

戚慧雯,包云轩,黄建平,等.夹卷对郊外大气边界层内臭氧影响的数值模拟研究[J].热带气象学报,2018,34(5):713-720.

文章编号:1004-4965(2018)05-0713-08

夹卷对郊外大气边界层内臭氧影响的数值模拟研究

戚慧雯^{1,2},包云轩¹,黄建平²,张潇艳^{1,2},刘诚²,赵恺辉^{1,2}

(1.南京信息工程大学气象灾害预报和评估协同创新中心,江苏南京210044;

2.耶鲁大学-南京信息工程大学大气环境中心,江苏南京210044)

摘 要:夹卷是大气边界层与自由大气进行能量和物质交换的重要途径,对边界层动力结构及边界层内温度、水汽和各种污染物浓度有重要影响。利用化学-地表-大气-土壤(CLASS)模式定量评估了夹卷过程对远郊地区大气边界层内臭氧(O₃)浓度的影响并与大气化学反应贡献进行了对比,结合地面 O₃、NO_x 及边界层高度、位温和比湿等观测资料和再分析资料对 CLASS 模拟结果进行了定量评估。结果表明:CLASS 模式能较为真实地模拟夹卷和大气光化学反应对远郊地区大气边界层臭氧浓度的影响,且当自由大气层内臭氧浓度达到一定值时,两者对边界层内臭氧峰值影响相当。数值试验结果进一步揭示,夹卷对控制氮氧化物(NO_x)和可挥发性有机物(VOC_s)排放源控制效果有重要影响,且当夹卷区内 O₃ 跳跃值增大到一定时,可完全抵消源排放减排控制的效果。本研究旨在表明,为有效控制近地层臭氧浓度,在制定人为污染源减排措施时必须考虑自由大气层臭氧的夹卷贡献。

关键词:臭氧;夹卷;CLASS 模式;数值模拟;大气边界层

中图分类号: P404 **文献标识码:** A **Doi:** 10.16032/j.issn.1004-4965.2018.05.013

1 引 言

臭氧(O₃)是大气中一种重要痕量气体。对流层臭氧约占整个大气柱臭氧总量的 10%。近地层高浓度 O₃ 对人体健康、植被生态系统具有很大的危害作用^[1],是人们重点关注的大气污染物之一。O₃ 是一种重要氧化剂和 OH 自由基前体物,参与一系列大气化学反应^[2-4]。O₃ 在红外波段 9.6 μm 附近有很强的吸收作用,其浓度变化对地球-大气系统辐射平衡造成一定的影响^[5-6]。因此,对流层臭氧对大气化学、空气质量以及气候变化均具有重要意义。

对流层臭氧是氮氧化物(NO_x)和挥发性有机物(VOC_s)在太阳紫外辐射作用下,通过一系列大气化学反应形成的二次产物^[7]。其浓度不仅与各前

体物排放源强度及其化学反应有关,而且受各种物理过程控制。鉴于影响因子众多,过程复杂,确定臭氧来源、量化各种过程的相对贡献对于有效控制近地层臭氧浓度具有重要的理论和实践意义。

光化学反应、区域输送和垂直输送(如夹卷)是大气边界层内臭氧的三个主要来源。现有的研究主要关注区域输送和光化学反应的贡献。比如, Fishman 等^[8]明确提出光化学反应是对流层臭氧的重要来源。Liu 等^[9]利用西北太平洋沿岸臭氧探空数据结合全球三维化学模型 GEOS-CHEM,评估了东南亚地区生物质燃烧产物在春季对流层低层臭氧高值产生中的贡献。Jacob 等^[10]发现东亚地区人为排放源可以导致美国西部地区近地层臭氧月平均浓度升高 2~6 ppbv,美国东部地区升高 1~3 ppbv。Penkett 等^[11]通过分析光化学示踪剂过氧乙

收稿日期:2017-09-05;修回日期:2018-01-30

基金项目:国家自然科学基金(41575009);咸阳市重大科技计划项目(2017K01-35);江苏省科技支撑计划项目(BE2014734);江苏省研究生培养创新工程项目(KYLX16_0945)共同资助

通讯作者:黄建平,男,江西省人,研究员,博士,大气环境。E-mail: hjpgfwj@gmail.com

酰硝酸酯(PAN),发现对流层光化学反应可导致北大西洋地区春季对流层臭氧浓度明显升高。相比而言,夹卷的垂直输送对近地层臭氧的影响研究还相对匮乏。

夹卷区位于大气边界层与自由大气之间,夹卷过程(简称夹卷)是大气边界层与自由大气之间进行能量和物质交换的重要途径。有关夹卷的研究始于 20 世纪 60 年代^[12-13]。夹卷对边界层热力和动力过程的影响以及区域模式中夹卷过程的参数化一直是边界层气象研究的热点和难点之一。近年来,随着先进探测技术在大气边界层研究中的不断应用,人们对夹卷过程有了更深的了解。比如,Flamant 等^[14]雷达资料估算大气边界层顶夹卷层厚度。Angevine 等^[15]采用边界层廓线探测边界层高度和夹卷层特征。Beyrich 等^[16]利用声雷达观测数据,估计浅对流边界层内夹卷层厚度。Boers 等^[17]采用雷达探测的方法,估计混合层顶的位温跳跃值和大气夹卷层厚度。Hageli 等^[18]研究了混合层厚度与夹卷层厚度的关系和时空变化。然而,由于夹卷层位于大气边界层顶部,且垂直尺度小,直接观测资料仍然较匮乏^[19],夹卷过程及其对边界层内各种变量特别是化学物种的影响仍存在较大不确定性。

