

# 城市空气臭氧污染业务 预报方案研究<sup>①</sup>

孙明华 徐大海 朱 蓉 陈军明

(中国气象科学研究院,北京 100081)

## 提 要

概述了当前国内外对臭氧浓度预报采取的主要方法,并对各种方法作了简要的分析比较。在 IER 光化学模式的基础上,提出了城市空气污染数值预报系统 CAPPS 的臭氧浓度预报方案,初步检验结果表明该方案是可行的。同时,提出了优化搜寻法以解决通常缺少活性有机化合物 VOC 监测值的问题。

**关键词:** 臭氧 浓度预报 CAPPS IER 光化学模式

## 引 言

近年来,人们在关注平流层臭氧的同时,也越来越认识到对流层臭氧的重要性。其一,对流层臭氧成为一种非常重要的温室气体,对流层臭氧增加将使地表增温;其二,臭氧极具活力,在许多对流层大气化学过程中起重要作用,如它与 SO<sub>2</sub> 的均相、液相氧化能促成酸雨的形成<sup>[1]</sup>,还是光化学烟雾的成因之一和重要指标;其三,地表附近的臭氧是一种重要的污染大气成分,其浓度的增加将直接危害人类健康、城市建设以及地表生态系统。最近的研究表明,地表附近臭氧浓度已呈全球尺度的逐年增加趋势,这与人类消耗能源结构的转变、城市规模的不断扩大及汽车持有量的迅猛增加是有很大关系的。世界上已有很多国家尤其是欧美等工业国,近地面臭氧污染已成为严重的空气质量问题。在我国虽然目前近地面臭氧并不常成为各个城市的首要污染物,但国家环保总局空气污染日报显示,臭氧体积分数超标率也在逐年上升。为了提高对臭氧浓度的监控能力及公众的预警防范能力,保护公民的身体健康,开展大气臭氧浓度的预报工作是很有必要的。

由中国气象科学研究院研制的城市空气污染数值预报系统 CAPPS 现已成为国家气象中心及全国 47 个重点城市气象部门开展城市空气质量预报的主要手段之一,但该模式由于缺乏化学过程还不能对臭氧浓度作出预报。我们在考察了国内外有关臭氧浓度预报方面所采用的主要模式及方法的基础上,选择了一个形式简单、业务上可操作性较强的光化学模式 IER 与 CAPPS 系统相结合,增加对臭氧浓度的预报,以进一步发展 CAPPS 模式。

### 1 臭氧浓度预报的一般状况

臭氧是一种二次污染物,它并不是从污染源直接排出的,而是大气中的污染物在太阳光的作用下通过化学反应形成的,并且它的生成量及形成速度与氮氧化物、碳氢化合物初始浓度及光强等多种因素有关。因此,对于地面臭氧浓度的预报方法不能类同于 SO<sub>2</sub>、CO 等其它活性较弱的污染气体的预报方法。目前,国内外臭氧浓度预报采用的方法主要可分为统计预报方法和数值预报方法两大类。

#### 1.1 臭氧浓度的统计预报方法

<sup>①</sup> 国家重点基础研究发展规划项目:首都北京及周边地区大气、水、土污染机理及调控原理(编号:G1999045700)资助

被用来做臭氧预报较多的统计模式方法主要有回归模式、分类模式、集合分析(cluster analysis)法以及比较新的人工神经网络技术等。

### 1.1.1 回归预报模式(Regression model)

回归模式是作臭氧浓度预报最普遍的方法之一,预报臭氧浓度回归模式的复杂程度可以有不同的变化,由于各个城市或区域的局地性条件不同,影响臭氧浓度的因子和各个参数的选择都可以有很大区别。如在回归因子的选择方面,有的模式只选择了一两个变量(如温度模式<sup>[2]</sup>),有的模式却选择了大量潜在的与臭氧浓度有关系的气象数据做变量,最多的可达313个变量<sup>[3]</sup>。在参数方面也可考虑得更细致,如美国的Milton C. Hubbar所采用的多元线性回归模式<sup>[4]</sup>,使用了4年的地面气象资料,给出了大量的统计参数来提高预报日地面臭氧最高值的准确率。此外,在时间序列分析技术基础上发展起来的积分滑动平均的自回归臭氧浓度预报模式(ARIMA)<sup>[5]</sup>,也很有实用价值,得到了广泛应用。

