气溶胶和气态污染物三维变分协同同化

汪代春^{1,2}, 尤伟^{1*}, 臧增亮¹, 潘晓滨¹, 何宏让¹, 梁延飞³

1. 国防科技大学气象海洋学院, 南京 211101;

2. 中国人民解放军94595部队, 潍坊 261500;

3. 中国人民解放军32145部队, 新乡 453000

* 通讯作者, E-mail: ywlx_1987@163.com

收稿日期: 2019-08-19; 收修改稿日期: 2020-02-11; 接受日期: 2020-03-19; 网络发表日期: 2020-04-26

国家重点研发计划项目(编号: 2017YFC0209803)和国家自然科学基金项目(批准号: 41775123、41805092)资助

摘要 基于WRF-Chem(Weather Research and Forecasting model coupled with Chemistry)大气化学模式, 建立了面向MOSAIC(Model for Simulating Aerosol Interactions and Chemistry)多物种多粒径段气溶胶机制的三维变分同化方案, 实现气态污染物SO₂、NO₂、CO、O₃和颗粒物PM_{2.5}、PM₁₀观测资料的协同同化. 利用中国环境监测总站发布的上述6种污染物的逐时浓度观测资料进行了一个月的同化模拟试验, 以检验同化对化学初始场及其之后预报的影响. 结果表明: (1) 同化能提供更准确的模式初始场, 与未同化观测资料的背景场相比, 同化使得分析场中PM_{2.5}、PM₁₀、SO₂、NO₂、CO和O₃质量浓度的均方根误差分别降低了29.27μg m⁻³(53.5%)、34.5μg m⁻³(50.9%)、30.36μg m⁻³(64.2%)、8.91μg m⁻³(39.5%)、0.46mg m⁻³(47.4%)和15.11μg m⁻³(51.0%); 平均相对误差分别降低了42.6%、53.1%、45.2%、43.1%、69.9%和48.8%; 相关系数分别提高了0.51、0.55、0.48、0.38、0.47和0.65. (2) 同化对不同污染物预报产生的改善效果有所差异. 对PM_{2.5}、PM₁₀和CO预报的改善效果较好, 同化的正效应能持续48h以上且改善效果显著; 对SO₂和O₃的预报, 同化的正效应持续8h左右; NO₂的同化效果较差, 仅持续了3h左右. (3) 从空间来看, 除个别地区外, 同化对全国范围内的气溶胶质量浓度48h预报都有改善效果; 同化对华北地区SO₂的48h浓度预报有明显的改进; NO₂的同化效果较差, 没有大范围的改进; 除华北、华东以及四川盆地外, 同化对其他地区48h内的CO浓度预报有改善效果; 除西南和西北地区外, 同化对全国48h内的O₃预报改善效果明显, 而且华南地区的改进幅度高于其他地区.

关键词 WRF-Chem模式, 气溶胶, 气态污染物, 三维变分, 资料同化

1 引言

空气污染不仅会影响人们的工作、生活和健康, 而且还会对整个经济社会的发展产生很大的影响. 近

年来随着我国工业化和城市化的快速推进, 污染物排放增多, 空气污染事件频发, 中国的区域性气溶胶污染已成为国际和国内的社会和科学研究热点(张人禾等, 2014; 赵子菁等, 2015; Gao等, 2015). 中国已于2013

中文引用格式: 汪代春, 尤伟, 臧增亮, 潘晓滨, 何宏让, 梁延飞. 2020. 气溶胶和气态污染物三维变分协同同化. 中国科学: 地球科学, 50: 1302–1315, doi: 10.1360/SSTe-2019-0182

英文引用格式: Wang D, You W, Zang Z, Pan X, He H, Liang Y. 2020. A three-dimensional variational data assimilation system for a size-resolved aerosol model: Implementation and application for particulate matter and gaseous pollutant forecasts across China. Science China Earth Sciences, 63: 1366–1380, <https://doi.org/10.1007/s11430-019-9601-4>

年建成由1500多个站点组成的环境空气质量监测网,实时公开发布PM_{2.5}、PM₁₀、SO₂、NO₂、CO和O₃等污染物的逐小时质量浓度值和24小时平均值,以及空气质量指数AQI,这为大气污染物的监测、预报和控制提供了重要数据支撑。

空气质量模式是研究大气污染问题的有利工具,现已广泛用于空气质量研究(Binkowski和Roselle, 2003; 薛文博等, 2013)。尽管空气质量模式技术一直在快速发展,并且在气溶胶污染的分析预报等方面发挥了极大的作用,但目前空气质量模式在化学初始场、排放源以及化学机制等方面仍然存在不同程度的误差。资料同化技术能够将观测信息和模式背景场融合,给出理论上最优的初始场(Bouttier和Courtier, 2002),从而通过改善初始场来提高模式的预报准确率,这是世界各气象业务中心的普遍做法。由于观测资料的限制,大气化学模式的资料同化研究和应用起步较晚。在早期的同化研究中,大多数研究采用离线空气质量模式对气体污染物成分进行同化,基于不同空气质量模式实现了O₃、NO_x、SO₂和CO等气体质量浓度的同化(Elbern等, 1997; Eibern和Schmidt, 1999; Elbern和Schmidt, 2001; Errera等, 2008)。随后关于颗粒物PM_{2.5}和PM₁₀的资料同化研究也相继开展,在早期气溶胶颗粒物资料同化研究中,由于计算代价和观测资料的限制,同化系统的控制变量通常是PM_{2.5}或PM₁₀总质量浓度,没有考虑气溶胶的多物种多粒径段机制。如崔应杰等(2006)基于嵌套网格空气质量预报模式采用最优插值法(Optimal Interpolation, OI)对PM₁₀总质量浓度进行了同化,结果表明,同化使模式预报偏差和均方根误差有显著的降低。Tombette等(2009)采用OI对欧洲地区的PM₁₀总质量浓度进行了同化研究。Niu等(2007)构建了针对中国地区沙尘暴预报模式的三维变分同化系统,将粒径段小于40μm的沙尘气溶胶总质量浓度作为控制变量。