数值模拟是研究夹卷的重要工具。鲁明之等^[20]利用大涡模拟结果估算湍流交换系数 K ,并探讨了利用 K 模式研究对流边界层夹卷作用的可行性。苗世光等^[21]指出夹卷是对流边界层向整个大气层输送热量、水汽及污染物等的有效途径,夹卷速度是衡量输送效率的重要参量。罗涛等^[22]利用室内水槽模拟均匀下垫面大气对流边界层,进一步验证了夹卷过程对于边界层发展的重要性。Pino 等^[23]采用飞机和地面观测,评估了夹卷对 CO_2 时空演变的重要性,指出夹卷可显著稀释大气边界层内 CO_2 浓度。Heerwaarden 等^[24]采用一个混合边界层模型,评估夹卷对地表热通量和对流边界层属性的影响,指出自由大气湿度通过夹卷对地表热通量、相对湿度、边界层高度演变等产生重要影响。Stratum 等^[25]采用耦合化学反应的混合层模型,研究大气边界层动力学和化学的相互作用,指出像 O_3 、 NO 和 NO_2 这类化学物质,夹卷作用与化学贡献相当。

香港位于珠江三角洲地区东南部,气候主要

受东亚季风控制^[26]。春季大气边界层上部 2~4 km 经常观测到一个浓度高达 75 ppbv 的臭氧高值区^[27]。过去许多研究主要着重于探究导致该臭氧浓度显著升高的原因^[28-30],然而,该高度层臭氧的显著升高对近地层臭氧浓度影响如何目前尚不清楚。

本文通过引进一个化学-陆面-大气-土壤平板模型(Chemistry Land-surface Atmosphere Soil Slab Model, CLASS 模式)^[31-33],定量评估夹卷对近地层臭氧浓度的贡献并与大气化学贡献进行对比。鉴于 CLASS 化学模块考虑的 VOC_s 物种较少,为减少人为排放 VOC_s 的影响,本研究选择植被覆盖较好的远郊站点,模拟白天近地层臭氧的演变及夹卷和光化学反应的相对贡献。具体研究内容包括:(1) 通过与观测对比,探讨 CLASS 模式模拟白天郊区近地层臭氧演变的可行性;(2) 定量评估夹卷过程对近地层臭氧峰值的贡献以及夹卷区臭氧跳跃变化对这种贡献的影响;(3) 确定夹卷对污染源减排对地面臭氧控制效果的影响。

2 资料与方法

2.1 CLASS 模式简介

CLASS 模式是基于 Lilly 等的早期研究^[12-13,34-36],经不断发展和改进的一维零阶边界层模式^[4,24,33,37]。该模式较全面地考虑了陆面、植被、夹卷和大气化学对大气边界层演变及边界层内各种物理量如温度、湿度、风等和化学参量如 CO_2 、异戊二烯(ISO)等时空变化的影响。

CLASS 模式假定对流边界层内各标量 ϕ (如 θ 、 q 等)由湍流混合后成均匀分布,其随时间(t)的变化可由一维雷诺平均纳维-斯托克斯方程导出:

$$\frac{\partial \langle \phi \rangle}{\partial t} = \frac{\overline{w' \phi'_s}}{h} - \frac{\overline{w' \phi'_h}}{h} + S_\phi \quad (1)$$

其中, $\overline{w' \phi'_s}$ 和 $\overline{w' \phi'_h}$ 分别表示地表(s)和混合层(h)的湍流通量, S_ϕ 代表源汇或化学反应的贡献。忽略水平输送,夹卷区内标量跳跃变化为 $\Delta \phi$ 。

CLASS 模式通过耦合化学模块,可以评估化学反应对边界层内臭氧的影响^[4,32,36,38]。该化学模块包括 28 个化学方程式(表 1),模拟 NO_x 和 VOC_s 在太阳紫外辐射作用下臭氧的形成过程。可挥发

性有机物仅考虑了异戊二烯 (ISO) 和丁烯酮 (MVK), 其中异戊二烯主要来源于树木等的自然排放。该模型已被成功用于模拟亚马逊流域的热带雨林异戊二烯的时空变化^[4]。

表 1 CLASS 模式考虑的大气化学反应式^[25]

