

大气气溶胶干沉降研究进展

林官明^{1,2*}, 蔡旭晖¹, 胡敏^{1,2}, 李惠君³ (1.北京大学环境科学与工程学院, 北京 100871; 2.北京大学环境模拟与污染控制国家重点联合实验室, 北京 100871; 3.河南师范大学电子与电气工程学院, 河南 新乡 453007)

摘要: 从干沉降速度定义出发, 综述了过去几十年来国内外在气溶胶干沉降实验技术和理论方面的主要进展. 气溶胶粒子从大气向地表沉降的过程决定于颗粒物的粒径、密度和空气粘性系数, 同时受空气动力学阻力、粘滞层阻力和表面收集阻力的影响, 这些阻力分别与大气层温度、风速、相对湿度等微气象条件密切相关. 获取干沉降速度的方法主要有示踪法、梯度法和涡流相关法等. 风速的三维瞬时量、动能、摩擦速度、温度和涡旋扩散系数可由超声风速仪测定. 由于气溶胶具有很宽的粒径谱分布, 通常使用几台仪器(如串联式多级采样器、空气动力学粒径谱分布仪和扫描电迁移率颗粒物粒径谱仪)进行联合测量. 干沉降参数化方案中, 基于斯托克斯定律的物理模型着重于平衡重力、浮力和阻力的作用, 半经验方案则进一步考虑了大气湍流、分子运动以及表面捕获机制包括布朗扩散、碰撞、截留、反弹、热泳和扩散泳. 然而, 参数化方案预测结果在某些粒径段与外场测量数据仍存在显著差异. 结合目前干沉降研究存在的问题, 对今后气溶胶干沉降的研究方向和技术方法进行了展望.

关键词: 气溶胶; 干沉降速度; 干沉降通量; 干沉降模型; 热泳

中图分类号: X513 **文献标识码:** A **文章编号:** 1000-6923(2018)09-3211-10

An overview of atmospheric aerosol dry deposition. LIN Guan-ming^{1,2*}, CAI Xu-hui¹, HU Min^{1,2}, LI Hui-jun³ (1.College of Environmental Sciences and Engineering, Peking University, Beijing 100871, China; 2.State Joint Key Lab of Environmental Simulation and Pollution Control, Peking University, Beijing 100871, China; 3.College of Electronic and Electrical Engineering, Henan Normal University, Xinxing 453007, China). *China Environmental Science*, 2018,38(9): 3211~3220

Abstract: This paper presents a review of main research progresses on the aerosol dry deposition experiments and theoretical models over the past few decades, started with the definition of dry deposition velocity. Dry deposition of particles from the atmosphere to the earth is not only dependent on the aerosol size, the aerosol density and the air viscosity, but also affected by the aerodynamic resistance, the viscous resistance and the surface collection resistance, which are related to the micro-meteorological factors such as the atmosphere temperature, the wind speed and the relative humidity. The typical methods for the determination of dry deposition velocity include tracking technique, concentration gradient method and eddy correlation method. The instantaneous three velocity components, turbulent kinetic energy, friction velocity, temperature and eddy diffusion coefficient can be measured by the Ultrasonic Anemometer Thermometer. Aerosol size distribution is commonly obtained by the combined measuring devices (Serial multistage sampler, Aerodynamic Particle Sizer and Scanning Mobility Particle Sizer) due to the wide particle size range. In the parameterization of the particle dry deposition, the physical scheme is based on the Stokes' Law which emphasizes the equilibrium of gravitation, buoyancy and drag force, while the semi-empirical formulae introduce the atmospheric turbulence, the molecular motion and the surface collection mechanism which accounts for particle Brownian diffusion, collision, interception, rebound, thermophoresis and diffusiophoresis. However, the discrepancy between model predictions and field measurements is still significant for a certain particle size range. In view of the open problems in the dry deposition, perspectives on the future research directions and techniques are provided.

Keywords: aerosol; dry deposition velocity; dry deposition flux; dry deposition model; thermophoresis

目前, 大气中气溶胶粒子的来源、组成、迁移变化规律及对生物的影响和危害受到广泛关注. 大气气溶胶体系中分散的各种粒子也称为大气颗粒物^[1], 包括各种扬尘(沙尘、风扬尘、建筑尘、道路尘等)、地壳元素、各种燃烧过程和工业过程产生的碳黑、元素碳, 以及由气态污染物经二次转化生成的有机颗粒物(SOA)、硫酸盐、硝酸盐、铵盐, 还有少量的金属元素(铅、汞)、生物气溶胶、放射性核素等^[2].

干湿沉降是颗粒物移出大气的重要途径, 其中干沉降是指无降水条件下, 空气中的污染物通过湍流输送和重力作用向地面沉降的过程. 不如湿沉降那样相对集中, 干沉降作用时间长、范围广, 是干燥天气期间和干旱半干旱地区气溶胶的主要去除机

收稿日期: 2018-02-10

基金项目: 环境模拟与污染控制国家重点联合重点实验室基金

* 责任作者, 高级工程师, gmlin@pku.edu.cn

制^[3].它贯穿于整个大气边界层,并且大多数元素的干沉降通量都大于湿沉降^[4].气溶胶干沉降对区域辐射平衡、地表沉积、深海沉积和全球气候变化影响巨大^[5],国内外学者先后对不同阶段气溶胶干沉降研究工作所取得的成果进行了总结和评述^[6-9].空气动力学直径是气溶胶粒子最重要的物理特征之一,1nm~100 μm 的粒径分布范围决定了其动力学性质、光学特性、吸湿性和电学性质具有较大差异^[10];此外,气溶胶干沉降发生于湍流主导的大气边界层,其湍流边界层机理复杂,下垫面(森林、雪、城市、草地、裸地、湖面、海面等)特征各异,气象条件随时间和空间而变化,所以,气溶胶向地表的干沉降过程极难量化^[11].经过 50 多年的探索,干沉降实验技术取得了许多实用性成果.

大气颗粒物向地表沉降的过程可人为分 3 步^[12]:1)受湍流扩散支配的气溶胶由空中向地表粘滞层的输送;2)气溶胶由紧贴地面的粘滞层向地表的扩散,该粘滞层厚度仅 0.01~0.1cm;3)气溶胶被沉降表面捕获.整个沉降过程可以类比于电流或热传输的情形,经受各种阻力,这 3 个过程分别对应于空气动力学阻力、粘滞层阻力和表面收集阻力.许多研究人员试图建立干沉降速度随粒径变化的预测模型^[13-15],但是,气溶胶向地球表面的沉降不仅与粒径有关,而且还取决于颗粒物的其他物理和化学性质、大气湍流运动、下垫面特性和微气象条件等,诸多不确定因素往往导致预测误差^[16].在干沉降测量方面,以往的实测数据主要集中于植被表面,仅有少量文献涉及水面和冰雪表面.由于颗粒物种类的变异性大于气态物质,不同粒径气溶胶的捕获效率相差较大,实验方法的不同以及流动条件的不确定性导致各种测量结果之间缺乏可比性^[17-18].

