迫⁄ (W · g⁻¹)	模式 连接 方法	硫酸盐数据来源
Graf et al. (1997)	1.70	-0.26	-153	离线	Graf et al. (1997)
van Dorland et al. (1997)	2.11	-0.36	-171	离线	van Dorland et al. (1997)
Haywood and Ramaswamy (1998)	1.76	-0.82	-460	离线	Kasibhatla et al. (1997)
Boucher and Anderson (1995)	2.32	-0.29	-125	离线	Langner and Rodhe (1991)
Kiehl and Briegleb (1993)	1.76	-0.28	-159	离线	Langner and Rodhe (1991)s
Ghan et al. (2001)	4.0	-0.44	-110	在线	Ghan et al. (2001)
Jacobson (2001)	2.55	-0.32	-125	在线	Jacobson (2001)
Koch et al. (1999)	3.3	-0.68	-200	在线	Koch et al. (1999)
Chuang et al. (1997)	2.1	-0.43	-205	在线	Chuang et al. (1997)
Kiehl et al. (2000)	2.23	-0.56	-251	在线	Kiehl et al. (2000)
	2.43	-0.39	-160	离线	
本文	2.42	-0.38	-157	在线	本文大气化学模式模拟
	0.91	-0.2	-220	固定转化率	

表1 硫酸盐柱含量及辐射强迫对比检验

平均直接辐射强迫的范围是-0.26~-0.82 W/m²,并且大多数结果集中在-0.26~-0.4 W/m^{2[1]}。 而本文模式离线和在线辐射强迫结果分别为-0.39 W/m²和-0.38 W/m²,均在全球模式的平均 范围内。全球平均单位质量硫酸盐的直接辐射强迫大约在-110~-460 W/g 之间,大多集中 在-110~-200 W/g,与我们的在线和离线结果也非常相近。同时本文模式模拟的硫酸盐含量 和辐射强迫的数值及分布特征与前人在东亚区域尺度上已经开展的工作也很接近^[14-16],说 明模式在线模拟所得结果比较可信。

4.2 固定转化率与在线结果的比较

固定转化率方法模拟得到的硫酸盐柱含量分布如图 1 所示,其中 a、b、c、d 分别表示 1、4、7、10月,等值线单位为mg/m²。图1最突出的特征是:硫酸盐含量的季节变化不显 著。在所模拟的4个月中,硫酸盐的分布有两个明显的中心区,即四川盆地和华北地区,各 月份的分布形势略微存在一定差异。四川盆地各月均为高含量主要由于地形复杂并且排放量 也较大导致,外界输入的影响是很小的。1、4、10 月华北地区的高含量主要是局地排放量 较大导致,7月份由于亚洲季风已建立,华北处在副高的西北侧,强劲的西南气流使长江中 下游地区的硫酸盐或 SO2 向华北地区输送,这种强烈的输送作用甚至造成长江中下游地区 7 月份含量小于其余月份,同时华北地区 SO?排放量也较大,两方面共同造成夏季出现高含量 中心^[5]。具体来说,1月份四川地区最大值超过8mg/m²,华北地区最大在5mg/m²附近,长 :江下游和华南地区普遍在 2~4 mg/m²。4 月份高于 1 mg/m² 的区域向东扩展,华北地区略有 '减小,5mg/m²区域比1月份缩小,四川的最大值下降为7mg/m²,江南和华南变化较小。7 月份华北地区的变化不明显,四川最大值下降为6mg/m²,江南和华南地区硫酸盐含量明显 下降,普遍在 1~2 mg/m²。10 月份华北和四川都有升高,华北的最大值达到 6 mg/m²,四川 达 9 mg/m², 为模拟的 4 个月中最大值。华南地区比 7 月也有一定升高。同时表 2 显示全区 域平均最大出现在4月份,为1.024 mg/m²。不同地区最大值的出现时间却有显著差异,华 北地区、华中地区为 10 月,华南地区为 4 月。这说明用该方法模拟的硫酸盐分布在春秋季 最大,冬夏季最小,并且各地区不同月份的差异都小于1.5 mg/m²。在线模拟结果的特征是: 四川地区各月一直维持高含量,但华北地区仅在7月份为高值中心;7月份出现四川和华北 两个中心分布,其余月则只存在单中心。在线模拟得到的这一特征也出现在其他模拟工作中 [14~16]。从表 2 中可以看出即使对于全区域平均,在线方法的硫酸盐含量也存在显著的季节 变化,但是固定转化率结果变化很小。另外,注意到表1中显示固定转化率方法得到的硫酸 盐含量甚至不到平均值的一半,辐射强迫数值也比其它工作的结果偏低,而单位硫酸盐辐射 强迫数值却偏大。这意味着固定转化率方法得到的硫酸盐有很大比例分布在纬度相对较高的 地区,因为高纬度地区太阳高度角较低,硫酸盐的散射效应更显著,只有这样才可能在硫酸 盐含量显著偏少的情况下使辐射强迫不至于偏少过多,与图1中华北地区始终是高含量中心 之一完全符合,表明固定转化率方法得到的硫酸盐分布具有一定的偏差。