序号	反应
R1	$O_3+h\nu \rightarrow O(1D)+O_2$
R2	$O(1D)+H_2O \rightarrow OH+OH$
R3	$O(1D)+N_2 \rightarrow O_3$
R4	$O(1D)+O_2 \rightarrow O_3$
R5	$NO_2+h\nu \rightarrow NO+O_3$
R6	$CH_2O+h\nu \rightarrow HO_2$
R7	$OH+CO \rightarrow HO_2+CO_2$
R8	$OH+CH_4 \rightarrow CH_3O_2$
R9	$OH+ISO \rightarrow RO_2$
R10	$OH+MVK \rightarrow HO_2+CH_2O$
R11	$OH+HO_2 \rightarrow (H_2O)+(O_2)$
R12	$OH+H_2O_2 \rightarrow (H_2O)+HO_2$
R13	$HO_2+NO \rightarrow OH+NO_2$
R14	$CH_3O_2+NO \rightarrow HO_2+NO_2+CH_2O$
R15	$RO_2+NO \rightarrow HO_2+NO_2+CH_2O+MVK$
R16	$OH+CH_2O \rightarrow HO_2$
R17	$HO_2+HO_2 \rightarrow H_2O_2$
R18	$CH_3O_2+HO_2 \rightarrow PRODUCT$
R19	$RO_2+HO_2 \rightarrow nOH+PRODUCT$
R20	$OH+NO_2 \rightarrow HNO_3$
R21	$NO+O_3 \rightarrow NO_2+(O_2)$
R22	$NO+NO_3 \rightarrow 2NO_2$
R23	$NO_2+O_3 \rightarrow NO_3+NO_2$
R24	$NO_2+NO_3+M \rightarrow N_2O_5+M$
R25	$N_2O_5+M \rightarrow NO_3+NO_2+M$
R26	$N_2O_5+H_2O \rightarrow 2HNO_3$
R27	$N_2O_5+2H_2O \rightarrow 2HNO_3$
R28	$OH+O_3 \rightarrow HO_2+O_2$

2.2 数值模拟设计

2013 年 3 月 6 日香港天文台臭氧探空观测到一次明显的平流层 O₃ 入侵过程, 导致大气边界层顶以上即距离地面 2~4 km 高度处臭氧浓度明显升高, 臭氧浓度极大值达 75 ppbv^[27]。本文利用 CLASS 模式模拟该高浓度臭氧通过夹卷对近地层臭氧的影响。模拟站点为位于香港远郊的塔门站(位置如图 1 所示), 模拟时间从 07—18 时(北京时, 下同), 该站盛行风向是东北风。

平流输送将人为排放的臭氧前体物输送到城市下风方, 对郊区的臭氧浓度会产生比较大的影

响。本文采用的 CLASS 模式是一个箱式模型, 计算时假定流入和流出该箱子的净通量为零, 即水平输送对臭氧浓度变化的贡献为零。本文主要关注的是边界层顶以上的高浓度臭氧通过夹卷过程向下输送对边界层内的臭氧浓度产生的影响。

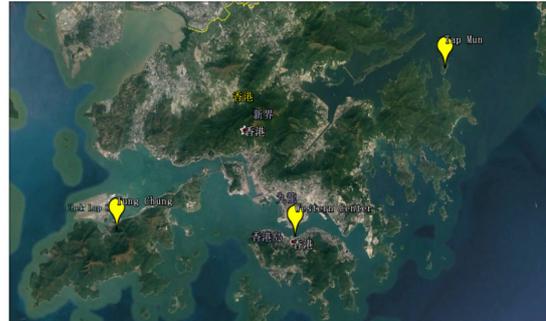


图 1 香港塔门站(Tap Mun)位置

表 2 给出了 CLASS 模式所需各个物理量的初始场和地表通量。边界层(或混合层)和自由大气层的温度和比湿来源于香港天文台塔门自动气象站和欧洲气象中心(ECMWF)的再分析资料。地表感热通量、潜热通量和其它物理量来自 WRF/Chem 模式的模拟结果^[27]。

表 2 CLASS 模式的初始场和地表热通量设定

物理量	设定值
初始混合层高度 h/m	200
水平速度散度 $\nabla \times V_h/s^{-1}$	5×10^{-6}
地转风 $U_g, V_g/(m/s)$	(0, 0)
地表感热通量 $\overline{w'\theta'_s}/(Km/s)$	$0.1\sin(\pi t/t_d)$
夹卷 / 地表热通量比率 $\beta = \overline{w'\theta'_h} / \overline{w'\theta'_s}$	0.2
初始混合层位温 $\langle \theta \rangle / K$	288
初始自由对流层位温 θ_{ref} / K	289
自由大气位温递减率 $\gamma_\theta / (K/m)$	0.006
地表潜热通量 $\overline{w'q'_s} / (g \cdot m / (kg \cdot s))$	$0.03\sin(\pi t/t_d)$
初始混合层比湿 $\langle q \rangle / (g/kg)$	5.3
初始自由对流层比湿 $q_{ref} / (g/kg)$	4.5
自由对流层比湿递减率 $\gamma_q / (g / (kg \cdot m))$	-0.001 2

表 3 代表 CLASS 模拟所需的化学物种初始场廓线和地表通量(即源排放通量)。O₃、NO 和 NO₂ 的初值是根据香港环境保护署塔门大气环境监测站的观测值确定。其它物种如甲烷(CH₄)、异戊二烯(ISO)、一氧化碳(CO)、过氧化氢(H₂O₂)和丁烯酮(MVK)等的浓度和地表通量取自于 WRF/Chem 模拟结果^[27]。

表3 CLASS模拟时各主要化学物种的初始值浓度、边界层顶浓度和地表通量

化学物种	O ₃	NO	NO ₂	CH ₄	ISO	CO	H ₂ O ₂	MVK
<S>/ppbv	46	0	6	1 724	2	100	0.1	1.3
S _{IT} /ppbv	61	0.5	6	1 724	2	100	0.1	1.3
$\overline{w's^t}/(\mu\text{g}/(\text{m}^2\cdot\text{s}))$	0	0.004	a	0	b	0	0	0