本文在回顾干沉降研究历史的基础上,对大气气溶胶干沉降过程的测量技术和数学模型进行了较为全面的概括和总结,内容主要涵盖描述干沉降过程的物理量、测量技术与方法、影响干沉降过程的因素、干沉降参数化方案、表面捕获过程、干沉降速度模型比较等 6 个方面.

1 实验方法

1.1 干沉降速度与通量

干沉降速度 w_d 是表征干沉降过程的重要的物

理量,作为大气模式中表面质量输送的重要边界条件,它在空气动力学里定义为

$$w_d = -F/C(z) \quad (1)$$

式中:垂直方向向下 w_d 取值为正.干沉降通量 F 是从参考高度到地表之间的总悬浮颗粒物的通量,与颗粒物浓度 C 一样可直接测量获得^[19].定义为二者之比的干沉降速度属于间接测量的物理量.参考高度 z 对应于空气质量和放射性评估中由区域或全球传输模式决定的最低高度^[20],目前该值尚无统一标准,外场测量取值一般在 10~35m 之间.

严格讲,干沉降速度并非真正意义上的颗粒物的速度,只是因其具有速度量纲而被看作是水平速度和下降末速的合成.干沉降速度值通常有 2 种来源:现场测量^[21-22]和风洞实验^[23-24].直接在大气中测量获得的数据真实度高,但耗资较大、费时费力,数据点较少且测量结果往往局限于特定的风速、建筑物形状或地形等.风洞实验测量方便、准确、安全,气流参数如速度、压力、密度、温度等易于控制和改变,可满足各种试验要求,一般不受天气变化的影响,可以连续进行试验且费用低廉.因而,早在 1970 年人们就开始使用风洞进行干沉降研究^[25],所得到的气溶胶干沉降速度随粒径变化规律与大气实测结果趋势相同:粒径增加导致干沉降速度变化较大,直径大于 2 μm 的粒子,沉降速度随粒径的增大而急剧增加,因为粒子越大、重力沉降作用越大,当粒径大于 5 μm 时,粒子的干沉降速度基本上受重力控制;直径小于 0.1 μm 的爱根核粒子,随着粒径的减小,干沉降速度反而增加,这是因为尽管纳米粒子以分子运动为主,但静电沉降作用随粒径的减小而增大;重力与静电的共同作用使得积聚模态粒子的干沉降速度在粒径为 0.1 μm 至 2 μm 之间达到最小值.

要注意的是,风洞试验与现场测量的干沉降速度绝对值相差很大^[26-27],各种粒径尺度下的粒子干沉降速度比大气实测结果小几倍到一个数量级,这与风洞模拟实验为中性状态有关,即绝热情况下稳定边界层不受热通量的影响或热通量虽然存在但与风切变的作用相比微小得足以忽略不计,而现场测量通常处于不稳定大气层结之下,因此,风洞实验值得加强研究以突破此局限性.

1.2 测量技术

1.2.1 测量方法与仪器 对干沉降过程的测量可

以追溯到 20 世纪 40 年代末,为评估核武器试验中的“热”放射性大粒子以及滞留在大气中以核裂变产物为主的小颗粒引起的干沉降对环境的影响,研究人员开发了示踪法,即通过释放放射性标记或化学标记示踪粒子进而使用采集桶收集粒子来确定沉降量,并估算干沉降速度^[28]。这种方法一直沿用至今,如 Maro 等^[29]进行建筑物立面的干沉降研究时,将放射性核素 ^7Be 、荧光素钠、六氟化硫作为示踪物,通过高浓度气溶胶发生器注入风洞中,经迁移扩散之后,示踪粒子被收集在玻璃和 3 种涂层表面上。

20 世纪 70 年代,基于不同垂直高度的气溶胶粒子浓度差的梯度法以及基于涡旋协方差和功率谱的涡旋相关法^[30-31]开始投入使用。风速的 3 个瞬时量、动能、摩擦速度、温度和涡旋扩散系数由超声风速温度仪测定,气溶胶粒径和通量由风速仪和光谱仪联合获取。由于气溶胶具有很宽的粒径谱分布,很难用一台仪器测定,常用几台仪器同时测量得到,粒子的性质要求采用不同的物理原理采集或确定^[32]。例如,串联式多级采样器(MOUDI),采用撞击方式进行粒径切割;空气动力学粒径谱分布仪(APS)利用激光技术分离不同粒径的气溶胶粒子,并同时测定粒子光散射强度;扫描电迁移率颗粒物粒径谱仪(SMPS)使用静电分级器(DMA)测定粒径,凝聚粒子计数器(CPC)测定颗粒物数浓度,联合几种不同的仪器可以同时获得 1nm 到 20 μm 气溶胶粒子的数谱分布函数,进而计算颗粒物表面积浓度、体积浓度和质量浓度^[33-34]。

1.2.2 气溶胶收集 收集方法主要有 3 种:1)颗粒物从空气中自然沉降到采尘桶、盘或代用面上^[35-36],代用面有油脂润滑条、滤纸、培养皿、显微镜片、特氟龙板、大理石表面等;2)通过仪器中的采样膜或多孔介质过滤得到颗粒物;3)直接使用水面采样器,然后分离、烘干、称重。第 1 种方法适合直接测量,如叶面提取、通流和茎流、流域质量平衡、空气动力学设计表面、同位素示踪剂、积雪取样和云滴收集等,收集器几何形状与代用面性质对收集量具有较大影响^[37],回收效率通常为 60~80%;第 2 种方法常见于大气通量法中的各种仪器^[38],以纤维素膜的使用最为广泛,采集效率接近 100%,但缺点是对潮气敏感,采集细粒子的效率低,为此开发了其他专用性较强的采样膜如玻璃纤维膜、石英膜、塑料微孔薄

膜等^[29];第 3 种方法中,水面收集的独特性在于能够吸收几乎所有粒径的气溶胶。水面收集器配备储水器和水泵进行循环以免长期采样引起水饱和而导致沉降量被低估^[39],但采样时间和水深没有设立相关标准。