随着气象-气溶胶在线耦合模式技术的发展(Grell等, 2005),以及气象和气溶胶相互反馈作用研究的不断深入,针对气象-气溶胶耦合模式的资料同化也逐步发展起来,同化方法主要采用顺序同化方法和变分同化方法,同化资料来源也越来越丰富(Lin等, 2008; Pagowski和Grell, 2012)。靳璐滨等(2016)基于WRF-Chem模式用三维变分(3-Dimensional Variational, 3D-VAR)方法同时同化了PM_{2.5}和PM₁₀质量浓度观测资料,结果

显示同化对初始场有显著的改善,同化对预报的正效应可以持续到20h。Pagowski等(2010)基于网格点统计插值系统(Grid-point Statistical Interpolation, GSI) 3D-VAR同化框架,利用WRF-Chem对北美地区PM_{2.5}和O₃质量浓度进行了同化试验,结果表明,同化对PM_{2.5}和O₃预报的提高至少维持24h。随着计算速度的提高和同化技术的发展,许多研究用气溶胶化学成分变量作为控制变量,开展多变量同化,提高同化的精细程度。Jiang等(2013)基于WRF-Chem模式中GOCART(Goddard Global Ozone Chemistry Aerosol Radiation and Transport model)气溶胶方案,采用GSI同化系统进行了PM₁₀质量浓度的同化试验,其同化控制变量为GOCART方案中14个气溶胶变量,结果表明同化能有效提高12h内PM₁₀浓度预报准确率。Li等(2013)基于WRF-Chem模式中的MOSAIC气溶胶方案(Zaveri等, 2008)建立了多变量的3D-VAR同化系统,将PM_{2.5}划分为黑碳、有机碳、硝酸盐、硫酸盐和其他无机盐5个化学物种,并对地面PM_{2.5}质量浓度进行了同化试验,结果显示同化改进了分析场和24h内的预报。Cheng等(2019)基于WRF-Chem模式中MOSAIC气溶胶方案,发展了快速辐射传输模型CRTM(the Community Radiative Transfer Model),实现了激光雷达消光系数的三维变分同化,结果表明同化对地面PM_{2.5}的预报以及垂直结构有明显改进。Schwartz等(2012)用GSI同化了PM_{2.5}质量浓度和卫星气溶胶光学厚度AOD(Aerosol Optical Depth)资料,结果表明同时同化不同观测平台的气溶胶资料,能协同地提高气溶胶的预报效果。随后,许多学者在GSI同化系统框架下,基于不同空气质量预报模式,开展了卫星AOD和地面常规观测资料的同化试验(Saide等, 2014; Tang等, 2017; Feng等, 2018)。

上述研究表明,通过同化技术对模式初始场进行优化能明显改善气溶胶污染物预报效果。然而,目前大部分WRF-Chem模式的同化研究都是基于针对GSI同化系统开发的较为简易的GOCART沙尘气溶胶机制,该方案缺失硝酸盐和铵盐组分,相应的二次反应过程也欠缺,随着对人为源化学机制的认知不断深入和观测数据的不断丰富, MOSAIC多物种多粒径段气溶胶机制在中国人为源的研究应用中,显示出了越来越多的优势(Chen等, 2016)。而且同化变量一般都是气态变量或者气溶胶颗粒物,对于气溶胶颗粒物和气态污染物观测资料协同同化的研究还很少。本文基于

WRF-Chem模式, 设计面向区分物种在粒径段内反应特征的MOSAIC气溶胶方案的三维变分同化框架, 同化控制变量包括气溶胶8类物种、气溶胶颗粒物和气态污染物质量浓度, 同时同化气态污染物(SO₂、NO₂、CO、O₃)和气溶胶颗粒物(PM_{2.5}、PM₁₀)常规观测资料, 进行一个月的同化模拟试验, 研究同化对不同污染物预报的影响, 为污染物预报分析及相关研究提供参考。

2 模式与同化系统

2.1 模式介绍

WRF-Chem是美国最新发展的区域大气化学模式, 在WRF模式的基础上加入化学模块耦合而成, 实现了气象模式与化学模式的“在线(online)”耦合(Grell等, 2005), 考虑了气溶胶与气象条件的相互作用, 可同步计算气象要素与大气化学成分。模式包含了详细的大气化学参数化方案供研究者选择, 能较好地模拟污染物排放、输送、沉降、气相化学、气溶胶物种以及光解等过程, 现已广泛用于大气污染物的模拟预报(韩素芹等, 2008; Chen等, 2016; Song等, 2017)。本文所选用的主要物理和化学参数化方案见表1, 其中气溶胶方案采用的是MOSAIC 4bins方案(Zaveri等, 2008), 由于其综合考虑了气溶胶的精细化描述(包括化学成分和粒径大小分布)和计算开销, 是气溶胶研究中的首选方案。MOSAIC方案将大气气溶胶划分为8类成分, 分别为BC(黑碳)、OC(有机碳)、NO₃(硝酸盐)、SO₄(硫酸盐)、Cl(氯化物)、Na(钠盐)、NH₄(铵盐)和OIN(无机物)。对其中的每一类成分, 又区分为4个粒径段, 依次为0.039~0.1、0.1~1.0、1.0~2.5和2.5~10μm, 前3组粒径段之和为PM_{2.5}, 第4组粒径段代表PM_{2.5~10}。本文使用的是WRF-Chem 3.7 版本, 模拟区域(图1)按一重网格设置, 以(101.5°E, 37.5°N)为中心, 覆盖东亚的大部分地区, 水平网格距27km, 东西向网格点为210个, 南北向网格点为168个, 垂直方向分为40层。

2.2 三维变分同化方法

三维变分(3D-VAR)同化方法基于最优估计的思想, 将背景场和观测场信息有机融合在一起, 形成最小误差方差的分析场。3D-VAR同化方法(Bouttier和Cour-