其中<S>和S_{IT}分别代表大气边界内化学物的平均浓度和自由大气内的浓度。 $a=v_c C_{\text{NO}_2}$,其中 $v_c=0.015\text{ m/s}$ 。

$b=(\overline{w'ISO'})=0.05\sin(\pi t/t_d)$,其中 t 和 t_d 分别表示模拟时间和日变化时间。

3 结果分析

3.1 模拟与观测对比分析

模拟站点为香港东北郊的塔门站,模拟起始时间为2013年3月6日上午07时。图2给出了CLASS模拟的2013年3月6日香港塔门站位温(θ)和边界层高度(H)的时间变化及与观测值和再分析资料的对比。日出后,随着到达地表太阳辐射的逐渐增强,近地层湍流加强,边界层不断发展。中午时边界层高度达到670 m,与ECMWF再分析资料接近。位温变化趋势与边界层高度相吻合,并与其他类似研究的模拟结果相一致^[4,23,25,31]。需指出的是,由于未考虑其他物理过程如平流输送和辐射等过程的影响,模式未能模拟出16时以后位温变化趋势。但鉴于臭氧浓度峰值通常出现在下午14—16时,该模式仍能够评估夹卷对边界层内臭氧峰值的影响。

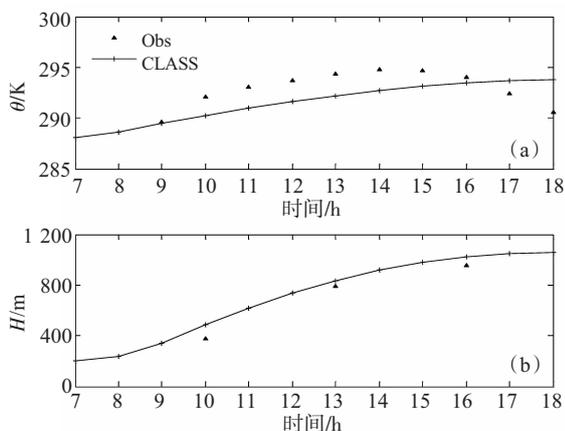


图2 2013年3月6日07—18时(北京时间)塔门站CLASS模型模拟的位温(θ ,a)和边界层高度(H ,b)与观测值及再分析资料的对比

图3进一步给出了当天塔门站氮氧化物(NO_x)和臭氧(O_3)的模拟与观测值对比。CLASS模式较好地模拟了大气边界层内氮氧化物的时间演

变趋势。虽然观测值被低估2.5 ppbv,但模拟和观测值之间的相关系数达0.8 ($P<0.01$)。与此相对照,臭氧时间变化趋势及峰值的模拟结果与观测值吻合得较好,其相关系数和均方根误差分别为0.5 ($P<0.01$)和4.3 ppbv,表明当天该站光化学反应和夹卷过程是控制臭氧浓度变化的两个主要因子。另外,该站地处香港东北北部远郊,周围植被覆盖好,异戊二烯(ISO)和氮氧化物(NO_x)之间的化学反应代表了该站 O_3 的化学形成过程。

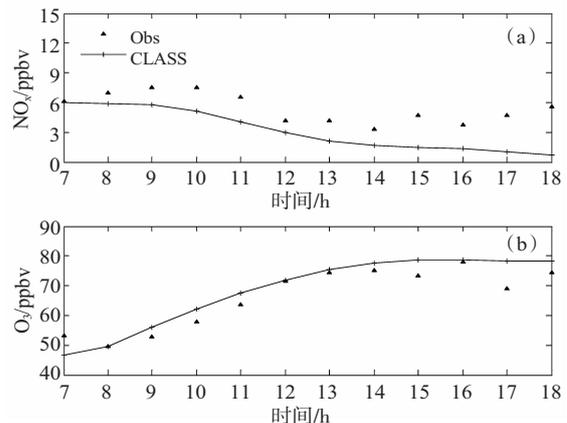


图3 2013年3月6日香港塔门站的氮氧化物(NO_x ,a)和臭氧(O_3 ,b)模拟值与观测值对比

3.2 化学反应和夹卷过程的相对贡献

为定量评估夹卷和大气化学反应对边界层内 O_3 的相对贡献,图4比较了夹卷区内两种不同 O_3 跳跃值时CLASS模拟的边界层内臭氧浓度日变化。其中 O_3 跳跃值为0.0 ppbv的个例所对应的 O_3 日峰值为66.0 ppbv。由于没有考虑水平输送,且夹卷作用为零,该峰值与初始值的差值(20.0 ppbv)代表了化学反应的贡献。当跳跃值为15.0 ppbv(由2013年3月6日香港 O_3 探空资料得到)时,臭氧峰值升高到78.0 ppbv,比第一个个例的峰值高12.0 ppbv,代表夹卷过程的贡献,约占臭氧峰值的37.5%。可见,为有效控制近地层臭氧浓度,在制定有效污染源减排措施时,必须同时考虑夹卷的影响。