1.2.3 存在的问题 干沉降测量技术已经取得很多进步,但每种测量设备都具有一定的局限性。例如,MOUDI 每一级上样品的负荷量有限、易造成空白等人为误差,APS 的激光检测电路会出现假峰和叠加情况而导致测量误差。而且,不同实验方法存在测量和分析的非统一性,有些实验结果证明干沉降通量与环境浓度存在强相关性,但有些研究却结论相反^[40]。此外,气象因素和颗粒物本身的不确定性也会造成实验数据的较大差异。

1.3 影响干沉降过程的因素

气溶胶粒子从大气中降落到地面,其沉降过程决定于颗粒物的粒径、密度和空气粘性系数。许多外场实验和实验室实验都证实,干沉降速度强烈依赖于粒径^[41-42]。空气的运动粘度是温度的强函数,因此,温度对干沉降的作用不容忽视。一般而言,温度越高,大气混合度越高,大气稳定性下降引起空气湍流效应的变化,如果颗粒物浓度较高,这种湍流会导致颗粒分散,增大温度和干沉降速度之间的负相关,干沉降速度随之减小。但是,如果粒度落在粗粒子范围,温度升高造成粒子动量的增加,此时会发生正相关,致使干沉降速度增加;但对细颗粒,这种动量效应影响不大^[43]。

另一方面,气溶胶沉降到地表的干沉降速度受到空气动力学阻力、粘滞层阻力和表面收集阻力大小的作用,这些阻力分别与大气层温度、风速、相对湿度等气象条件密切相关。风速越高,加速颗粒物运输的摩擦速度越高,干沉降速度和风速之间存在较强正相关^[44];但在特殊场合,尤其是大暴雨后,这种关联度却很差,原因主要在于采样时颗粒物已经被雨水洗除。此外,相对湿度的增加将导致粒度增加,这种吸湿增长可以显著提高颗粒物的沉降速度^[45]。

水面和海面以多种形式影响气溶胶的干沉降过程,除吸附、捕获等表面过程之外,风与水流相互作用产生的波浪能够改变交换面和流线,沉降量随之而发生改变^[46]。如对黄海大气颗粒物养分浓度、溶

解度和沉降通量的研究显示,干沉降速度值在风暴期间为 0.68cm/s,正常日为 0.22cm/s,与陆地地面相比较低,代表了较低的干沉降通量^[47].但有些研究结果却得出相反的结论,例如,刘元隆等^[48]通过比较海滨城市和海洋气溶胶的粒径分布,发现无论单模态还是细模态,谱分布峰值明显偏低或缺失,远海无机氮的质量浓度远低于近海城市,但气溶胶干沉降速度较为接近而粒径分布差异较大,远海气溶胶无机氮的干沉降通量远超近海城市.

采样点环境类型是影响干沉降过程的另一重要因素^[49].自然界中,植物种类、叶子特征如尺寸、叶毛和结节的存在都会影响层流边界层的生成和连续性,从而直接关系到颗粒物的捕获效率.如果某采样场地被树木包围,叶子会捕获悬浮颗粒并减少空气中的污染物.此外,粗糙表面会导致空气流动特性和边界层发生变化.例如,粗糙元之间的风速降低将导致颗粒物的 Stokes 停止距离变短,沉降通量随之增大.因此,气溶胶在粗糙表面比光滑表面具有更高的干沉降速度.

气溶胶在冰雪面上的干沉降过程受 2 种机制控制,一种是物理机制,包括重力沉降、湍流运动、布朗运动、惯性撞击、静电作用等;另外一种化学机制,包括化学溶解、反应扩散等,如高山冰雪大气中的臭氧和过氧化氢促使气溶胶容易发生光化学氧化反应^[50].实验结果揭示,辐射区干沉降速度的降低缘自沉降过程中伴随的 HNO_3 光解作用,造成硝酸盐在两种雪盖表面上干沉降速度差异的主要原因是暴露时间的不同以及高海拔地区具有较高的光照强度和紫外辐射.

综上所述,影响干沉降过程的因素有很多,表 1 罗列了直接与间接测量的主要相关物理参数.干沉降速度与粒径、摩擦速度、粗糙度、风速、大气稳定度之间存在着密切关系^[51-55].其中,空气动力学参数摩擦速度 u_f 和表面粗糙度 z_0 由式(2)决定

$$u_z = \frac{u_f}{\kappa} \ln \left(\frac{z-d}{z_0} \right) \quad (2)$$

式中: u_z 是垂直高度 z 处的风速, u_f 、 d 、 κ 分别为摩擦速度、零平面位移和 von Karman 常数^[56].

此外,值得关注的是不同参数之间相互作用将增大干沉降研究的不确定性.研究显示^[57],干沉降速度与摩擦速度成正比,并具有明显的粒径依赖性.对

于给定的风速,粗糙度将增加摩擦速度.与摩擦速度相对应的是受表面粗糙度和风速影响的雷诺切应力,摩擦速度一般为平均风速的百分之几.对于较高或较密的植被,零平面位移显著影响粗糙度和阻力系数^[58].地转阻力系数是摩擦速度与地转风速之比,取决于 Rossby 数,Rossby 数则直接与粗糙度有关^[59].粗糙度与大气稳定性有关^[60],大气稳定性、相对湿度和运动粘度则强烈依赖于温度.因此,在对大量实验数据进行有效分析和关联方面,未来还有很大的发展空间.

2 理论模式

直接测量干沉降通量过程复杂且成本高昂,因而近几十年来研究人员常常采用间接法来进行估算^[61-62].间接法是一种基于干沉降通量定义的推理方法,干沉降速度从物理模型或其他参数化方案中获取,气溶胶浓度则由测量得到,二者乘积即为干沉降通量.

2.1 干沉降参数化方案

假设流体连续,流动状态为层流,粒径符合牛顿定律^[63],经数学推导出斯托克斯定律,进而可估算 Stokes 停止距离和下降末速

$$w_i = \frac{D_p^2 g}{18\mu} (\rho_p - \rho_a) \quad (3)$$

式中: D_p 为粒径, ρ_p 为密度, μ 为动力学粘性系数.

然而,大粒径颗粒物不适用于斯托克斯定律,因为大粒子周围的流动状态变为湍流,惯性力对流场的作用大于黏滞力,就不能再对流体绕过球体时做忽略包含速度平方项的近似处理.对于小的颗粒物,由于粒径与分子间平均距离一样或者更小,流体不能再作为连续介质处理,运用斯托克斯定律得到的结果不再准确,虽然引入 Cunningham 修正因子^[7]得以补偿颗粒脱离气体分子而发生的滑动现象,但对于粒径超过 30 μm 或小于 0.36 μm 的颗粒物,预测结果仍不理想.