表 1 模式参数化方案

物理化学过程	选项
微物理方案	WSM 5-class
长波辐射方案	RRTMG
短波辐射方案	RRTMG
陆面过程方案	Noah
行星边界层方案	YSU
积云对流参数化方案	New Grell
气溶胶方案	MOSAIC 4bins
人为源	RADM2/MADE/SORGAM
光分解计算方案	Fast-J

图 1 模拟区域

tier, 2002)的目标泛函表达为

$$J(x) = \frac{1}{2}(x - x_b)^T B^{-1}(x - x_b) + \frac{1}{2}(Hx - y)^T R^{-1}(Hx - y), \quad (1)$$

式中, x 是同化系统中的控制变量或分析变量, x_b 是模式背景场, y 是观测场, B 是背景误差协方差矩阵, 表征模式的预报误差。 R 是观测误差协方差矩阵, 与观测资料误差有关。一般认为 R 是对角阵, 参照Li等(2013)的研究, 将观测误差取为各控制变量背景误差标准差的一半。 H 是观测算子, 用于从模式到观测的空间转换。3D-VAR将同化问题转换为求上述目标泛函的极小值问题, 由于是高维计算问题, 常采用数值优化算法, 求得的极小解即为统计意义上的最优分析场。

由于计算速度和存储能力的限制, 一般不直接同化精细描述气溶胶成分的所有模式变量, 而是优化组合设计控制变量进行同化分析. 对于MOSAIC方案中的8类气溶胶成分, 每种成分设计出2个控制变量, 其一是将每种成分各自前3个粒径段变量加起来作为控制变量, 分别记为ECi、OCi、CLi、NAi、NH4i、NO3i、SO4i、OINi(下同), 对应于PM_{2.5}的化学组分; 其二是直接将每种成分的第4个粒径段变量作为控制变量, 分别记为ECj、OCj、CLj、NAj、NH4j、NO3j、SO4j、OINj, 对应于PM₁₀中减去PM_{2.5}的剩余部分, 于是同化气溶胶的控制变量就从32个模式变量减少为16个. 气态模式变量SO₂、NO₂、CO和O₃直接同化, 这样同化分析中的控制变量总共达20个, 可同时同化颗粒物(PM_{2.5}和PM₁₀)和气态污染物(SO₂、NO₂、CO和O₃)观测资料. 将气溶胶化学成分设计为控制变量使得观测算子变为线性算子, 主要进行空间位置上的插值运算.

3 背景误差协方差的统计分析

背景误差协方差矩阵(Background Error Covariance, BEC)的估计是资料同化中的一个核心问题, 其不仅影响着观测信息在模式空间的传播方式, 还决定着观测信息与模式背景信息在分析场中的相对权重(Derber和Bouttier, 1999), 确定了控制变量后, 需要计算出每个控制变量的背景误差协方差. NMC方法(Parrish和Derber, 1992)通常用于计算传统气象场(如温度、风等)的BECs, 也可以用于气溶胶物种质量浓度的计算(Benedetti和Fisher, 2007; Liu等, 2011; Li等, 2013). 本文采用NMC方法计算背景误差标准差以及相关系数水平衰减尺度, 最后通过参数估计得到BECs. NMC方法通过对同一时刻的两个不同预报时长的预报结果作差, 得到一个样本差值场, 然后利用差值场的协方差近似估计背景误差协方差.

本文中差值场用48h预报结果减去24h预报结果计算得到. 对于高分辨率数值模式, 一般B矩阵的计算量巨大, 导致存储和求逆非常困难, 需要从数学上做一定的简化处理. 本文按照Li等(2013)采用的方法处理B, 先将其分解为矩阵乘积的形式, 即 $B=DCD^T$, 其中D是背景误差标准差矩阵, C是背景误差相关系数矩阵; 我们只考虑控制变量间的自相关, 这样C就变成了一个

块对角矩阵, 进一步分解为三个方向的相关系数子矩阵的张量积形式: $C = C_x U C_y U C_z$, 假定 C_x 和 C_y 在垂直层面是一致的, 水平方向是各向同性的, 并能用一维高斯分布函数拟合. 以 C_x 为例, 其在任意两个格点 x_1 和 x_2 之间的相关系数可以表示为

$$C_x = e^{[-(x_1 - x_2)^2 / 2(L_x)^2]} \quad (2)$$

其中, L_x 表示水平相关系数的衰减尺度, 一般两点之间的相关系数随着距离的增加而减小, 相关系数减小为 $e^{-1/2}$ 时的距离定义为衰减尺度, 可以通过模式资料计算得到. 对于垂直相关系数 C_z , 直接利用模式预报结果采用NMC方法计算得到.

从所有控制变量的背景误差标准差垂直廓线(图2)可以看出, 除O₃外, 各控制变量的背景误差标准差均随高度的增加而递减, 在边界层上部(模式20~25层, 1000~2000m)递减率最大. 不同控制变量的递减率有所不同, OINj的递减率最大. O₃的背景误差标准差先是随着高度的增加而增大, 在280~490m之间出现了一个峰值, 然后随高度递减, 平流层中也存在一个峰值. 各控制变量的背景误差标准差垂直廓线可以反映出其在不同高度的浓度分布, 气溶胶成分按地面浓度从大到小依次为OINj、O₃、NO3i、SO₂、NO₂、OINi、NH4i、SO4i、OCi、ECi, 其他变量的浓度从地面到空中都很小, 其误差标准差不超过0.05 $\mu\text{g m}^{-3}$ (CO单位是 mg m^{-3}).

背景误差水平相关系数决定了观测信息在水平方向的传播特征. 如前述, 本文设定不同控制变量之间互不相关, 只考虑各控制变量在不同距离处的自相关系

图2 各控制变量的背景误差标准差垂直廓线

数. 表2给出了各控制变量的水平相关系数的衰减尺度. 不同控制变量的水平衰减尺度存在一定的差异, 最大的是SO₄i(65.1km), 表明SO₄i观测信息传播距离远, 而最小的是CL_j (16.5km). 水平衰减尺度越大, 则由观测资料产生的同化信息在水平方向上传播的越远, 对背景场的影响范围越大.