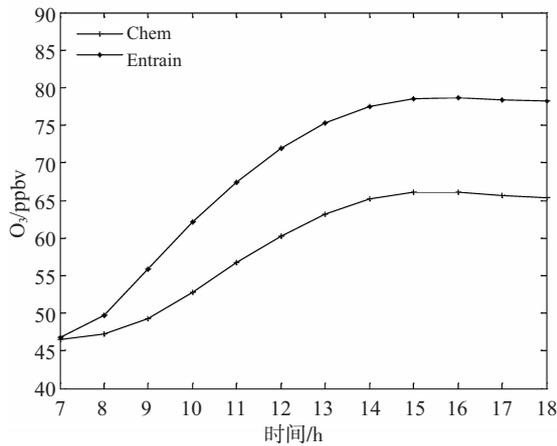


图 4 臭氧跳跃层存在和不存在时 CLASS 模拟的臭氧浓度变化 Chem: 臭氧跳跃层不存在时; Entrain: 臭氧跳跃层存在时。

为进一步确定夹卷区内 O₃ 跳跃值(ΔO₃)对边界层 O₃ 的影响,设计了三组试验,分别表示 O₃ 跳跃值为 10、15 和 20 ppbv,结果如图 5 所示。可以看出,近地层 O₃ 峰值浓度随 O₃ 跳跃值(ΔO₃)增大

而上升。在不考虑水平输送的条件下,与化学反应相比,这三种个例的夹卷百分比贡献分别为 29%、40%和 44%。同时也注意到,O₃ 跳跃值(ΔO₃)的变化,对近地层臭氧影响显著,而对其它化学物种的影响较小,其变化不超过 15%。

3.3 夹卷对排放源控制效果的影响

如上文提及,在保持 NO_x 和 VOC_s 排放源不减排,改变 O₃ 跳跃值分别为 10、15 和 20 ppbv 时,在不考虑水平输送的条件下,与化学反应相比,这三种个例的夹卷百分比贡献分别为 29%、40%和 44%。因此,为检验夹卷过程对不同污染源控制效果影响,设计了两组试验:第一组,假定跳跃层 O₃ 跳跃值保持 15 ppbv 不变,NO_x 和 VOC_s 排放源各自或同时减少 50%;第二组,假定 NO_x 和 VOC_s 排放源同时减少 50%,跳跃层臭氧跳跃值分别为 10、15 和 20 ppbv。参照上一节的方法,计算了各种源减排条件下,化学产生和夹卷对近地层臭氧峰值的相对贡献,其结果如表 4 和表 5 所示。