鉴于斯托克斯定律仅限于浮力、重力和空气阻力之间的平衡,没有考虑颗粒物对沉降表面的惯性撞击^[64],Slinn^[65]建议将边界层划为两层:从参考高度到植被顶部的空气动力学层与植被顶部到地表的植被层.在空气动力学层中,气流输送和湍流扩散是干沉降过程的主导机制,颗粒物下落时遇到的阻碍用空

气动力阻抗 r_a 表征,并通过积分动量方程获得;植被层最主要的特征是沉降表面对颗粒物的吸附作用,用植被表面阻抗 r_s 描述,干沉降速度因而定义为

$$v_d = v_g + (r_a + r_s)^{-1} \quad (4)$$

式中:重力沉降速度 v_g 贯穿于整个沉降过程,与速度单位一致;表面阻抗与风速、摩擦速度、空气动力学耗散系数和捕获效率有关,捕获效率由表面特性与捕获过程共同确定。

从 1982 年至今,Slinn 模型因形式简单而得到广泛的应用,成为国内外研究干沉降的最重要的方案

之一^[66],例如, Zhang 等^[67]在充分考虑湿度影响的基础上开发了适用于亚微米粒子的干沉降速度模型。这些模型属于半经验方案,特点是不受颗粒物大小和性质的制约,也与温度、湿度和风速等微气象条件无关,但是,由于各个阻抗需要根据地表特征和季节变化通过实验来确定,尤其是表面捕获参数决定于布朗扩散、碰撞、拦截和反弹等表面过程,诸多不确定性因素使得预测结果与实测值在特定的粒径范围内相差很大,在某个粒径段甚至可达到 2 个数量级以上(图 1)。

表 1 气溶胶干沉降过程相关物理量直接与间接测量结果

Table 1 Direct and indirect measurements of the physical quantities relevant to aerosol dry deposition processes

文献	年份	沉降表面	$z_0(\text{cm})$	$d_p(\mu\text{m})$	$u(\text{cm/s})$	$w_d(\text{cm/s})$	$z_R(\text{m})$	大气稳定度	风速(m/s)
[7]	1972	谷物与草地	1.2	23.6	27~135	1.9~7.8	0.2		
[26]	1987	农田		0.01~47		0.24~5.0		I	0~4m/s
[57]	1997	冷杉	136			0.7	30	N/I	
[51]	2000	松树	120	0.01~0.02	53~102	1.08~3.9	23	N/I	
[52]	2001	收集盘		0.1~35		0.1~13.8			4.2~6.2
[77]	2002	矮草	2.2	0.1~0.2	18	0.87±0.09	2.86	N	
[19]	2003	润滑条		0.09~33.06		0.21~89.3			2.18~5.89
[53]	2004	松树	100	0.05		0.43±0.06	22		
[43]	2006	海滨		0.05~0.06	20~66	$w_d = 0.006u_f$	35	L >50m	
[18]	2007	松树	120	0.015~0.04	8~128	0.3~2.8	22	L >100m	
				0.05~0.08		0.3~2.1			
				0.03		0.5~4			
[80]	2012	城市		TSP		0.6~2.64			0.5~1.6
[54]	2013	玻璃(WT)	0.0085	0.06~0.46	6	0.0012		S	1.3
		水泥(WT)	0.014	0.07~0.54	7	0.0018			
		草(WT)	0.44	1	13	0.026			
		植被(WT)		1.1		0.93			
[82]	2014		0.288	12	0.5	3.1	15	S	
				40		11			
		沙地(WT)	0.014	2.2	0.32	0.8	15	S	
		水面(WT)	0.03	7.5	0.15	2	25	S	
[55]	2016	阔叶林	1.15	2.5	0.21	0.98	10	1/L=-0.01	0.46±8.18
[72]	2017	水面		0.18~0.9	5~41	0.00045~0.0009		S	1~9.5

注:TSP指总悬浮颗粒物; w_d 、 u_f 、 L 分别是气溶胶干沉降速度、摩擦速度、Monin-Obukhov 长度;S为中性大气稳定度,I为不稳定状态;WT代表风洞实验结果。

2.2 表面捕获过程

研究壁面捕获过程的文献相对较少,对表面捕获效率中各参数的确定以及各种表面捕获过程的影响尚未达成共识。研究认为^[68-69],颗粒物在沉降表面被捕获的主要物理机制为布朗扩散、截留、碰撞和反弹。直径小于 $10\mu\text{m}$ 的气溶胶粒子在大气中受到来自各个方向的随机撞击,不同物质彼此进入对方而产生无化学反应的非对流性扩散,称为布朗扩

散。Petroff 等^[7]和李卓群等^[8]在综述中指出,布朗扩散可以用著名的舍伍德数 S_h (Sherwood number)和雷诺数(Re)定量描述,但不同文献中 S_h 值相差较大;截留是指随流场流动的惯性较小的颗粒在距离壁面小于半个粒径时被壁面捕获,它与粗糙元的尺寸、间距、粗糙元表面的微小特征以及摩擦速度有关^[70];碰撞描述惯性较大的颗粒因不能跟随空气流动而碰撞表面的现象,由斯托克斯数 S_t 决定, S_t 数与粒子

弛豫时间和摩擦速度的乘积成正比^[71];反弹指运动中的大颗粒遇到壁面后朝着相反的方向弹回,引入式(5)以补偿反弹引起的表面收集的减少.

$$R = \exp(-b/\sqrt{S_1}) \quad (5)$$

式中: b 为经验常数.

关于表面过程的最新研究是在风洞中模拟水面上方亚微米气溶胶粒子的干沉降,模型研究与实验结果均揭示出扩散泳(Diffusiophoresis)、特别是热泳(Thermophoresis)的重要作用^[72].热泳是在热流及温差推动势下的流体中粒子的运动.气体中的颗粒热泳是指由于热区域的高能量气体分子撞击粒子的动量比低温区气体分子带给粒子的动量大,因而在总体上表现为颗粒物向着温度梯度的反方向移动,并沉积于低温表面上.Calec 等^[72]发现,当空气和水之间的温差低于 -3°C 时,在沉积层转移系数中添加扩散泳速度与热泳速度,能够大幅提高实验

数据与模型之间的一致性,并且干沉降速度与温度呈负相关,但这与 Lo 等^[73]的结论正相反,后者认为,当 ΔT 增加时,大气不稳定性的增加导致干沉降速度增大.

