周逸超,侯雪伟,乐 满,等.地球系统变网格技术对东亚地区大气成分的模拟适用性研究 [J]. 中国环境科学, 2025,45(11):6045-6057.
Zhou Y C, Hou X W, Yue M, et al. Study on the applicability of the Earth system variable grid technology to the simulation of atmospheric composition in East Asia [J]. China Environmental Science, 2025,45(11):6045-6057.

地球系统变网格技术对东亚地区大气成分的模拟适用性研究

周逸超[1],侯雪伟[1*],乐 满[2],金宇翔[1] (1.南京信息工程大学,气象灾害预报预警与评估协同创新中心,气象灾害教育部重点实验室,气候与环境变化国际合作联合实验室,中国气象局气溶胶与云降水重点开放实验室,江苏 南京 210044；2.浙江省气象科学研究所,浙江 杭州 310008)

摘要：设置两组实验用于对比当前最新版本地球系统模型(CESM2)对东亚地区的大气污染物模拟性能,一组为在东亚地区进行区域加密的 MUSICA 模拟实验(SE),另一组为传统网格的 CESM 模拟实验(FCSD),并将其与卫星及地表观测结果进行对比分析,明确可变分辨率模式对东亚地区大气污染的模拟性能.研究表明,虽然在垂直分辨率上,FCSD 因其更细致的分层而展现出对对流层臭氧柱浓度模拟的优势.但在中国区域,更精细的网格分辨率使得 SE 在模拟 O_3,CO 以及 NO_2 方面的表现优于 FCSD,SE 的四季平均值与中国环境监测总站 (CNEMC) 站点数据集之间的误差比 FCSD 分别降低约了 5.0%,6.4%以及 52.9%.而且地球系统模型相较于区域模型来说还具备完整的平流层化学和动力学过程,为研究平流层-对流层物质交换等事件提供了有力工具,对理解全球气候变化和区域空气质量管理具有重要意义.

关键词：CESM2；MUSICAv0；区域细化；污染物模拟
中图分类号：X511 **文献标识码**：A **文章编号**：1000-6923(2025)11-6045-13

Study on the applicability of the Earth system variable grid technology to the simulation of atmospheric composition in East Asia.

ZHOU Yi-chao[1], HOU Xue-wei[1*], YUE Man[2], JIN Yu-xiang[1] (1.Key Laboratory for Aerosol-Cloud-Precipitation of China Meteorological Administration, Joint International Research Laboratory of Climate and Environment Change, Key Laboratory of Meteorological Disaster, Ministry of Education, Collaborative Innovation Center on Forecast and Evaluation of Meteorological Disasters, Nanjing University of Information Science and Technology, Nanjing 210044, China；2.Zhejiang Provincial Institute of Meteorological Sciences, Hangzhou 310008, China). *China Environmental Science*, 2025,45(11)：6045~6057

Abstract：This study establishes two sets of experiments to compare the performance of the latest version of the Community Earth System Model (CESM2) in simulating atmospheric pollutants over East Asia. The first set employs the MUSICA simulation with regional refinement over East Asia (SE), while the second set utilizes the conventional grid configuration of CESM (FCSD). Both simulations are evaluated against satellite and surface observations to assess the advantages of the variable-resolution approach in modeling regional air pollution over East Asia.Results demonstrate that while FCSD exhibits superior performance in simulating tropospheric ozone column concentrations due to its finer vertical resolution, the SE configuration outperforms FCSD in capturing surface O_3, CO, and NO_2levels over China. Compared to observational data from the China National Environmental Monitoring Centre (CNEMC), SE reduces mean seasonal biases by approximately 5.0%, 6.4%, and 52.9% for O_3, CO, and NO_2, respectively, relative to FCSD. Furthermore, the Earth System Model framework provides a comprehensive representation of stratospheric chemistry and dynamics, offering a powerful tool for investigating stratosphere-troposphere exchange processes. This capability holds significant implications for both global climate change research and regional air quality management.

Key words：CESM2；MUSICAv0；regional refinement；pollutant simulation

近年来,为了缓解空气污染,国务院颁布了一系列大气污染防治措施,如“大气污染防治行动计划”,“打赢蓝天保卫战三年行动计划”等.以往研究表明,我国在颗粒物污染防治方面已取得显著进展[1-2],但全国大部分地区的臭氧(O_3)浓度却呈现出快速上升态势,O_3污染正逐渐成为一个严重的问题.近地表O_3处于高浓度状态下时,对植被、建筑材料和人体健康都会产生有害影响[3-5].对流层内O_3的源主要包括平流层入侵及对流层内的光化学过程,对于某一区域而言,其来源还包括区域间的输送作用[6]. 氮氧化物(NO_x)及挥发性有机物(VOCs)为 O_3 的重要前体物,在光照下会发生光化学反应,生成 O_3.CO 是重要的一次大气污染物之一,其含量的多少是空气质量高

收稿日期：2025-02-27
基金项目：国家重点研发计划项目(2022YFC3701204)
* 责任作者, 副教授, houxw@nuist.edu.cn

低的重要决定因素,过量的CO直接危害到人类的健康[7].由于CO的化学结构相对简单并且生命周期适中,因此CO也是研究污染物在大气中转化、输送以及再分布的重要示踪物,它与 OH 自由基的反应制约着 CH_4、O_3 等温室气体的大气化学过程,进而对区域环境乃至全球气候产生重大影响[8].NO_2不仅是O_3 的重要前体物之一,而且其本身也是一种衡量空气质量标准的重要大气污染物,参与多种复杂的大气化学反应[9],其浓度水平和化学行为对整个大气化学反应体系有着显著的影响,如与 OH 自由基反应生成硝酸,进而形成硝酸盐气溶胶等二次无机气溶胶,是形成酸雨和霾的关键因素之一[10-11].