背景误差垂直相关系数决定了污染物在垂直方向的传播特征, 各控制变量的垂直自相关系数统计结果如图3所示. 从图3中可以看出, 相关系数随着垂直距离的增大而减小, 但存在一定的结构差异. 气溶胶物种中SO₄i扩散的距离最远, CL_j扩散的距离最短, 这与水平传播特征相一致. CL(氯化物)和NA(钠盐)相对于其他物种而言, 垂直传播较短, 这与本身浓度低有关. 气体中CO的传播距离最远, NO₂的传播距离最短. 总体上污染物浓度都聚集在对流层内, 越靠近地面, 堆积越显著.

4 资料与方法

通过上文描述的同化方案, 本文设计了两组比较试验: 参照试验和同化试验. 参照试验不同化观测资料, 直接用模式前24h预报结果作为初始场, 记为Control; 同化试验将同化初始时刻的气溶胶和气态污染物观测资料, 用同化后的分析场作为初始场, 记为Assimilation. 两组试验从2017年10月11日开始至2017年11月10日结束, 以每天的00时(世界时, 下同)为初始时刻起报进行48h预报, 连续进行一个月的模拟试验. 气象场资料采用NCEP全球预报系统1°×1°、间隔6h的FNL再分析资料, 为模式提供气象初始场和侧边界条件. 排放源资料采用清华大学制作的2010年中国多尺度排放清单模型(<http://www.meicmodel.org/index.html>). 同化的污染物观测资料来自中国环境监测总站的“全国城市空气质量实时发布平台” (<http://106.37.208.233:20035/>), 包括1497个站点的实时监测数据. 我国空气质量监测站点分布极不均匀, 东部密集, 西部稀疏, 多集中于城市, 郊区、山区站点分布很少(图6、图7). 观测资料使用前首先进行了质量控制, 包括极值控制, 剔除PM_{2.5}大于600、PM₁₀大于700、SO₂大于350、NO₂大于250、O₃大于200、CO大于10的数据, 除CO浓度单位是mg m⁻³, 其余均是μg m⁻³. 其次是异常值处理, 剔除连续24h数值没有变化的记录, 以及将小于0的数据作

表 2 各控制变量的背景误差水平相关系数的衰减尺度

控制变量	衰减尺度 (km)	控制变量	衰减尺度 (km)
ECi	55.4	ECj	53.8
OCi	55.7	OCj	53.9
NO3i	51.2	NO3j	44.7
SO4i	65.1	SO4j	55.6
CLi	26.1	CLj	16.5
NAi	56.3	NAj	48.6
NH4i	58.4	NH4j	50.1
OINi	53.9	OINj	44.9
SO ₂	47.6	CO	54.4
NO ₂	39.5	O ₃	49.2

为异常值剔除掉.

为了定量评估同化对模式预报的改进效果, 引入相关系数(Correlation Coefficient, CORR)、均方根误差(Root Mean Squared Error, RMSE)和平均相对误差(Mean Fraction Error, MFE)等验证指标进行检验分析(Boylan和Russell, 2006). CORR反映了模式模拟值与观测值之间的相关性, RMSE和MFE量化了模式系统性误差. 两组试验相比较时, 首先将模式模拟值从网格点插值到观测点上, 然后用所有观测点的数据为样本, 计算出各指标的时间序列值, 分析同化的改善效果以及持续时间. 或者用单站在预报期限(48h)内的数据为样本, 计算出单站的各项指标值, 分析同化对不同地区污染物浓度预报的影响. 为了消除随机性的影响, 两组试验的统计结果取一个月的平均值, 作为同化的一般状况.

5 结果分析

5.1 初始场同化效果分析

同化的直接效果是改进化学初始场, 通过初始场的优化来提高模式对污染物的预报效果. 图4给出了同化和参照试验所用的初始场中污染物质量浓度与对应观测值的散点图, 从PM_{2.5}散点图4a可以看出, 蓝点分散在中心轴线两侧, 模式存在对部分PM_{2.5}模拟偏低的现象, 即对于观测值超过300μg m⁻³的站点, 模式模拟值大部分未超过100μg m⁻³. 同化后, 分析值(红点)较密集地分布在中心轴线两侧, 特别是对于观测值超过300μg m⁻³而模拟值未超过100μg m⁻³的那部分, 同化

图 3 各控制变量的背景误差垂直自相关系数

使其数值增大, 更接近观测值. 统计结果显示, CORR 由 0.34 提高至 0.85, 提高了 0.51; RMSE 由 $54.67 \mu\text{g m}^{-3}$ 降低至 $25.40 \mu\text{g m}^{-3}$, 降低了 $29.27 \mu\text{g m}^{-3}$ (53.5%); MFE 由 0.68 降低至 0.39, 减小了 0.29 (42.6%). 图 4b 是 PM_{10} 散点图, 数据点分布情况与 $\text{PM}_{2.5}$ 基本一致, 同化后的分析

场比背景场更接近观测场. 经过同化, CORR 由 0.29 提高至 0.84, 提高了 0.55; RMSE 由 $67.76 \mu\text{g m}^{-3}$ 降低至 $33.26 \mu\text{g m}^{-3}$, 减少了 $34.5 \mu\text{g m}^{-3}$ (50.9%); MFE 由同化前的 0.64 降低至 0.30, 减小了 0.34 (53.1%). PM_{10} 的 RMSE 降低幅度更大是由于叠加了 $\text{PM}_{2.5}$ 的效果. SO_2

图 4 模式初始场中污染物浓度模拟值与观测值的散点图

蓝点是参照试验中的观测-模拟数据点, 红点是同化试验中的观测-模拟数据点, 数据点由所有单次模拟的初始时刻(0000 UTC)数据组成, 直线表示模拟值与观测值相等的数据点, 各污染物: (a) $\text{PM}_{2.5}$, (b) PM_{10} , (c) SO_2 , (d) NO_2 , (e) CO , (f) O_3