值得注意的是,模型研究通常都假设沉降表面的气溶胶浓度为零,但这与实际情况并不相符,因为 1)地球表面的颗粒物始终存在^[74];2)即便最初是零,随着干沉降的发生和持续,地表气溶胶浓度不再能够保持零值;3)颗粒物二次悬浮现象表明地面确实存在一定数量的颗粒物^[75].但迄今为止,对气溶胶再悬浮的研究非常少.Pryor 等^[76]在森林上方测量干沉降通量和浓度,拟合实验数据后得到负截距,暗示双向通量的存在.尽管向上的惯性运动足以克服颗粒物沉降可能是导致负向通量的原因,但颗粒物的二次悬浮也可能对向上通量有所贡献,未来有必要进行进一步的实验研究和数学模拟.

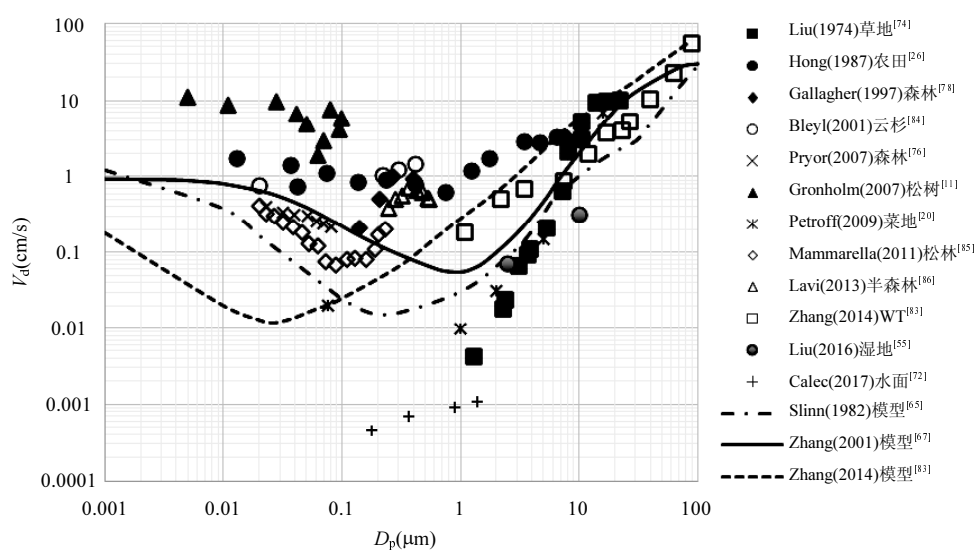


图 1 气溶胶干沉降速度实测值与模型计算结果的粒径分布

Fig.1 Aerosol size distributions of measurements and predictions of dry deposition velocity

2.3 干沉降速度模型的比较

干沉降理论研究中,物理模型因为相对严格的理论推导而占据主要地位,但前提假设、湍流边界层的复杂多变以及输入参数的不确定性往往导致预测结果的可靠性下降.相比而言,经验公式源于实验测量数据,更有实用价值,从而成为描述干沉降过程的另一种有效形式.例如,Wyers 等^[57]发现干沉降速度与摩擦速度成正比,沿着这一思路,Hicks 等^[77]建立了更为一般的形式,

$$v_d/u_f = a S_c^b \quad (6)$$

式中:常数 a 由表面特性决定.根据干沉降速度与表面粗糙度的对数关系^[78],Vong 等^[79]在利用摩擦速度进行无量纲处理后,得到植被地表的干沉降速度公式,揭示了粗糙度、莫宁·奥布霍夫长度 L 和叶面积指数 LAI 的重要作用.此外,也有一些研究直接把干沉降速度表示为粒径^[80]、温度或湿度等物理量的函数^[81].经验公式的缺陷是仅为区域性适合,粒径应用范围较窄.

Wesely^[82]借助电路的阻抗概念和欧姆定律,定义干沉降速度为 $v_d=(R_a+R_b+R_c)^{-1}$,其中,空气动力阻抗 R_a 控制颗粒从大气到沉降表面的传输,与风速和浮力引起的磁通梯度有密切关系, R_b 和 R_c 分别代表准层流层阻抗和地表层阻抗.尽管 Wesely 模型解析形式简单而应用较多,但对重力沉降和表面粗糙度的影响并没有充分考虑^[82].为此,Zhang 等^[83]在考虑风力间歇性作用的基础上,采用拖动分割理论开发了一个新模型

$$w_d = \left(r_g + \frac{r_s - r_g}{\exp(r_a - r_g)} \right)^{-1} \quad (7)$$

式中: r_g 为重力阻抗,定义为粒子下降末速 w_t 的倒数; r_a 为空气动力阻抗,与布朗扩散系数和涡旋扩散系数有关;表面收集阻抗 r_s 由剪切应力、捕获效率、Schmidt 数(S_c)和无量纲粒子弛豫时间共同决定; S_c 数定义为空气的运动粘度 ν 与粒子的分子扩散系数之比.经 4 个不同表面的风洞数据检验,该模型在预测粗糙表面上的颗粒物沉降时效果较好,但模型包含的许多经验常数增加了输入数据的变异性,并且粗糙元素之间的关系以及对捕获效率的影响并不清楚.

目前,模型估算结果只在某些特定的粒径段与实测数据相吻合,不同类型沉降表面上的输入参数对模型输出的影响仍不明确,所以,现有理论方案不具备广泛的时间和空间适应性.

3 结论

近几十年来,研究人员在大气气溶胶干沉降领域取得了以下重要进展.

3.1 在实验技术方面,颗粒物空气动力学粒径和通量、气溶胶数谱分布函数、风速的 3 维瞬时量、动能、摩擦速度、温度和涡旋扩散系数等均可通过仪器测定,数据相对可靠.然而,气溶胶向地球表面的沉降决定于颗粒物的物理化学性质、大气湍流、捕获表面特性和微气象条件等诸多因素,以往的每个实验只是针对几个参数进行较为简单的测量,因此,为深入了解气溶胶干沉降的特点和变化规律,需要开展不同粒度和时间尺度的连续观测和立体监测,使测量的物理参数更全面、记录更充分,从而建立各种相关物理量的完整数据库.同时,有必要对不同实验

方法和测量结果进行分析与对比,减少或消除实验方法不同造成的数据差异.