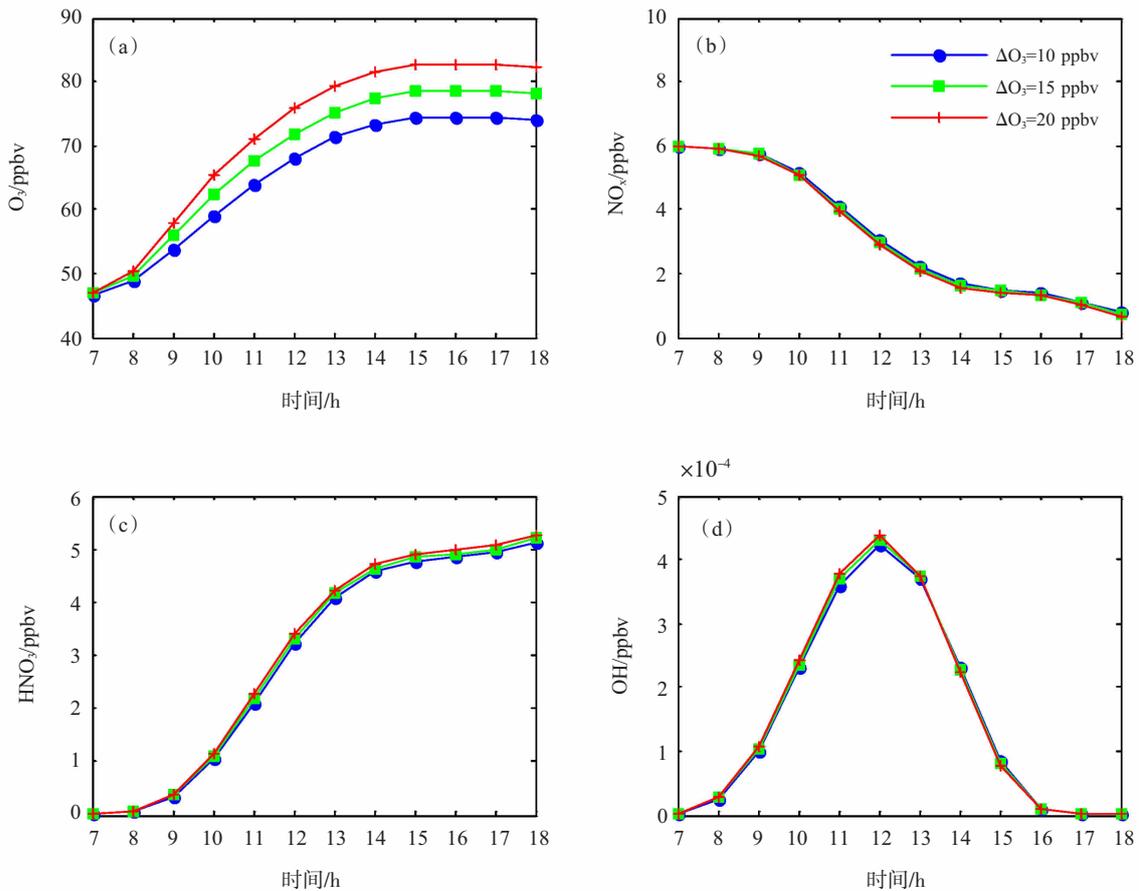


图 5 夹卷区内不同臭氧跳跃值(ΔO₃)条件下, CLASS 模式模拟的 O₃(a)、NO_x(b)、HNO₃(c)和 OH(d)的时间变化序列 其中, ΔO₃=10 ppbv, ΔO₃=15 ppbv, ΔO₃=20 ppbv 分别代表 O₃ 跳跃值(ΔO₃)为 10、15 和 20 ppbv。

表 4 不同源排放条件下, 化学产生和夹卷对近地层臭氧峰值的相对贡献比较

源排放控制	O ₃ 日峰值/ppbv	化学贡献/ppbv	夹卷贡献/ppbv
控制试验	78.6	19.9(61.0%)	12.7(39.0%)
VOC _s 减少 50%	76.9	17.9(57.9%)	13.0(42.1%)
NO _x 减少 50%	78.7	20.0(61.2%)	12.7(38.8%)
VOC _s 和 NO _x 同减 50%	77.1	18.2(58.5%)	12.9(41.5%)

表 5 VOC_s 和 NO_x 同时减少 50% 时, 不同臭氧跳跃值情况下, 化学贡献和夹卷贡献的相对比值

ΔO ₃ /ppbv	日峰值/ppbv	化学贡献/ppbv	夹卷贡献/ppbv
10	72.8	18.2(67.9%)	8.6(32.1%)
15	77.1	18.2(58.5%)	12.9(41.5%)
20	81.3	18.2(51.6%)	17.1(48.4%)

从表 4 可以看出, 由于模拟站点地处郊区, VOC_s 和 NO_x 源减排对地面臭氧峰值的控制效果有限 (< 2.0 ppbv)。在这种条件下, 相对而言, VOC_s 源减排的控制效果比 NO_x 源减排控制效果明显。当夹卷层 O₃ 的跳跃变化一定时, 源减排导致化学产生贡献的减少, 会部分被夹卷过程抵消。如当 VOC_s 排放源减少 50%, 地面臭氧峰值降低了 2.0 ppbv(约 3%), 而夹卷过程的相对贡献却增加了约 3%, 达 42.1%(表 4)。值得注意的是, 当 NO_x 和 VOC_s 源排放保持一定时, 其控制效果会随着夹卷层 O₃ 跳跃变化的增加而被完全抵消(表 5)。比如, 当 NO_x 和 VOC_s 排放源减少 50% 而臭氧的跳跃变化从 10.0 ppbv 增加到 20.0 ppbv 时, 地表臭氧峰值不降反而从 72.8 ppbv 升高到 81.3 ppbv(约 12%), 控制效果完全抵消。这些试验结果进一步表明, 为有效控制地面臭氧浓度, 除了降低臭氧前体物排放源, 必须同时考虑夹卷过程的影响。

4 总结和讨论

本文利用“零阶模型”CLASS 模式, 模拟了

2013 年 3 月 6 日香港塔门站边界层内臭氧、地面温度和边界层高度的日变化并与观测及再分析资料进行了对比。通过敏感试验, 估算了夹卷和大气化学对近地层臭氧的相对贡献, 评估了夹卷过程对臭氧前体物源排放控制效果的影响, 得到以下几点结论。

(1) 模拟观测对比结果表明, 考虑了化学模块的 CLASS 模式, 较为成功地模拟了边界层高度和边界层内臭氧的日变化以及夹卷过程的影响。

(2) 夹卷过程对边界层臭氧浓度有着显著影响, 且该影响随 O₃ 跳跃值增大而加强。

(3) 夹卷明显影响 O₃ 前体物源减排控制效果, 且其对源减排控制效果随 O₃ 跳跃值增大而显著降低, 甚至导致源减排控制效果完全抵消。

与目前广泛使用的三维气象化学耦合模型如 WRF/Chem^[39-40]或空气质量预报模型如 CMAQ^[41-42]所考虑的气相化学反应机理 CB05^[43-44]或 CBMZ^[45-46]相比, CLASS 模式考虑的化学反应方程式以及 VOC_s 物种相对简单。为了能够模拟城市环境条件下 O₃ 的日变化及夹卷的影响, 今后有必要将包含复杂气相化学反应机理如 CB05 的模块与 CLASS 相耦合。

参 考 文 献

- [1] CHAMEIDES W L, LI X, TANG X, et al. Is ozone pollution affecting crop yields in China?[J]. *Geophys Res Lett*, 1999, 26(7): 867-870.
- [2] 王雪松, 李金龙, 张远航, 等. 北京地区臭氧污染的来源分析[J]. *中国科学 B 辑: 化学*, 2009, 39(6): 548-559.
- [3] 王自发, 李丽娜, 吴其重, 等. 区域输送对北京夏季臭氧浓度影响的数值模拟研究[J]. *自然杂志*, 2008, 30(4): 194-198.
- [4] ARELLANIO V G D J, PATTON E G, KARL T, et al. The role of boundary layer dynamics on the diurnal evolution of isoprene and the hydroxyl radical over tropical forests[J]. *J Geophys Res*, 2011, 116, D07304.
- [5] 周晨虹. 大气臭氧和二氧化氮的变化及其影响因素[D]. 南京: 南京信息工程大学, 2013.