图 2 所示为两种方法硫酸盐含量之差,在线方法减固定转化率方法。1 月份在线方法的 含量在华北地区比固定转化率方法的偏小 1~4 mg/m²,在长江流域和华南偏大。4、7、10 月 则偏大,并且差别很显著,最大差值出现在 7 月份达到 12 mg/m²,甚至超过了固定转化率 方法模拟结果自身的大小。事实上,SO₂转化为硫酸盐的过程存在气相和液相两种途径,影 响因素主要有辐射、温度和水汽状况。在气相反应中 OH 的浓度对 SO₂的转化是很重要的, 而 OH 由氧气和臭氧光解产生的氧原子与水汽反应生成。因此 OH 的浓度受到辐射量、水汽 分布的影响。由于硫的液相转化率大于气相转化率,所以液相反应对形成硫酸盐更为重要。 液相反应受到云分布、云水含量、降水分布等要素的直接影响。在线模式中水汽、云量、云 水含量和降水等关键因子由气候模式实时预报,完全能反应这些气象要素的变化以及由此导 致的液相转化率的变化。模拟区域的东部和南部处于亚洲季风区,这些湿状况因子的季节变 化非常显著,并且这些地区也正好是主要的排放区。由于在线方法中化学反应的条件随季节 发生变化,大气环流的输送作用也同步变化,因而它能模拟出硫酸盐含量显著的季节变化。 固定转化率方法由于采用各季节、各地区一致的转化率,因此不能客观地反映由太阳辐射、 云、云水含量、降水等季节性因素引起的气相和液相转化率变化对硫酸盐含量的影响,所 以其结果的季节变化仅包含大气环流输送的变化,显然不如在线方法显著。这是两种方法的 一个主要差别。从表 2 中可以看出,硫酸盐含量的差异即使是对全模拟区域平均值的最小差 异也达到 42%,出现在1月份,最大为 73%,出现在7月份。这样的差异远大于在线与离 线模拟方法之间的差异^[7],说明固定转化率方法的结果与在线和离线方法相差很大。

	1月	4月	7月	10月
固定转化率硫酸盐含量(mg/m²)	0.94	1.02	0.74	0.94
在线硫酸盐含量(mg/m²)	1.63	3.03	2.76	2.25
硫酸盐含量的百分比差异(%)	42	66	73	58
固定转化率辐射强迫(W/m ²)	-0.17	-0.23	-0.21	-0.19
在线辐射强迫(W/m ²)	-0.23	-0. 47	-0.51	-0.31
辐射强迫的百分比差异(%)	26	51	59	39
在线方法的 SO2 摩尔转化率(%)	14.15	30.65	50.24	28.96