3.2 理论机制上,物理模型平衡了重力、浮力与空气阻力的作用,半经验方案则综合考虑空气动力学机制如气流输送和湍流扩散,以及颗粒物被表面捕获的物理机制,包括布朗扩散、截留、碰撞、反弹、热泳和扩散泳.一些无量纲参数相继被开发应用,如 Schmidt 数、Sherwood 数、Stokes 数以及无量纲粒子弛豫时间等.但是,干沉降速度预测模型研究仍然面临着一些问题的挑战:a)上述方案大都建立在简化的基础上,如假设壁面形态均匀、表面颗粒物浓度为零、流场在水平方向均一等;b)半经验方案把颗粒物向地表沉降的过程分为 2 层或 3 层会引起函数的不连续.所以,如何模拟气溶胶干沉降的真正状态和真实过程,还需做进一步研究.

3.3 实测结果与模型评估表明,描述气溶胶干沉降过程的参数具有相互影响和相互作用的特征,如自由流速度和摩擦速度都对干沉降速度有所贡献,但二者之间也存在着相互关联;此外,模型输入参数之间的复杂关系会导致放大某些参数的不确定性而抑制其他参数,造成模型预测结果与实测值相差较大.因此,今后有必要深入研究参数之间的耦合关系,定量分析模型输入和输出参数的敏感度,这样才能更好地构建未来的集合预测模型,以提高气溶胶干沉降模型预报的准确性.

参考文献:

- [1] 胡敏,唐倩,彭剑飞,等.我国大气污染物来源及特征分析[J]. 环境与可持续发展, 2011,5:15-19.
- [2] Aba A, Al-Dousari A M, Ismaeel A. Depositional characteristics of ⁷Be and ²¹⁰Pb in Kuwaiti dust [J]. J. Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2016,307(1):15-23.
- [3] Pan Y P, Wang Y S. Atmospheric wet and dry deposition of trace elements at 10 sites in Northern China [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2015,15(20):951-972.
- [4] 姚利,刘进,潘月鹏,等.北京大气颗粒物和重金属铅干沉降通量及季节变化[J]. 环境科学, 2017,38(2):423-428.
- [5] 熊洁,赵天良,韩永翔,等.1995-2004 年东亚沙尘气溶胶的模拟源汇分布及垂直结构[J]. 中国环境科学, 2013,33(6):961-968.
- [6] Sehmel G A. Particle and gas dry deposition: a review [J]. Atmospheric Environment, 1980,14(9):983-1011.
- [7] Petroff A, Mailliat A, Amielh M, et al. Aerosol dry deposition on vegetative canopies, Part I: Review of present knowledge [J]. Atmospheric Environment, 2008,42(16):3625-3653.
- [8] 李卓群,张洁,黄宁,等.粉尘干沉降研究[J]. 中国沙漠, 2011,

- 31(30):639–648.
- [9] Mohan S M. An overview of particulate dry deposition: measuring methods deposition velocity and controlling factors [J]. *International Journal of Environmental Science and Technology*, 2016,13(1):387–402.
- [10] Yue D L, Hu Min, et al. Variation of particle number size distributions and chemical compositions at the urban and downwind regional sites in the Pearl River Delta during summertime pollution episodes [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2010,10(19):9431–9439.
- [11] Gronholm T, Aalto P, Hiltunen V, et al. Measurements of aerosol particle dry deposition velocity using the relaxed eddy accumulation technique [J]. *Tellus B* 2007,59(3):381–386.
- [12] Wesley M L, Hicks B B. A review of the current status of knowledge on dry deposition [J]. *Atmospheric Environment*, 2000,34(12):2261–2282.
- [13] Guha A. A unified Eulerian theory of turbulent deposition to smooth and rough surfaces [J]. *Journal of Aerosol Science*, 1997,28(8):1517–1537.
- [14] You R, Zhao B, Chen C. Developing an Empirical Equation for Modeling Particle Deposition Velocity onto Inclined Surfaces in Indoor Environments [J]. *Aerosol Science and Technology*, 2012, 46(10):1090–1099.
- [15] Santiago J L, Martilli A, Martin F. On Dry Deposition Modelling of Atmospheric Pollutants on Vegetation at the Microscale: Application to the Impact of Street Vegetation on Air Quality [J]. *Boundary-Layer Meteorology*, 2017,162(3):451–474.
- [16] 闫文君,刘敏,刘世杰,等.基于 CMAQ 模式的中国大气 BaP 迁移转化模拟研究 [J]. *中国环境科学*, 2016,36(6):1681–1689.
- [17] Guo X Y, Ji H B, Li C, et al. The sources of trace element pollution of dry depositions nearby a drinking water source [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2017,24(4):3829–3842.
- [18] Zhao L, Lun X, Li R, et al. Deposition of PM_{2.5} Sulfate in the Spring on Urban Forests in Beijing, China [J]. *Atmosphere*, 2017,8(1):3.
- [19] Lestari P, Oskouie A K, Noll K E. Size distribution and dry deposition of particulate mass, sulfate and nitrate in an urban area [J]. *Atmospheric Environment*, 2003,37(18):2507–2516.
- [20] Petroff A, Zhang L, Pryor S C, et al. An extended dry deposition model for aerosols onto broadleaf canopies [J]. *Aerosol Science* 2009, 40(3):218–240.
- [21] Aksu R, Horvath R, Kaller W. Lahounik, et al. Measurement of the deposition velocity of particulate matter to building surfaces in the atmosphere [J]. *J. Aerosol Science*, 1996,27(Suppl 1):675–676.
- [22] Al-Taani A A, Rashdan M, Khashashneh S. Atmospheric dry deposition of mineral dust to the Gulf of Aqaba, Red Sea: Rate and trace elements [J]. *Marine Pollution Bulletin*, 2015,92(1/2):252–258.
- [23] Dai W, Davidson C I, Etyemezian V, et al. Wind Tunnel Studies of Particle Transport and Deposition in Turbulent Boundary Flows [J]. *Aerosol Science and Technology*, 2001,35(5):887–898.
- [24] Huang N, Zhang J. Wind-tunnel Experiment on Dust Atmosphere-surface exchange:Emission and Dry Deposition [J]. *Procedia IUTAM*, 2015,17:129–135.
- [25] Sehmel G A. Particle deposition from turbulent airflow [J]. *J. Geophysical Research*, 1970,75(9):1766–1781.
- [26] 洪钟祥,周乐义,沈剑青.气溶胶粒子干沉降速度的测量 [J]. *大气科学*, 1987,11(2):138–144.
- [27] Price T A, Stoll R, Veranth J M, et al. A wind-tunnel study of the effect of turbulence on PM₁₀ deposition onto vegetation [J]. *Atmospheric Environment*, 2017,159(6):117–125.
- [28] Hardy E P, Harley J H. Environmental contamination from weapons tests. U. S. AEC Health and Safety Lab [R]. Report, HASL-42A, 1958.
- [29] Maro D, Connan O, Flori J P, et al. Solier Aerosol dry deposition in the urban environment: Assessment of deposition velocity on building facades [J]. *J. Aerosol Science*, 2014,69(3):113–131.
- [30] Everett R G, Hicks B B, Berg W W, et al. An analysis of particulate sulphur and lead gradient data collected at Argonne National Laboratory [J]. *Atmospheric Environment*, 1979,13(7):931–934.
- [31] Wesely M L, Hicks B B, Dannevik W P, et al. An eddy-correlation measurement of particulate deposition from the atmosphere [J]. *Atmospheric Environment*, 1977,11(6):561–563.
- [32] Meier J, Wehner B, et al. Hygroscopic growth of urban aerosol particles in Beijing (China) during wintertime: a comparison of three experimental methods [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2009, 9(18):6865–6880.
- [33] Kumar R, Kumari K M. Evaluation of dry deposition of acidifying N compounds to vegetation [J]. *Environmental Science and Pollution Research*, 2015,22(23):18437–18445.
- [34] Huang L, McDonald-Buller E C, McGaughey G, et al. The impact of drought on ozone dry deposition over eastern Texas [J]. *Atmospheric Environment*, 2016,127(2):176–186.
- [35] Noll K E, Fang K Y P, Watkins L A. Characterization of the deposition of particles from the atmosphere to a flat plate [J]. *Atmospheric Environment*, 1988,22(7):1461–1468.
- [36] Lyman S N, Gustin M E, Prestbo E M, et al. Testing and application of surrogate surfaces for understanding potential gaseous oxidized mercury dry deposition [J]. *Environmental Science & Technology*, 2009,43(16):6235–6241.
- [37] Qi J, Li P, Li X, et al. Estimation of dry deposition fluxes of particulate species to the water surface in the Qingdao area, using a model and surrogate surfaces [J]. *Atmospheric Environment*, 2005,39(11):2081–2088.
- [38] 王开扬,郭文帝,闫雨龙,等.太原市干沉降中水溶性离子特征 [J]. *环境化学*, 2016,35(7):1354–1360.
- [39] Shahin U M, Holsen T M, Odabasi M. Dry deposition measured with a water surface sampler: a comparison to modeled results [J]. *Atmospheric Environment*, 2002,36(20):3267–3276.
- [40] Yi S M, Totten L A, Thota S, et al. Atmospheric dry deposition of trace elements measured around the urban and industrially impacted NY–NJ harbor [J]. *Atmospheric Environment*, 2006,40(34):6626–6637.
- [41] Goss N R, Mladenov N, Seibold C M, et al. Quantifying particulate matter deposition in Niwot Ridge, Colorado: collection of dry deposition using marble inserts and particle imaging using the FlowCAM [J]. *Atmospheric Environment*, 2013,80(12):549–598.
- [42] Brunet Y, Finnigan J J, Raupach M R. A wind tunnel study of air flow in waving wheat: single point velocity statistics [J]. *Boundary-Layer Meteorology*, 1994,70(1/2):95–132.