### 1.1.2 分类统计预报模式

比较有代表性的如CART模式,即分类和回归树模式(Classification and Regression Tree model)<sup>[6]</sup>。该技术为非参数化方法,即在考虑预报量的统计分布时无需假设。从预报的角度来看,CART很有价值,因为它很容易操作,并且允许在少量基本观测的基础上进行分类预报。在作臭氧的浓度预报方面,它具备区分臭氧浓度强弱的能力,但由于它是以局地的气象数据为基础,不能完全反应区域臭氧高浓度的区域传输方式的特征,同时预报能力还受时间变化的限制。在使用较准确的温度资料时,CART预报臭氧浓度的准确率约在50%。

### 1.1.3 人工神经网络技术

神经网络技术是人工智能的一个分支,它是建立在由神经元相互连接组成的生物神经系统基础之上的。不同于线性回归或预先确定非线性关系的回归模式,神经网络不需对变量之间的关系作任何假设,即可很好地作出数据分布的预测。这种方法很适合于复

杂的模式以及非线性的现象,在很多科学领域中,它已经成为传统的统计模式技术的一种可替代的方法。最近几年,也有一些研究人员将神经网络技术在臭氧浓度预报工作上进行了有益的尝试<sup>[7,8]</sup>,并同传统的回归方法预报效果进行了比较,但还有一些不同看法,有待于进一步深入研究。

## 1.2 数值预报模式

由于臭氧是衡量光化学烟雾污染程度的主要标志,因此,研究光化学烟雾的同时也必然要研究臭氧的产生。近年来,很多光化学数值模式应运而生。一个完整的臭氧浓度数值预报模式需由大气扩散模式及光化学模式两部分组成。用于臭氧研究的大气扩散模式通常分为两类:一类是欧拉型模式,一类是拉格朗日轨迹模式,也有二者混合的模式。化学模式则更要复杂得多,下面着重介绍几个目前应用比较广泛且可作臭氧浓度预报的化学模式。

### 1.2.1 三维欧拉型模式(A three-dimensional Eulerian model)

三维欧拉型模式以McKeen(1991)在区域酸沉降模式(RADM)基础上发展的臭氧区域模式为代表<sup>[9]</sup>。该模式较为系统地研究了乡村臭氧的源、化学反应过程和前体物的输送及形成机理,模式结果与观测结果吻合很好,揭示了NO<sub>x</sub>与近地面臭氧浓度之间存在非线性关系,而且定量描述了对流层臭氧的收支。该模式包括传输、扩散、化学转化、干湿沉降过程,垂直分15层,并使用化学初始场和边界条件,解了一组化学物种的守恒方程,最后给出臭氧时空变化的三维分布。该模式的化学部分一般依据化学反应的相对重要性,考虑主要的反应过程。

### 1.2.2 混合单质点拉格朗日积分轨迹模式(HYSPLIT)

HYSPLIT模式是由美国NOAA大气资源实验室和澳大利亚气象研究中心,共同开发的一个比较先进的可预报臭氧浓度的空气污染预报模式<sup>[10]</sup>。它是一个在欧拉方法和拉格朗日方法之间的混合型方法,其中污染物的质点平流和扩散计算使用拉格朗日框

架,而臭氧浓度则采用欧拉方法在固定格点上结合 IER(积分经验比率模式)化学模式计算,求得的结果作为一个单元内的平均浓度。NOAA 实验室已将该模式投入业务运行。

### 1.2.3 碳键Ⅳ模式(CARBON BOND FOUR)

碳键机理最初是由 Whitten 等人于 1980 年提出的,当时称为 CBM I,在随后的十几年里,随着对芳香烃-NO<sub>x</sub>-Air 体系光化学反应的深入了解,Whitten 等人相继又提出了 CBMII、CBMIII 和 CBMⅣ 机理<sup>[11]</sup>,到 CBMⅣ 机理已把碳键分为 8 类。与一般的集总机理(Lumped Mechanisms)相比,碳键机理的优点是:(1)它是碳守恒的;(2)平均反应速度常数的范围可以缩小。CBMⅣ 现在被广泛运用到对臭氧的研究中,但澳大利亚的研究人员在采用 CBMⅣ 模拟实验数据时发现,CBMⅣ 方法在 VOC/NO<sub>x</sub> 的比率较低时,对臭氧浓度的预报有偏低的现象<sup>[12]</sup>。