- [6] SOLOMON S. Climate change 2007-the physical science basis: Working group I contribution to the fourth assessment report of the IPCC [M]. Cambridge: Cambridge University Press,2007.4.
- [7] STAEHELIN J, HARRIS N R P, APPENZELLER C, et al. Ozone trends: A review[J]. Reviews of Geophysics, 2001, 39(2): 231-290.
- [8] FISHMAN J, CRUTZEN P J. The origin of ozone in the troposphere[J]. Nature, 1978, 274(5): 9 641-9 668.
- [9] LIU H, JACOB D J, CHAN L Y, et al. Sources of tropospheric ozone along the Asian Pacific Rim : An analysis of ozone sodar observations[J]. Geophys Res Lett, 2002, 107(D21): ACH 3-1-ACH 3-19.
- [10] JACOB D J, LOGAN J A, MURTI P P. Effect of rising Asian emissions on surface ozone in the United States[J]. Geophys Res Lett, 1999, 26 (14): 2 175-2 178.
- [11] PENKETT S A, EVANS M J, REEVES C E, et al. Long-range transport of ozone and related pollutants over the North Atlantic in spring and summer[J]. Atmos Chem Phys, 2004, 4(4): 4 407-4 454.
- [12] LILLY D K. Models of cloud-topped mixed layer under a strong inversion[J].Quart J Roy Meteor Soc,1968, 94(401): 292-309.
- [13] DEARDORFF J W. Prediction of convective mixed-layer entrainment for realistic capping inversion structure[J]. Atmos Sci, 1979, 36(3): 424-436.
- [14] FLAMANT C, PELON J, FLAMANT P P, et al. Lidar determination of the entrainment zone thickness at the top of the unstable marine atmospheric boundary layer [J].Bound-Layer Meteor, 1997, 83(2): 247-284.
- [15] ANGEVINE W M, GRIMSDELL A W, MCKEEN S A. Entrainment results from the Flatland boundary layer experiment[J]. J Geophys Res, 1998, 103(D12): 13 689-13 701.
- [16] BEYRICH F, GRYNING S E. Estimation of the entrainment zone depth in a shallow convective boundary layer from sodar data[J]. J Appl Meteor, 1998, 37(3): 255-268.
- [17] BOERS R A, ELORANTA E W. Lidar measurements of the atmospheric entrainment zone and the potential temperature jump across the top of the mixed layer [J].Bound-Layer Meteor, 1986, 34(4): 357-375.
- [18] HAGELI P, STEYN D G, STRAWBRIDGE K B. Spatial and temporal variability of mixed-layer depth and entrainment zone thickness[J]. Bound-Layer Meteor, 2000,97(1): 47-71.
- [19] 林恒,孙鉴宁,袁仁民. 对流边界层顶部夹卷层厚度特征及其参数化分析[J]. 中国科学技术大学学报, 2008, 38(1):50-56.
- [20] 鲁明之,周明煜. 对流边界层中夹卷作用的研究[J]. 大气科学, 1988, 12(4):421-429.
- [21] 苗世光,蒋维楣,李昕,等. 对流边界层大涡模式的改进及对夹卷速度的研究[J]. 大气科学,2001, 25(1) :26-36.
- [22] 罗涛,袁仁民,孙鉴宁. 对流边界层夹卷通量参数化的室内模拟研究[J]. 大气与环境光学学报,2006, 1(3) :173-178.
- [23] PINO D, VILA-GUERAU DE ARELLANO J, PETERS W, et al. A conceptual framework to quantify the influence of convective boundary layer development on carbon dioxide mixing ratios[J]. Atmos Chem Phys, 2012, 12(6): 2 969-2 985.
- [24] HEERWAARDEN C C, TEULING A J. Disentangling the response of forest and grassland energy exchange to heatwaves under idealized land-atmosphere coupling[J]. Biogeosciences, 2014,11: 6 159-6 171.
- [25] STRATUM B J H V, AREUAND V G D J, OUWERSLOOT H G, et al. Case study of the diurnal variability of chemically active species with respect to boundary layer dynamics during DOMINO[J]. Atmos Chem Phys, 2012, 12(12): 5 329-5 341.
- [26] T N CHIU, C L SO. A Geography of Hong Kong, 2nd Edition[M]. Oxford: University Press.1986.
- [27] 赵恺辉,包云轩,黄建平,等. 华南地区春季平流层入侵对对流层低层臭氧影响的模拟研究[J].大气科学,投稿中.
- [28] 陈闯,田文寿,田红瑛,等. 青藏高原东北侧臭氧垂直分布与平流层-对流层物质交换[J]. 高原气象, 2012, 31(2): 295-303.
- [29] 郑向东,陈尊裕,崔宏,等. 长江三角洲地区春季低空大气臭氧垂直分布特征[J]. 中国科学 D 辑地球科学,2004, 34(12):1 184-1 192.
- [30] 郑永光,陈鲁言,陈尊裕,等. 2001 年春季临安、昆明和香港臭氧垂直分布特征的对比分析[J]. 北京大学学报(自然科学版), 2005, 41 (1):104-114.
- [31] VILA-GUERAU DE ARELLANO J. Atmospheric Boundary Layer, Integrating Air Chemistry and Land Interactions[M]. Cambridge University Press, New York, 2015: 265.
- [32] OUWERSLOOT H G, VILA-GUERAU DE ARELLANO J, STRATUM, et al. Quantifying the transport of subcloud layer reactants by shallow cumulus clouds over the Amazon[J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2013,118 (23):13 041-13 059.
- [33] PINO D, VILA-GUERAU DE ARELLANO J, KIM S W, et al. Representing sheared convective boundary layer by Zeroth-and First-Order-Jump Mixed-Layer Models: Large-Eddy simulation verification[J]. J Applied Meteorology and Climatology, 2006, 45 (9): 1 224-1 243.
- [34] BETTS A K. Non-precipitating cumulus convection and its parameterization[J]. Quart J Roy Meteorol Soc, 1973, 99(419): 178-196.
- [35] BETTS A K. Reply to comment on the paper "Non-precipitating cumulus convection and its parameterization"[J]. Quart J Roy Meteorol Soc, 1974, 100(423): 469-471.
- [36] TENNEKES H. A model for the dynamics of the inversion above a convective boundary layer[J]. Atmos Sci, 1973, 30(4):558-567.
- [37] PIETERSEN H P, VILA-GUERAU DE ARELLANO J, AUGUSTIN P, et al. Study of a prototypical convective boundary layer observed