- [43] Pryor S C. Size-resolved particle deposition velocities of sub-100nm diameter particles over a forest [J]. *Atmospheric Environment*, 2006, 40(32):6192–6200.
- [44] Zhang L, Fang G C, Liu C K, et al. Dry deposition fluxes and deposition velocities of seven trace metal species at five sites in Central Taiwan—a summary of surrogate surface measurements and a comparison with model estimation [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2012,12(7):3405–3417.
- [45] Okubo A, Takeda S, Obata H. Atmospheric deposition of trace metals to the Western North Pacific Ocean observed at coastal station in Japan [J]. *Atmospheric Research*, 2013,129–130(7):20–32.
- [46] Zufall M J, Dai W, Davidson C I. Dry deposition of particles to wave surfaces: II. Wind tunnel experiments [J]. *Atmospheric Environment*, 1999,33(26):4283–4290.
- [47] Shi J H, Zhang J, Gao H W, et al. Concentration, solubility and deposition flux of atmospheric particulate nutrients over Yellow Sea [J]. *Deep Sea Research part II*, 2013,97(12):43–50.
- [48] 刘元隆,张银菊,黄 帅,等.典型海滨城市与海洋气溶胶中水溶性离子的粒径分布 [J]. *厦门大学学报(自然科学版)*, 2016,55(7):531–539.
- [49] Cavalcante R M, Rocha C A, Santiago Í S, et al. Influence of urbanization on air quality based on the occurrence of particle-associated polycyclic aromatic hydrocarbons in a tropical semiarid area (Fortaleza-CE, Brazil) [J]. *Air Quality Atmosphere and Health*, 2017,10(4):437–445.
- [50] 唐一平,姚檀栋.气溶胶在雪面干沉积研究进展 [J]. *冰川冻土*, 2007, 29(5):738–745.
- [51] Buzorius G, Rannik U, Makela J M, et al. Vertical aerosol fluxes measured by eddy covariance methods and deposition of nucleation mode particles above a Scots pine forest in southern Finland [J]. *J. Geophysical Research*, 2000,105(D15):19905–19916.
- [52] Brewer R, Belzer W. Assessment of metal concentrations in atmospheric particles from Burnaby Lake, British Columbia, Canada [J]. *Atmospheric Environment*, 2001,35(30):5223–5233.
- [53] Gaman A, Rannik U, Aalto P, et al. Relaxed eddy accumulation system for size resolved aerosol particle flux measurements [J]. *J. Atmospheric and Oceanic Technology*, 2004,(21):933–943.
- [54] Rouspard P, Amielh M, Maro D, et al. Measurement in a wind tunnel of dry deposition velocities of submicron aerosol with associated turbulence onto rough and smooth urban surfaces [J]. *J. Aerosol Science*, 2013,55(1):12–24.
- [55] Liu J, Zhu L, Wang H. Dry deposition of particulate matter at an urban forest, wetland and lake surface in Beijing [J]. *Atmospheric Environment*, 2016,125(1):178–187.
- [56] Vong R J, Vong I J, Vickers D, et al. Size-dependent aerosol deposition velocities during BEARPEX'07 [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2010,10(12):5749–5758.
- [57] Wyers G P, Duyzer J H. Micrometeorological measurement of the dry deposition flux of sulfate and nitrate aerosols to coniferous forest [J]. *Atmospheric Environment*, 1997,31(3):33–343.
- [58] Dong Z B, Gao S Y, Fryrear D W, Drag coefficients, roughness length and zero-plane displacement height as disturbed by artificial standing vegetation [J]. *J. Arid Environments*, 2001,49(3):485–505.
- [59] Esau I N, Zilitinkevich S S, Universal dependences between turbulent and mean flow parameters in stably and neutrally stratified Planetary Boundary Layers [J]. *Nonlinear Processes in Geophysics*, 2006,13(2): 135–144.
- [60] Kanda M, Moriawaki R, Roth M, et al. Area-averaged sensible heat flux and a new method to determine zero-plane displacement length over an urban surface using scintillometry [J]. *Boundary-Layer Meteorology*, 2002,105(1):177–193.
- [61] Fang G C, Cheng M T, Chang C N. Monitoring and modeling the mass, heavy metals and ion species dry deposition in Central Taiwan [J]. *J. Environmental Science and Health Part A*, 1997,32(8):2183–2199.
- [62] Yi S M, Holsen T M, Noll K E. Comparison of dry deposition predicted from models and measured with a water surface sampler [J]. *Environmental Science and Technology*, 1997,31(1):272–278.
- [63] Hinds W C, *Aerosol Technology: Properties, Behavior and Measurement of Airborne Particles* [M]. Wiley, New York, 1982.
- [64] Slinn S A, Slinn W G N. Predictions for particle deposition on natural waters [J]. *Atmospheric Environment*, 1980,14(9):1013–1026.
- [65] Slinn W G N. Prediction for particle deposition to vegetative canopies [J]. *Atmospheric Environment*, 1982,16(7):1785–1794.
- [66] Petroff A, Mailliat A, Amielh M, et al. Aerosol dry deposition on vegetative canopies. Part II: A new modelling approach and applications [J]. *Atmospheric Environment*, 2008,42(16):3654–3683.
- [67] Zhang L, Gong S, Padro J, et al. A size-segregated particle dry deposition scheme for an atmospheric aerosol module [J]. *Atmospheric Environment*, 2001,35(3):549–560.
- [68] Williams R M. A model for dry deposition of particles to natural water surfaces [J]. *Atmospheric Environment*, 1981,16(8):1933–1938.
- [69] Schwede D B, Zhang L, Vet R, et al. An intercomparison of the deposition models used in the CASTNET and CAPMoN networks [J]. *Atmospheric Environment*, 2011,45(6):1337–1346.
- [70] Hussein T, Smolik J, Kerminen V, et al. Modeling Dry Deposition of Aerosol Particles onto Rough Surfaces [J]. *Aerosol Science and Technology*, 2012,46(1):44–59.
- [71] Petroff A, Zhang L. Development and validation of a size-resolved particle dry deposition scheme for application in aerosol transport models [J]. *Geoscientific Model Development*, 2010,3(2):753–769.
- [72] Calec N, Boyer P, Anselmet F, et al. Dry deposition velocities of submicron aerosols on water surfaces: Laboratory experimental data and modelling approach [J]. *J. Aerosol Science*, 2017,105(3):179–192.
- [73] Lo Kou-Fang A., Zhang L. Sievering H. The effect of humidity and state of water surfaces on deposition of aerosol particles onto a water surface [J]. *Atmospheric Environment*, 1999,33(28):4727–4737.
- [74] Liu B Y H., Agarwal J K. Experimental observation of aerosol deposition in turbulent flow [J]. *J. Aerosol Science*, 1974,5(2):145–155.
- [75] Gillette D A, Lawson R E, Thompson R S. A ‘test of concept’ Comparison of aerodynamic and mechanical resuspension mechanisms for particles deposited on field rye grass (*Secalecercele*)—Part 1.Relative Particle flux rates [J]. *Atmospheric Environment*, 2004, 38(28):4789–4797.
- [76] Pryor S C, Larsen S E, Sørensen L L., et al. Particle fluxes above forests: Observations, methodological considerations and method