### 1.2.4 通用反应集模式(Generic Reaction Set)

Johnson 和他在澳大利亚 CSIRO 的同事于 1992 年发展了一个简单的化学方案,称之为 GRS<sup>[13]</sup>。该方案根据化学机制使用了涉及到 7 个化学物种的化学反应速率方程,其中只涉及到两个实际的化学反应,其余的反应均为一系列化学过程的半经验式的代表,其反应速度参数是通过室外烟雾箱的试验数据得到的。GRS 模式相对于 CBMⅣ 或其他比较复杂的化学模式来说,形式比较简单,但却达到水平相当甚至更好的预报效果<sup>[12]</sup>。

### 1.2.5 积分经验比率模式(Integrated Empirical Rate model)

积分经验比率模式即 IER 模式,最初是由澳大利亚的 Johnson 等人于 1984 年研制的一种半经验模式<sup>[14]</sup>,此后,IER 又经过不断的发展和完善。比较新的版本的 IER 是从一个比较完整的 GRS 方法得到的,考虑了由 NO<sub>x</sub> 向稳定氮化合物的转化,它可以说是 GRS 的一种代数算法。不同于 GRS 的是在 IER 中,烟雾产生量 SP 的积分是线性的,因此很容易结合到一个拉格朗日模式中。美国

NOAA 实验室的 Roland R. Draxler 曾将 IER 模式分别同无平流箱模式(non-advective box model)和混合单质点拉格朗日积分轨迹模式(HYSPLIT)相结合对德克萨斯市的臭氧浓度预报<sup>[15]</sup>,两者得到的日最大臭氧浓度预报值与监测值的相关系数分别为 0.65 和 0.49。

IER 模式是建立在澳大利亚典型的城市条件下的室外烟雾箱模拟试验的基础上得到的,同监测数据一起使用可用该模式来评估光化学烟雾的寿命。IER 主要依赖于烟雾产生量 SP 的定义(式(1))、NO<sub>x</sub> 的定义(式(2))以及光稳态方程(式(3)),只涉及到 6 种不同的污染物种,其中 SP 是以一种短时积分结果的形式存在,其它物种则是由污染源直接排放的。它首先判断该时刻的空气粒子是采用有限光照方案(式(4)),还是采用有限 NO<sub>x</sub> 方案(式(5)),再根据不同的方案选择不同的积分得到 SP 值(式(6)),在有限光照方案中,烟雾产生量 SP 仅是入射光总量和活性有机化合物浓度的函数,而在有限 NO<sub>x</sub> 方案中,烟雾产生量 SP 被假设为随着 NO 供给量的增加而增加,而与入射光无关。然后根据 VOC 的浓度和 SP 值计算由 NO 转化为 NO<sub>2</sub> 的量,最后根据稳态方程计算臭氧的浓度值。下面给出式(1)~(6):

$$[SP]_t = [O_3]_t - [O_3]_0 + [NO]_0 - [NO]_t \quad (1)$$

$$[NO_x]_t = [NO]_t + [NO_2]_t \quad (2)$$

$$[O_3]_t = K_1[NO_2]_t / K_4[NO]_t \quad (3)$$

$$[SP]_a = \int_0^t ZK_1 dt \quad (4)$$

上两式中 Z 是 VOC 浓度和温度的函数;K<sub>1</sub> 是 NO<sub>2</sub> 光解反应速率,它随太阳辐射和天顶角的变化而变化;K<sub>4</sub> 为 NO 和 O<sub>3</sub> 滴定的反应常数。