的散点图4c中, 蓝点分布较乱, 靠近竖轴堆积, 以左偏的情况居多, 说明参照试验的背景场中 SO_2 模拟值严

重偏高, 这可能与 SO_2 化学性质比较活跃和模式选用的化学参数化方案有关. 同化处理后, 红点分布在中

心轴线的两侧, 虽然不是很密集, 但其分布的形状、走向与中心轴线保持的较好. 从指标上分析, CORR由0.12提高至0.60, 提高了0.48; RMSE由 $47.31\mu\text{g m}^{-3}$ 降低至 $16.95\mu\text{g m}^{-3}$, 降低了 $30.36\mu\text{g m}^{-3}$ (64.2%); MFE由0.93降低至0.51, 下降了0.42 (45.2%). 在 NO_2 散点图4d中, 红蓝点密集地分布在中心轴线两侧, 红点相比蓝点范围有所缩减. 值得注意的是, 观测值超过 $150\mu\text{g m}^{-3}$ 而参照试验中 NO_2 浓度值未超过 $50\mu\text{g m}^{-3}$ 的数据, 同化的提升作用明显, 使其更靠近观测值. 从验证指标分析, CORR由0.44提高至0.82, 提高了0.38; RMSE由 $22.53\mu\text{g m}^{-3}$ 降低至 $13.62\mu\text{g m}^{-3}$, 降低了 $8.91\mu\text{g m}^{-3}$ (39.5%); MFE由同化前的0.51下降至0.29, 减小了0.22 (43.1%). 从CO散点图4e可以看出, 蓝点几乎全位于轴线的下方, 大部分离轴线较远, 说明模式对CO的浓度模拟值严重偏低, 这可能与排放源估计偏低有关. 同化使得分析场中的CO浓度值普遍增大, 使其靠近观测值. 对于观测值较小($<2\text{mg m}^{-3}$)的部分, 同化后CO浓度值对称地分布在轴线的两侧, 而对于观测值较大的部分, 模拟值仍然低于观测值, 同化的提升作用不明显. 从指标上分析, CORR由0.27提高至0.74, 提高了0.47; RMSE由 0.97mg m^{-3} 降低至 0.51mg m^{-3} , 降低了 0.46mg m^{-3} (47.4%); MFE由同化前的0.83降低至0.25, 下降了0.58 (69.9%). 在 O_3 散点图4f中, 红、蓝点分布在中心轴线两侧, 红点比蓝点密集, 更靠近观测轴线. 同化使CORR由0.19提高至0.84, 提高了0.65; RMSE由 $29.63\mu\text{g m}^{-3}$ 降低至 $14.52\mu\text{g m}^{-3}$, 降低了 $15.11\mu\text{g m}^{-3}$ (51.0%); MFE由0.86降低至0.44, 降低了0.42 (48.8%).

5.2 预报场同化效果分析

受模式系统性误差、排放源的不确定性以及气象条件的影响, 同化对改善污染物预报的正效应会随预报时间的推移而衰减直至消失, 不同的污染物同化产生的改进效果和持续时间也不尽相同. 图5给出了两组试验中各污染物模拟值与观测值之间的验证指标在预报期限内随时间变化的曲线. 可以看出, 不管是CORR、RMSE, 还是MFE, 同化试验的气溶胶($\text{PM}_{2.5}$ 和 PM_{10})预报均优于参照试验, 同化对预报的提高能持续到48h以上. 两组试验的3个指标在初始时刻的差异最大, 说明同化对初始场有显著改善, 随着积分时间的延长, 同化试验的CORR逐渐降低, RMSE、MFE逐渐增大, 指标之间的差异呈波动式减小. 值得注意的

是, 两组指标之间的差异在预报的前几个小时内迅速减小, 表明同化的改善作用迅速衰减, 可能是受排放源强迫作用和垂直混合过程导致的(Jiang等, 2013). 积分到一定时间后, 差异缓慢减小, 两组曲线走向大体保持了一致. 就RMSE而言, PM_{10} 的同化效果在前4h内快速衰减, 而 $\text{PM}_{2.5}$ 在前8h内快速衰减, 持续时间比 PM_{10} 长, 另外 PM_{10} 的RMSE数值范围要比 $\text{PM}_{2.5}$ 大, 还有其空间相关系数比 $\text{PM}_{2.5}$ 小, 这些是由于 PM_{10} 是大颗粒物, 在空气中停留时间短, 传播距离比细颗粒物短造成的. 一般而言, 污染物浓度高其预报误差可能较大, 因此在一定程度上可以用模式预报的RMSE曲线来反映气溶胶浓度的日变化特征. $\text{PM}_{2.5}$ 的浓度峰值多出现在上午和夜间, 早晨浓度较低, 谷底出现在下午16时左右(尚可政等, 2018). PM_{10} 浓度的日变化比 $\text{PM}_{2.5}$ 更明显, 呈“双峰双谷”的特征. 峰值出现在夜间, 上午的浓度也较高, 波谷出现在早上7时和下午16时(马敏劲等, 2018; 尚可政等, 2018). 这些日变化特征与气象条件的日变化有关, 一般夜间地面辐射冷却作用强, 逆温层不利于污染物向上扩散, 还有夜间风场减弱, 不利于污染物水平输送, 这都会促使污染物浓度增大. 下午热力抬升作用强, 有利于污染物扩散稀释.