- comparisons [J]. *Environmental Pollution*, 2008,152(3):667–678.
- [77] Hicks B B, Saylor R D, Baker B D. Dry deposition of particles to canopies—a look back and the road forward [J]. *J. Geophysical Research: Atmospheres*, 2016,121(24):14691–14707.
- [78] Gallagher M W, Nemitz E, Dorsey J R, et al. Measurements and parameterizations of small aerosol deposition velocities to grassland, arable crops, and forest: influence of surface roughness length on deposition [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmosphere* 2002, 107(D12):AAC8–1–AAC 8–10.
- [79] Vong R J, Vong I J, Vickers D, et al., Size-dependent aerosol deposition velocities during BEARPEX'07 [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2010,10(12):5749–5758.
- [80] Fang G C, Wu Y S, Chang C N, et al. Modeling dry deposition of total particle mass in trafficked and rural sites of Central Taiwan [J]. *Environment International*, 1999,25(5):625–633.
- [81] Chen L, Peng S, Liu J, et al. Dry deposition velocity of total suspended particles and meteorological influence in four locations in Guangzhou, China [J]. *J. Environmental Sciences*, 2012,24(4):632–639.
- [82] Wesely M L. Parameterization of surface resistances to gaseous dry deposition in regional scale numerical models [J]. *Atmospheric Environment*, 1989,23(6):1293–1304.
- [83] Zhang J, Shao Y. A new parameterization of particle dry deposition over rough surfaces [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2014, 14(22):12429–12440.
- [84] Bleyl M. R., Experimentelle Bestimmung der Depositionsgeschwindigkeit Luftgetragener Partikel mit Hilfe der Eddy-Kovarianzmethode u ber einem Fichtenaltbestand im Solling [D]. Georg August Universit at, Gottingen, 2001.
- [85] Mammarella I, Rannik Ü, Aalto P, et al. Long-term aerosol particle flux observations. Part II: Particle size statistics and deposition velocities [J]. *Atmospheric Environment*, 2011,45:3794–3805
- [86] Lavi A, Farmer D K, Segre E, et al. Fluxes of fine particles over a semi-arid pine forest: possible effects of a complex terrain [J]. *Aerosol Science and Technology*, 2013,47(8):906–915

作者简介: 林官明(1969–),男,山西临汾人,高级工程师,博士,研究方向为大气污染扩散以及风洞技术.发表论文 10 余篇.