$$[SP]_b = \beta[NO_x]_0 \quad (5)$$

式中 β 为 NO<sub>x</sub> 化学计量系数

$$[SP]_t = \min\{[SP]_a, [SP]_b\} \quad (6)$$

## 2 对臭氧浓度几种预报模式的分析讨论

目前,统计预报模式依然是臭氧浓度的

业务预报中采用得较多的方法。就模式的预报效果来说,依然是统计回归模式为最好,预报准确率一般可达约70%;而更复杂的三维传输扩散模式如三维欧拉模式和HYSPLIT模式一般预报准确率约在50%。很多试验显示,当臭氧的最大浓度主要依赖于可获得的局地气象变量数据时,回归模式是令人满意的,可是也要注意虽然统计回归模式有着较高的预报准确率,但却对臭氧的最高浓度常有低估的情况。同时,由于统计预报方法未考虑污染气体的源强问题,在发展城市空气污染预警系统时无法得到利用。三维传输扩散模式能够提供臭氧浓度的时空分布,但复杂的化学模式的准确率会受到所需输入的资料和大气过程的不确定性的限制,同时由于大量的计算需求和气象过程变化的复杂性,使它目前在臭氧预报方面的应用受到了限制,现在大都仅限于对臭氧及光化学反应的研究。碳键机制和集总机制如GRS和IER模式在臭氧的业务预报中已崭露头角并开始得到了广泛应用,采用这些方法可取得模式计算的高效。将化学过程进行参数化的方法保持了同原始化学机制直接的联系,模式的参数有物理意义,因而能够被适当的调整与相应的观测数据获得一致。像GRS和IER这样的半经验模式,具有物理意义明确,形式简单的优点,很适合与一些没有考虑化学机制的空气污染扩散模式相结合,形成业务上操作性比较强的且具备预报臭氧浓度能力的模式。基于以上这些分析,我们初步选定IER模式来发展CAPPS系统的臭氧浓度预报能力。

### 3 IER模式在CAPPS系统中应用的方案

CAPPS是中国气象科学研究院研制的一个城市空气污染数值预报系统。它是用有限体积法对大气平流扩散方程积分得到的多尺度箱格预报模型与MM4或MM5中尺度数值预报模式嵌套形成的城市空气污染数值预报系统<sup>[16]</sup>。它不需要污染源强资料就可预报出城市空气污染潜势指数(PPI)和SO<sub>2</sub>、NO<sub>2</sub>、PM10、CO等主要污染物的污染指数(API),克服了由污染源调查本身具有的不

确定性给城市空气污染的数值预报所带来的困难。经比较,该系统的预报水平与国际上的几种光化学污染预报模式的预报水平相当<sup>[17]</sup>。为进一步发展CAPPS模式,使其具有预报二次污染物浓度的能力,拟将IER光化学模式结合到CAPPS系统中,进行臭氧浓度的预报。

CAPPS系统包括预处理、MM4或MM5模式和大气平流扩散箱格预报模式3个部分,需输入模式系统的实时资料包括探空资料和初始时刻污染物浓度监测资料,模式每3小时输出一次所需城市或地区的一次污染物的API指数和污染等级。结合了IER模式后,可同时在每个箱体内存计算臭氧的浓度值。由箱格预报模式为IER提供臭氧前体物的浓度预报值作化学反应的初始浓度,包括 $t = n\delta t$ 时刻的NO<sub>2</sub>浓度、NO浓度(和活性有机化合物VOC的浓度)。首先计算 $t = n\delta t$ 时刻后一个时间步长内所获得的地面太阳辐射总量,然后对烟雾产生量SP在该时间步长内进行积分,再由光稳态方程计算 $t = (n + 1)\delta t$ 时刻的臭氧浓度值,该值也就是下一个时间步长开始时的浓度初值。模式中的每小时温度和相对湿度预报值可从MM4或MM5直接输出,而每小时地面太阳辐射总量 $Q_n$ 拟采用以下经验公式来计算:

$$Q_n = S \cdot \sin(h_0) \cdot [1 - (1 - k) \cdot n] \quad (7)$$

其中 $S$ 为云层顶的入射太阳总辐射量,可由太阳常数计算; $h_0$ 为太阳高度; $n$ 为云量成数,可由相对湿度的经验关系式计算; $k$ 为经验系数,表示在阴天条件下透过的总辐射部分,与云状、地表反射率及太阳高度有关。因此只需由气象预报模式输出每小时相对湿度预报值即可算出该小时内的地面太阳辐射总量。图1给出结合IER模式的CAPPS系统的流程图。

### 4 初步实验结果

我们按上述方案使用了IER模式进行了初步实验,采用丁国安提供的北京民族学院南路一高层建筑顶的实时监测资料作模式的初始浓度并与IER模式的计算结果进行对比。初始资料包括每小时NO、NO<sub>x</sub>、臭氧