为深入了解固定转化率不能很好模拟硫酸盐含量季节变化的原因,计算了在线模拟中 SO2到硫酸盐的实际摩尔转化率分布,如图3所示。即使对同一地区,不同月份的转化率也 有明显差别,用空间和时间均匀的转化率很难客观地描述 SO>的氧化过程。具体来说,1 月 份北方地区转化率普遍在 5%~10%,南方地区在 10%~25%。这是由于南方辐射比北方强气 相转化率相对北方较大,同时南方比较湿润,便于液相反应的发生,但1月份无论南北方转 化率均达不到 36.7%,采用这个固定值在 1 月份过高。4 月份长江以北的转化率在 30%以下, 已经比1月份有明显增大。江南地区在30%~45%之间,南海地区为50%~60%,仍然显示了 非常明显的地区差异,采用 36.7% 的固定转化率对北方过高,只适合南方的部分地区。7月 份的转化率与4月份相比,北方地区增大到40%~50%,南方地区为40%~60%,增加幅度比 北方地区小。7月份整个模拟区域内转化率的地区差异比4月份减小,主要由于太阳直射点 北移,同时亚洲季风全面建立,使南方和北方的辐射和水汽等条件有很大相似的缘故。10 月份随着太阳直射点南移,季风的撤退使北方地区的转化率迅速降低,数值比4月份略小, 南方地区与4月份差别不大,但小于7月份数值。我国各大区域平均的转化率最大值都出现 在7月份,华中、华南和华北分别为48.02%,46.69%,44.92%;最小值在1月份,不超过 18.52%。各地区比较,华南地区的年变化最小,华北最大,华中地区与华北非常接近。图 3 '说明:SO₅的转化率随时间和地区有非常显著的变化 , 用时间和空间平均的转化率不能客观 的反应这种变化,由此造成模拟的硫酸盐含量会存在差异。

两种方法模拟出的硫酸盐含量存在差异,必然会引起辐射强迫产生差异。图4所示为大 气顶辐射强迫的相对差异(单位:%,指在线结果减固定转化率结果再除以在线结果)。1 月份差异主要存在于北方,并且由于1月份辐射强迫数值相对较小,因此相对差异的数值很



大,多数地区超过-100%,甚至-300%。这与固定转化率方法在华北地区模拟的硫酸盐含量 偏高相对应。4月份由于辐射强迫数值本身较大,因而相对差异数值减小,多数地区差异在 -60%~60%之间并且长江流域及以南地区为正值,北方多数地区为负值。7月份差异为正值, 多数地区在40%~60%之间,这与固定转化率方法硫酸盐含量偏低一致。10月份长江以南地 区为正值,且多数在50%附近,北方为负,多数地区数值在-50%附近。表2中全区域平均 辐射强迫的相对差异在春夏季大于秋冬季,即使在1月份两种方法的辐射强迫差异也达到了 在线辐射强迫的 26%。产生如此大差异的原因在于固定转化率方法得到的硫酸盐分布与在线 方法的结果之间的显著差别。

4 结 论

本文利用区域气候与大气化学模式系统,通过对比硫酸盐气溶胶分布和直接辐射强迫模 拟的在线方法与固定转化率方法所得结果,主要得到以下结论:

(1)本文采用的在线模式模拟得到全区域平均硫酸盐柱含量为 2.42 mg/m²,辐射强迫为 -0.38 W/m²,单位质量硫酸盐引起的辐射强迫为-159 W/g,上述结果与许多全球气候和大气 化学耦合模式系统吻合较好;而固定转化率方法的全模拟区域平均结果与全球模式结果相差 显著。

(2)固定转化率方法不能客观地模拟由于气象要素变化对化学转化率的影响,而导致的 硫酸盐含量的季节变化,其全区域平均的结果与在线方法的相对差异在42%~73%,由于两 方法的硫酸盐含量差异而导致的大气顶直接辐射强迫相对差异在26%~59%之间。

(3) 由于受到太阳辐射、云、水汽和降水等易变条件的影响, SO₂ 的摩尔转化率随地点 和时间发生显著变化,全区域平均采用 36.7%的固定转化率对 7 月份过低,对 1, 4, 10 月过 高。固定转化率方法应当慎重使用。

参考文献:

- IPCC. Climate Change 2001: The Scientific Basis, Contribution of Working Group I to the Third Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change[M]. Cambridge University Press, UK, 2001. 944.
- [2] KOCH D, JACOB D, TEGEN I, ct al. Tropospheric sulfur simulation and sulfate direct radiative forcing in the Goddard Institute for Space Studies general circulation model[J]. J Geophys Res, 1999, 104: 23799-23822.
- [3] 吴 兑. 华南气溶胶研究的回顾与展望[J]. 热带气象学报, 2003, 19(增): 145-151.
- YUN Qian, FILIPPO Giorgi. Interactive coupling of regional climate and sulfate aerosol models over eastern Asia[J]. J Geophys Res, 1999, 104: 6477-6499.
- [5] 吴 涧,蒋维楣,刘红年,等.硫酸盐直接和间接辐射气候效应的模拟研究[J].环境科学学报,2002,22(2):129-134.
- [6] 高学杰,林一骅,赵宗慈.用区域气候模式模拟人为硫酸盐气溶胶在气候变化中的作用[J].热带气象学报,2003, 19(2):169-176.
- [7] 吴 涧,蒋维楣,刘红年,等. 硫酸盐气溶胶直接辐射效应在线和离线模拟方法的比较[J]. 气象学报,2004, **62**(4): 486-492.
- [8] BRUCE P B. Delta-Eddington approximation for solar radiation in the NCAR community climate model[J]. J Geophys Res, 1992, 97(7): 7603-7612.

- [9] 吕世华,陈玉春.区域气候模式对华北夏季降水的气候模拟[J].高原气象,1999,18(4):632-640.
- [10] 潘劲松,翟国庆,高 坤. 区域气候模拟中多种对流参数化方案的比较研究[J]. 大气科学, 2002, 26(2): 206-220.
- [11] 范广洲,吕世华.高分辨嵌套区域气候模式对我国中、东部地区夏季气候的数值模拟[J].高原气象,1999,18(4): 641-647.
- [12] 吴 涧,蒋维楣,刘红年,等.我国对流层臭氧增加对气温的影响[J].高原气象,2003,22(2):132-142.
- [13] STREETS D G, BOND T C, CARMICHAEL G R, et al. An inventory of gaseous and primary aerosol emissions in Asia in the year 2000[J]. J Geophys Res, 2003, 108(D21), 8809, doi 10.1029 /2002 JD 003093.
- [14] 王自发,黄美元,高会旺,等.关于我国和东亚酸性物质的输送研究 . 硫化物浓度空间分布特征及季节变化[J]. 大
 〔科学,1998, 22(5): 693-700.
- [15] 王喜红,石广玉.东亚地区对流层人为硫酸盐气溶胶柱含量变化数值研究[J].气候与环境研究,2000,5(1):58-66.
- [16] 王体健,闵锦忠,孙照渤,等.中国地区硫酸盐气溶胶的分布特征[J].气候与环境研究,2000,5(2):165-173.

COMPARISON OF ON-LINE COUPLED AND CONSTANT TRANS-MISSION SIMULATION METHODS FOR DIRECT RADIATIVE FORCING OF ANTHROPOGENIC SULFATE

WU Jian¹, LIU Hong-nian², WANG Wei-guo¹, LIU Gang²

(1. Department of Atmospheric Science, Yunnan University, Kunming 650091, China;

- Key Laboratory on Regional Climate / Environment of East Asia, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029, China;
- 3. Department of Atmospheric Science, Nanjing University, Nanjing, 210093, China)

Abstract: Two methods, on-line coupled and constant transmission, for radiative forcing simulation of anthropogenic sulfate over China area have been compared within Jan., Apr., Jul. and Oct. 2000. The following results can be figured out based on the comparison: (1) The results of on-line coupling are consistent with global averaged results from GCMs. (2) Both column burden and radiative forcing at TOA of anthropogenic sulfate have obvious differences between the two simulation methods. (3) The maximum difference range of sulfate burden is from -4 to 12 mg/m². Its maximum emerges in July and minimum value in January. The relative difference to that of on-line sulfate burden is more than 42% on the whole simulated area scale. (4) The difference of radiative forcing at TOA is within -1.8 - 0.4W/m². The relative difference to that of on-line radiative forcing at TOA is more than 26% on the whole simulated area scale. (5) The results of constant transmission method differ from on-line or off-line methods fairly, and it is hard to give the fact of sulfate burden and radiative forcing.

Key words: Sulfate aerosol; direct radiative forcing; on-line simulation; constant transmission simulation