对气态污染物而言, 同化对CO的初始场以及之后预报的改善效果明显且能持续到48h以上. 随着预报时间的延长, 同化产生的正效应波动地衰减. 在初始场中引入观测资料后, 模式模拟值与观测值的相关性有了明显提高. RMSE时间序列中两个波谷特征很明显, 表明CO浓度的最低值出现在下午16时左右(马敏劲等, 2018; 尚可政等, 2018). 虽然同化对 SO_2 和 NO_2 的初始场有明显的改善, 但改善效果持续的时间较短, 这可能与 SO_2 、 NO_2 不稳定易参加化学反应和模式本身选用的化学参数化方案有关. 从RMSE和MFE来分析, 同化对 SO_2 预报的提高持续了8h, 之后和没有同化的参照试验非常接近, 几乎没有改善; 从CORR来分析, 同化对初始场产生的优势只维持了2h, 而且模式模拟值与观测值之间的相关性很低, 这可能与模式本身有关. RMSE曲线反映出 SO_2 浓度的日变化呈现出“双峰双谷”的特征, 峰值一般出现在夜间, 上午的浓度也较高, 波谷出现在早上4时、下午15时(马敏劲等, 2018; 尚可政等, 2018). NO_2 的统计结果显示, 不管是CORR还是RMSE都反映出同化对 NO_2 预报的改善效果较差, 只有初始场和之后的3h预报有改进, 而且部分时段同化试

图5 各污染物预报的验证指标曲线

蓝色实线是参照试验, 红色实线是同化试验. (a1)~(a6) CORR时间序列, (b1)~(b6) RMSE时间序列, (c1)~(c6) MFE时间序列

验的RMSE反而比参照试验略高,说明NO₂的预报误差还受其他因素的影响.但MFE表明同化的改善作用似乎持续的时间长一点,可以持续到9h左右.RMSE时间序列中出现的两个峰值表明NO₂浓度的日变化呈单峰型,峰值出现在夜间.O₃的统计结果表明,同化使相关性有了明显的提高,而且持续时间较长,基本上能持续到44h左右.RMSE和MFE反映出同化的正效应在开始的几小时内迅速衰减,初始场的优势持续了8h左右,之后同化的改善效果很微弱,可以忽略不考虑.MFE还反映出同化对不同时段内O₃预报的改善效果有所差异,对黄昏(8~10h)和早晨(22~24h)的预报改进较差.RMSE时间序列中出现了两个波峰,表明O₃浓度日变化呈单峰型,浓度最大值出现在17时左右(尚可政等, 2018).总体上SO₂和O₃的MFE数值较其他污染物大,表明模式对SO₂和O₃的预报误差较大.

5.3 单站同化效果分析

由于每个地区污染程度、排放源数据以及气象条件不同,导致同化效果可能呈现空间分布的差异性.通过比较两组试验在每个站点上的验证指标值,可以分析同化效果的空间分布情况.图6给出了观测站点上参照试验中各污染物48h预报验证指标平均值,可以看出各污染物预报效果存在明显差异.就MFE指标而言,在没有同化观测资料的情况下,总体而言,PM_{2.5}、PM₁₀和NO₂预报效果要优于SO₂、CO和O₃.各污染物预报效果呈现明显的空间差异,这与污染物浓度、气象条件以及排放源等因素的空间分布不同有关.为了进一步直观地分析同化效果,图7给出了观测站点上各污染物48h预报验证指标的平均差值分布(同化试验减去参照试验).CORR差值为正且数值越大,则同化的改进效果越明显;RMSE和MFE差值为负且数值越大,则同化的改善效果越显著.CORR和RMSE差值分布表明除个别站点外,几乎所有的站点都反映出同化对颗粒物(PM_{2.5}、PM₁₀)预报的改善效果.绝大多数站点上PM_{2.5}和PM₁₀的CORR提高了0~0.1, RMSE降低了0~10 μg m⁻³,四川盆地降低的更多(10~30 μg m⁻³),形成了一个低值中心.然而,MFE差值分布显示同化并没有提高山东半岛、东北南部和江苏东部地区PM_{2.5}的预报效果,但同化对这些地区PM₁₀预报都有提高,而且西部地区和东北北部的改善效果比较显著.对于SO₂而言,各指标分布不一致.CORR差值分布显示华北地

区预报的相关性降低了0~0.1.但RMSE和MFE表明,同化对华北地区的预报有改进作用, RMSE降低了5~20 μg m⁻³, MFE下降了0~0.2,而且幅度大于其他地区.对于NO₂而言,同化使得一半以上站点模拟的相关性提高了0~0.1,但RMSE和MFE表明,同化没有使东北、华北、华东、华中以及四川盆地预报的RMSE降低,由于其他因素的影响,这些地区的RMSE反而升高了,这也反映出同化对NO₂预报的正效应持续时间较短.CO的RMSE和MFE差值分布表明,除华北、华东和四川盆地外,同化使其他地区预报的RMSE和MFE都降低了,而且在中部地区形成了一个表明同化改进作用明显的低值带.但同化对相关性的提高不理想,有超过一半站点的CORR降低了0~0.2.对于O₃而言, RMSE和MFE差值分布相一致,除东北北部、西南和西北的一些地区外,同化对其他地区48h内的O₃预报都有改善效果,而且华南地区的改进幅度高于其他地区.CORR差值分布很明显地反映出同化并没有使华北地区预报的相关性得到提高.

6 总结与讨论

本文针对WRF-Chem中多物种多粒径段的MO-SAIC化学机制,设计了8类气溶胶物种、颗粒物和气态污染物质量浓度共20个同化控制变量的背景误差协方差,建立了可以同时同化气溶胶颗粒物和气态污染物的三维变分同化系统.

一个月的预报分析试验结果显示,设计的同化系统有效提高了气溶胶颗粒物和气态污染物浓度分析和预报水平.首先,由于气溶胶各物种浓度的分布差异,各控制变量的背景误差标准差、水平相关系数衰减尺度以及垂直自相关系数的结构存在差异.除O₃外,各控制变量的背景误差标准差均随高度增加而递减,而且在对流层上部递减率最大.500m以下浓度较大的气溶胶物种为NO₃i、OINj、NH₄i、SO₄i、OINi、OCi、ECi,其中OINj的浓度最大,其他物种的浓度很小.水平面上SO₄i的自相关系数衰减尺度最大(65.1km),即观测信息水平传播的距离最远,对背景场影响显著,而CLj的衰减尺度最小(16.5km),表明其浓度较低.垂直方向上,SO₄i传播的距离最远,CLj传播的距离最短.其次,同化对各污染物的初始场有显著的改善.经过同化,除SO₂(0.60)、CO(0.74)外,分析场中污染物质量浓