的监测浓度以及每小时温度、相对湿度的实测值,太阳辐射使用下一个时刻的数值来进行计算,资料时间为11月5~14日。我们暂时将模式中需要的活性有机化合物 VOC 的浓度取一个常值 200ppb(这个数值与北京地区 VOC 浓度的数量级相当)。模式每小时预报结果见图 2,臭氧浓度每小时的计算值与实测值的相关系数为 0.89;图 3 为将臭氧浓度作日平均后的计算值与实测值的对比。其中 11月7日计算值与实测值相差较大,主

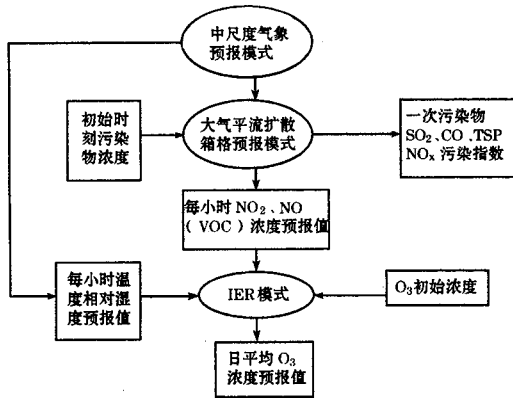


图1 CAPPS系统中的计算O<sub>3</sub>浓度 IER模式的流程图

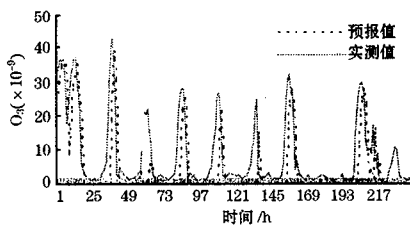


图2 2001年11月5~14日O<sub>3</sub>浓度每小时预报值与实测值的比较

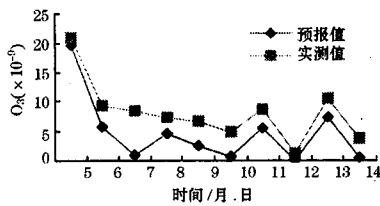


图3 2001年11月5~14日O<sub>3</sub>浓度日预报值与实测值的比较

要是由于当天的初始浓度资料存在缺测问题。从初步的实验结果来看,还是令人满意的。

### 5 目前存在的问题及解决方案

以上所做的实验是采用 NO、NO<sub>2</sub> 以及臭氧每小时的监测浓度作下一小时预报的初始浓度,预报值与实测值的相关性较好。但在业务预报中,我们只能使用前一天的监测浓度作当天唯一的初始浓度,其后由模式计算出每小时的预报值作下一小时的初始浓度值,最后由当天各小时的预报值算出当天的平均预报值。可见,臭氧浓度预报的准确率紧密依赖于 CAPPS 模式对于 NO、NO<sub>2</sub> 预报的准确率。

此外,IER 模式中除 NO<sub>x</sub> 以外还需要输入活性有机化合物 VOC 的实时监测值。目前,NO<sub>x</sub> 在大多数台站通常有监测值,可是 VOC 的观测资料则非常有限。因此若要求输入 VOC 的实时监测浓度来作臭氧浓度预报,目前在业务预报中还很难以满足。在本次实验中我们按照北京地区 VOC 的一般量级将 VOC 浓度取为定值  $200 \times 10^{-9}$ ,这当然会带来模式预报结果的偏差。如何弥补这一不足以提高模式预报的准确率,对本方案的实现也是很重要的。在本方案中,我们拟采用一种数学上的优化搜寻反演算法解决 VOC 的缺测问题。只需给定 VOC 的变化范围,输入前一天的臭氧浓度监测值及其他污染物监测浓度和各种模式中需要的参数变量,该优化搜寻算法就会寻找出一个 VOC 浓度的最优值,再把前一天的浓度值作为次日的 VOC 初始浓度输入到模式中,随后每次计算出臭氧浓度预报值后都将它带回模式进行优化搜寻,反演出该小时的 VOC 最优浓度作为下一小时的初始浓度值,即可保证模式的运转。