- during BLLAST: contributions by large-scale forcings[J]. *Atmos Chem Phys*, 2015, 14(13): 19 247-19 291.
- [38] HEERWAARDEN C C VAN, VILA-GUERAU DE ARELLANO J, MOENE A F, et al. Interactions between dry-air entrainment, surface evaporation and convective boundary-layer development [J]. *Quart J Roy Meteorol Soc*, 2009,135 (642):1 277-1 291.
- [39] 申倩倩. 上海地区臭氧数值模拟研究[D]. 上海:华东师范大学,2011.
- [40] 沈毅. 南京大气污染特征及空气质量预报研究[D]. 南京:南京大学,2011.
- [41] 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):1 681-1 689.
- [42] 赵秀娟,姜华,王丽涛,等. 应用 CMAQ 模型解析河北南部城市的霾污染源[J]. *环境科学学报*,2012,32(10):2 559-2 667.
- [43] 丁菊丽,费建芳,黄小刚,等. 稳定层结条件下非线性相似函数对蒸发波导模型的改进[J]. *热带气象学报*,2011,27(3): 410-416.
- [44] 张文琪,刘萍,晏乃强,等. 沿海城市大气汞的数值模拟研究[J]. *环境科学与技术*,2013, 36(8): 164-169.
- [45] 杨昕,李永生. 近地面 O₃ 变化化学反应机理的数值研究[J]. *大气科学*,1999, 23(4): 428-438.
- [46] 姚女. 典型沿海城市二次有机气溶胶的数值模拟研究[D]. 上海:上海交通大学,2013.

NUMERICAL SIMULATION OF THE IMPACT OF ENTRAINMENT ON OZONE CONCENTRATION IN THE RURAL ATMOSPHERIC BOUNDARY LAYER

QI Hui-wen^{1,2}, BAO Yun-xuan¹, HUANG Jian-ping², ZHANG Xiao-yan^{1,2},
LIU Cheng^{1,2}, ZHAO Kai-hui^{1,2}

(1. Collaborative Innovation Center on Forecast Meteorological Disaster Warning and Assessment, Nanjing University of Information Science and Technology, Nanjing, 210044, China; 2. Yale-NUIST Center on Atmospheric Environment, Nanjing University of Information Science & Technology, Nanjing 210044, China)

Abstract: Entrainment is an important way for the exchange of heat, water and air pollutants between the atmospheric boundary layer and the free atmosphere. A zero-order model of Chemistry, Land-surface, Atmosphere, and Soil Slab (CLASS) was used to quantify the impact of entrainment influence on O₃ concentrations in the atmospheric boundary layer and compare its contribution with that of chemical reactions at a rural site. A series of observational data including O₃, NO_x, the boundary layer height, and potential temperature as well as reanalyzed data was used to evaluate the simulations. The results demonstrated that the CLASS model was able to capture the temporal variations in the atmospheric boundary layer height, surface temperature, O₃, and other chemical species. The entrainment has a competitive impact on O₃ in the PBL as compared to chemical reactions. The numerical experiments further showed that the relative contribution of entrainment increased with increasing O₃ jumps; the entrainment exerted an important impact on the control effectiveness of emission reduction of nitrogen oxides (NO_x) and volatile organic compounds (VOCs) and even totally counteracted the emission reduction effect. The study provides scientific evidence that entrainment must be considered in order to control surface O₃ concentrations effectively while the emissions were reduced.

Key words: ozone; entrainment; Chemistry Land-surface Atmosphere Soil Slab Model; numerical simulation; atmospheric boundary layer.