图6 参照试验观测点上各污染物预报的验证指标值

指标取所有单次模拟的平均值, 从上到下依次为 $PM_{2.5}$ 、 PM_{10} 、 SO_2 、 NO_2 、 CO 、 O_3 , 从左至右依次为相关系数、均方根误差和平均相对误差

图 7 观测点上各污染物预报的验证指标差值

指标差值由同化试验减去参照试验计算得到, 针对所有单次模拟取平均值, 从上到下依次为PM_{2.5}、PM₁₀、SO₂、NO₂、CO、O₃, 从左至右依次为相关系数差值、均方根误差差值和平均相对误差差值

度的相关系数达到0.8以上; 除NO₂(39.5%)、CO(47.4%)外, 均方根误差降低了50%以上; 除SO₂(0.51)外, 平均相对误差降低到0.5以下. 不同污染物同化产生的正效应持续时间和改善程度有所不同. PM_{2.5}、PM₁₀和CO的同化效果较为显著且能持续48h以上, SO₂和O₃的同化正效应能持续8h左右, 然而NO₂的同化改善效果较差, 仅仅持续了3h. 均方根误差时间序列曲线可以反映出各污染物浓度的日变化特征. 另外, SO₂和O₃模拟的平均相对误差数值较其他污染物大, 表明模式对SO₂和O₃的预报效果较差. 最后, 各污染物的同化效果存在空间分布的差异性. 除个别地区外, 同化对全国范围内的气溶胶质量浓度48h预报都有改进. 同化对华北地区48h内的SO₂浓度预报有明显的改进. NO₂的同化效果较差, 正效应的站点分布较分散, 没有明显提高某一地区的预报. 除华北、华东以及四川盆地外, 同化对其他地区CO预报有提高. O₃的同化效果也比较明显, 除西南和西北地区外, 同化对其他地区的预报都有改进, 而且华南地区的改进幅度高于其他地区.

一个月的同化模拟试验表明, 同化对气态污染物预报的改善效果持续时间较短, 特别是同化对NO₂预报的改进持续时间非常短. 相对于生命周期长的颗粒物PM_{2.5}和PM₁₀, 短寿命的化学物种如NO₂和O₃, 其光化学反应过程高度复杂非线性, 以小时为时间尺度, 而这些复杂的光化学反应过程在当前的化学机制中并没有得到精确的描述(Yang等, 2015), NO₂和O₃预报仍存在较大的不确定性, 因此预报精度在很大程度上取决于化学过程和物理传输过程; VOC (Volatile Organic Compounds)的初始场在一定程度上影响NO₂和O₃预报效果, 目前我国没有VOC的常规观测站点, 因此在化学初始场中也没有对VOC进行同化, 这也是导致NO₂和O₃同化效果持续时间短的原因. 对于生命周期长的化学物种如SO₂和CO, 化学反应过程相对较长并不以小时为时间尺度, 这意味着同化在一定程度上有提高其预报的能力. 因此对于生命周期长的物种同化对改进预报时效相对于寿命短的物种要好. 由于每个地区污染程度、污染物成分、污染物排放量以及气象条件存在着明显的差异, 导致同化效果可能呈现空间分布的差异性, 从而影响污染物预报改进幅度的空间分布差异.

为了持续提高预报的准确率, 应采用循环同化的方法, 多次引入观测信息, 充分融合观测值和模式背

景值, 给模式提供更准确的初始场, 使同化的改善效果显著且持续时间长.

致谢 感谢NCEP/NCAR提供的气象再分析资料和中国环境监测总站发布的PM_{2.5}、PM₁₀、SO₂、NO₂、CO和O₃观测资料.

参考文献

- 崔应杰, 王自发, 朱江, 付晴艳. 2006. 空气质量数值模式预报中资料同化的初步研究. *气候与环境研究*, 11: 616–626
- 韩素芹, 冯银厂, 边海, 铁学熙, 解以扬, 李向津, 孙玫玲. 2008. 天津大气污染物日变化特征的WRF-Chem数值模拟. *中国环境科学*, 28: 828–832
- 靳璐滨, 臧增亮, 潘晓滨, 王体健, 郝子龙, 蒋自强. 2016. PM_{2.5}和PM_{2.5–10}资料同化及在南京青奥会期间的应用试验. *中国环境科学*, 36: 331–341
- 马敏劲, 杨秀梅, 丁凡, 谭子渊, 李旭. 2018. 中国南北方大气污染物的时空分布特征. *环境科学与技术*, 41: 187–197
- 尚可政, 尚子澈, 贾晓红, 周开鹏, 杜晖. 2018. 中国大陆代表站空气污染物浓度特征分析. 第35届中国气象学会年会, S13大气物理学与大气环境. 191–204
- 薛文博, 王金南, 杨金田, 雷宇, 汪艺梅, 陈曦. 2013. 国内外空气质量模型研究进展. *环境与可持续发展*, 38: 14–20
- 张人禾, 李强, 张若楠. 2014. 2013年1月中国东部持续性强雾霾天气产生的气象条件分析. *中国科学: 地球科学*, 44: 27–36
- 赵子菁, 魏永杰, 张祥志, 秦玮, 谢慧芳. 2015. 南京市霾天气与主要气象条件的相关分析. *中国环境科学*, 35: 3570–3580
- Benedetti A, Fisher M. 2007. Background error statistics for aerosols. *Q J R Meteorol Soc*, 133: 391–405
- Binkowski F S, Roselle S J. 2003. Models-3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) model aerosol component 1. Model description. *J Geophys Res*, 108: 4183
- Bouttier F, Courtier P. 2002. Data assimilation concepts and methods March 1999. Meteorological Training Course Lectures Series. ECMWF, 776: 59
- Boylan J W, Russell A G. 2006. PM and light extinction model performance metrics, goals, and criteria for three-dimensional air quality models. *Atmos Environ*, 40: 4946–4959
- Chen D, Liu Z, Fast J, Ban J. 2016. Simulations of sulfate–nitrate–ammonium (SNA) aerosols during the extreme haze events over northern China in October 2014. *Atmos Chem Phys*, 16: 10707–10724
- Cheng X, Liu Y, Xu X, You W, Zang Z, Gao L, Chen Y, Su D, Yan P. 2019. Lidar data assimilation method based on CRTM and WRF-Chem models and its application in PM_{2.5} forecasts in Beijing. *Sci*