### 6 结论

经过对国内外臭氧浓度预报使用的主要模式和方法进行分析比较后,拟选择形式简单、业务上可操作性较强的光化学模式 IER 与 CAPPS 系统相结合,进行臭氧浓度的预报,以进一步发展 CAPPS 模式。初步的实验

表明,该方案得到的每小时的预报值与实测值的相关性较好,有一定的可行性。

针对目前对臭氧前体物 VOC 的观测资料较少的问题,提出采用优化搜索反演的方法进行弥补,以便于该方案在业务预报中得以实现。这一方案的实现正在研究中。

**致谢:** 本文所采用的实时监测资料是由丁国安同志提供的,特此表示感谢。

#### 参考文献

- 1 王明星. 大气化学. 北京:气象出版社,1999:360.
- 2 Prior E J, Schiess J R. Approach to forecasting daily maximum ozone levels in St. Louis. *Environ. Sci. Technol.*, 1991, 15:430-436.
- 3 Feister U, Balzer R. Surface ozone and meteorological predictors on a subregional scale. *Atmos. Environ.*, 1991, 25A:1791-1798.
- 4 Milton C, Hubbard and W Geoffrey Cobouriv. Development of a regression model to forecast ground level ozone concentration in Louisville, KY. *Atmos. Environ.*, 1998, 32(14~15):2637-2645.
- 5 Robeson S M, Steyn D G. Evaluation and comparison of statistical forecast models for daily maximum ozone concentrations. *Atmos. Environ.*, 1990, 24B:303-312.
- 6 Ryan W F. Forecasting severe ozone episodes in the Baltimore metropolitan area. *Atmos. Environ.*, 1995, 29:2387-2398.
- 7 Yi and Prybutok. A neural network model forecasting for prediction of daily maximum ozone concentration in an industrial urban area. *Environmental Pollution*, 1996, 92(3):349-357.
- 8 Andrew C Comrie. Comparing Neural Networks and Regression Models for Ozone Forecasting. *J. Air & Waste Manage. Assoc.*, 1997, 47:653-663.
- 9 Mckeen S A, Hsie E Y and Liu S C. A regional model study of the ozone budget in the eastern United States. *J. Geophys. Res.*, 1991, 96(D6):10809-10845.
- 10 Draxler R R, Hess G D. Description of the HYSPLIT-4 Modeling System. NOAA Tech. Memo. ERL ARL-224, Dec, 1997. 24.
- 11 Gery M W, Whitten G Z, Killus J P. A photochemical kinetics mechanism for urban and regional scale computer modeling. *J. Geophys. Res.*, 1989, 94 (D10):12925-12956.
- 12 Tonnesen S, Jeffries H E. Inhibition of odd oxygen production in the carbon bond four and generic reaction set mechanism. *Atmos. Environ.* 1994, 28:3665-3678.
- 13 Azz M, Johnson G M, Cope M. An introduction to the generic reaction set photochemical smog mechanism. In proceedings of the International Conference of Clean Air Soc. of Australia and N. Z. 1992, 2, 451-462.
- 14 Johnson G M. A simple model for predicting the ozone concentration of ambient air. In Proc. 8th Int. Clean Air Conf., 2, 715-731, Clean Air Soc. of Australia and New Zealand, Melbourne, Australia, 7-11 May 1984.
- 15 Roland R Draxler. Meteorological factors of ozone predictability at Houston, Texas. *Journal of the Air and Waste Management Association*, 2000, 50: 259-271.
- 16 朱蓉,徐大海,孙明华. CAPPS 预报方法研究. *气象*, 2001, 27(6):10~16.
- 17 朱蓉,徐大海,孟燕君等. 城市空气污染数值预报系统 CAPPS 及其应用. *应用气象学报*, 待发表.

## An Operational Ozone Prediction Scheme in Urban Area

Sun Minghua Xu Dahai Zhu Rong Chen Junming

(Chinese Academy of Meteorological Sciences, Beijing 100081)

#### Abstract

Several principal ozone modeling approaches are reviewed and a semi-empirical approach called the Integrated Empirical Rate (IER) model is applied as the ozone calculation scheme in CAPPS. The result of a test using data set observed in Beijing city shows that the scheme is practicable.

**Key Words:** ozone concentration prediction CAPPS integrated empirical rate model city air pollution numerical prediction