- Total Environ*, 682: 541–552
- Derber J, Bouttier F. 1999. A reformulation of the background error covariance in the ECMWF global data assimilation system. *Tellus A*, 51: 195–221
- Eibern H, Schmidt H. 1999. A four-dimensional variational chemistry data assimilation scheme for Eulerian chemistry transport modeling. *J Geophys Res*, 104: 18583–18598
- Elbern H, Schmidt H, Ebel A. 1997. Variational data assimilation for tropospheric chemistry modeling. *J Geophys Res*, 102: 15967–15985
- Elbern H, Schmidt H. 2001. Ozone episode analysis by four-dimensional variational chemistry data assimilation. *J Geophys Res*, 106: 3569–3590
- Errera Q, Daerden F, Chabrilat S, Lambert J C, Lahoz W A, Viscardy S, Bonjean S, Fonteyn D. 2008. 4D-Var assimilation of MIPAS chemical observations: Ozone and nitrogen dioxide analyses. *Atmos Chem Phys*, 8: 6169–6187
- Feng S, Jiang F, Jiang Z, Wang H, Cai Z, Zhang L. 2018. Impact of 3DVAR assimilation of surface PM_{2.5} observations on PM_{2.5} forecasts over China during wintertime. *Atmos Environ*, 187: 34–49
- Gao M, Guttikunda S K, Carmichael G R, Wang Y, Liu Z, Stanier C O, Saide P E, Yu M. 2015. Health impacts and economic losses assessment of the 2013 severe haze event in Beijing area. *Sci Total Environ*, 511: 553–561
- Grell G A, Peckham S E, Schmitz R, McKeen S A, Frost G, Skamarock W C, Eder B. 2005. Fully coupled “online” chemistry within the WRF model. *Atmos Environ*, 39: 6957–6975
- Jiang Z, Liu Z, Wang T, Schwartz C S, Lin H C, Jiang F. 2013. Probing into the impact of 3DVAR assimilation of surface PM₁₀ observations over China using process analysis. *J Geophys Res-Atmos*, 118: 6738–6749
- Liu Z, Liu Q, Lin H C, Schwartz C S, Lee Y H, Wang T. 2011. Three-dimensional variational assimilation of MODIS aerosol optical depth: Implementation and application to a dust storm over East Asia. *J Geophys Res*, 116: D23206
- Lin C, Wang Z, Zhu J. 2008. An Ensemble Kalman Filter for severe dust storm data assimilation over China. *Atmos Chem Phys*, 8: 2975–2983
- Li Z, Zang Z, Li Q B, Chao Y, Chen D, Ye Z, Liu Y, Liou K N. 2013. A three-dimensional variational data assimilation system for multiple aerosol species with WRF/Chem and an application to PM_{2.5} prediction. *Atmos Chem Phys*, 13: 4265–4278
- Niu T, Gong S L, Zhu G F, Liu H L, Hu X Q, Zhou C H, Wang Y Q. 2007. Data assimilation of dust aerosol observations for CUACE/Dust forecasting system. *Atmos Chem Phys Discuss*, 7: 8309–8332
- Parrish D F, Derber J C. 1992. The National Meteorological Center’s spectral statistical-interpolation analysis system. *Mon Wea Rev*, 120: 1747–1763
- Pagowski M, Grell G A. 2012. Experiments with the assimilation of fine aerosols using an ensemble Kalman filter. *J Geophys Res*, 117: D21302
- Pagowski M, Grell G A, McKeen S A, Peckham S E, Devenyi D. 2010. Three-dimensional variational data assimilation of ozone and fine particulate matter observations: Some results using the Weather Research and Forecasting-Chemistry model and Grid-point Statistical Interpolation. *Q J R Meteorol Soc*, 136: 2013–2024
- Saide P E, Kim J, Song C H, Choi M, Cheng Y, Carmichael G R. 2014. Assimilation of next generation geostationary aerosol optical depth retrievals to improve air quality simulations. *Geophys Res Lett*, 41: 9188–9196
- Song H, Wang K, Zhang Y, Hong C, Zhou S. 2017. Simulation and evaluation of dust emissions with WRF-Chem (v3.7.1) and its relationship to the changing climate over East Asia from 1980 to 2015. *Atmos Environ*, 167: 511–522
- Schwartz C S, Liu Z, McKeen S A. 2012. Simultaneous three-dimensional variational assimilation of surface fine particulate matter and MODIS aerosol optical depth. *J Geophys Res*, 117: D13202
- Tang Y, Pagowski M, Chai T, Pan L, Lee P, Baker B, Kumar R, Delle Monache L, Tong D, Kim H C. 2017. A case study of aerosol data assimilation with the Community Multi-scale Air Quality Model over the contiguous United States using 3D-Var and optimal interpolation methods. *Geosci Model Dev*, 10: 4743–4758
- Tombette M, Mallet V, Sportisse B. 2009. PM₁₀ data assimilation over Europe with the optimal interpolation method. *Atmos Chem Phys*, 9: 57–70
- Yang Y R, Liu X G, Qu Y, An J L, Jiang R, Zhang Y H, Sun Y L, Wu Z J, Zhang F, Xu W Q, Ma Q X. 2015. Characteristics and formation mechanism of continuous hazes in China: A case study during the autumn of 2014 in the North China Plain. *Atmos Chem Phys*, 15: 8165–8178
- Zaveri R A, Easter R C, Fast J D, Peters L K. 2008. Model for Simulating Aerosol Interactions and Chemistry (MOSAIC). *J Geophys Res*, 113: D13204

(责任编辑: 王体健)