大气化学过程受到从局部到全球的多尺度影响,与地球系统的其他组成部分相互作用[12].O_3 及其相关污染物的模拟传统上是用区域或全球模型进行的[13].然而,由于全球模型对区域尺度过程的解析度不够,以致不能精确捕捉到区域尺度上的空气污染过程[14];区域模型使用全球化学传输模型来提供初边界条件,但全球模型之间的化学和物理方案不一致,可能使得模拟结果偏差较大[15-16],且区域模型中不包含平流层化学和动力学过程,而是依靠全球大气层通用气候模型 (WACCM)中的上边界条件(UBC)方案来为模拟试验提供平流层的初始条件和化学边界条件[17-19],这将导致整个平流层-对流层物质交换不能得到一致和连贯的模拟[20],特别是 O_3 的分析.平流层入侵是对流层 O_3 的一个重要来源,平流层化学的同步性对于对流层 O_3 的研究至关重要,因此区域模型在平流层化学过程的处理中仍然存在不足.

为了充分发挥全球模型与区域模型各自的优势,实现两者的互补与融合.美国国家大气研究中心(NCAR)开发了统一的多尺度模型 MUSICA(Multi-Scale Infrastructure for Chemistry and Aerosols). MUSICA 模型能够在统一的框架下,同时模拟全球和区域尺度的大气化学过程,这种多尺度的建模能力可以在全球范围内研究大气化学现象,同时又能深入到区域尺度,更精细地分析污染物的来源、传输和转化过程[21].MUSICAv0 为 MUSICA 的第一个版本,使用的 CAM-chem(Community Atmosphere Model with chemistry)配置[22],以 Spectral Element (SE)作为动力核心,允许进行区域细化(RR),因此也被称为 CAM-chem-SE-RR 或 MUSICAv0[23]. MUSICAv0在CESM2.2.0中默认的细化区域仅限于美国本土(CONUS),要在其他地区实现类似的细化效果,则需自行创建网格. 研究表明,高分辨率 CESM_MUSICAv0 模型在空气质量模拟中展现出显著优势.相较于粗分辨率模型,该模型在多个方面表现出更优性能:雾霾模拟精度提升、$PM_{2.5}$ 浓度偏差更小、对污染事件频率预测更准确[24-26].能显著提升模拟准确性,尤其是改善边界层内高反应性物质(O_3 等)的浓度模拟[27].

总的来说,MUSICAv0 在未来的空气质量预测和研究气候与空气污染之间的相互作用方面具有很好的前景.因此,进一步评估 MUSICAv0 在区域尺度上主要大气污染物(特别是 O_3)的模拟结果对于研究平流层-对流层物质交换以及大气污染成因等方面具有重要意义.本研究设置两组实验,一组为在东亚地区进行区域细化的 MUSICAv0 模拟实验(SE),另一组为 0.9°×1.25°传统网格分辨率的 CESM 模拟实验 (FCSD),分别对 2017~2019 年东亚地区的大气成分进行模拟,再基于卫星和地表观测以及再分析数据对模拟结果(O_3,NO_2,CO)进行评估.

1 数据与方法

1.1 卫星以及观测数据

使用 OMI/MLS 卫星数据集(https://acd-ext.gsfc.nasa.gov/Data_services/cloud_slice/)来评估模拟的对流层 O_3 柱浓度(TCO).该卫星数据集是由 NASA Aura 计划中的 OMI 和 MLS 两个仪器联合提供,用于监测大气中的 O_3 分布.该数据集所呈现的全球 O_3 浓度的季节性变化规律与其他学者研究相符,证明了该数据的可靠性和准确性[28].本研究使用的数据集分辨率为 1°×1.25°,时间为 2018~2019 年.

中国国家环境监测总站(CNEMC)自 2013 年以来提供全国超过 1000 个站点 6 项常规污染物的小时观测数据,本研究所使用的 O_3,CO 以及 NO_2 的国内站点观测数据均来自 CNEMC 2018~ 2019 年 1500 多个站点的监测结果,有利于本文对模型的准确性展开更全面的评估,数据获取自 https://quotsoft.net/air/.CNEMC 空气质量数据集因其高质量近年来被广泛用于科学研究[29-30].

O_3 和 NO_2 的国际观测数据来自于东亚酸沉降监测网的月均观测数据(EANET, https://www.eanet.asia/),时间区间均为 2018~2019 年,观测站点的选取均包含了城市(Urban)、乡村(Rural)以及偏远(Remote)站点,代表不同的地理环境、下垫面特征和人类活动强度,能够更全面的了解不同地域的污染物特征,城市站点受人为影响较严重,乡村站点次之,偏远站点主要受自然过程和远距离传输的影响.O_3 的观测站点为 Sado-Seki、Happo、Oki、Mondy、Kanghwa、Nai-Muaeng;NO_2 的观测站点取自 Bangkok、Haibin-park、Imsil、Kanghwa. CO 的国际观测数据来自世界温室气体数据中心(WDCGG,https://gaw.kishou.go.jp/),WDCGG 空气质量数据集因其高质量而在研究中得到广泛应用[31-32],分别从中国(Lulin)、韩国(Anmyeon-do)、日本(Yonagunijima)和越南(Pha Din) 4 个国家选取 1 个站点代表东亚地区,其中 Anmyeon-do、Yonagunijima 和 Pha Din 的站点类型是 GAW Regional,主要负责在区域尺度上监测大气成分的变化.Lulin 的站点类型是 GAW Other elements,GAW Other elements 站点提供的数据可以补充 GAW Global 和 GAW Regional 站点的数据,有利于更全面地理解大气成分的变化.时间区间为 2018~2019 年.本研究所使用的国外观测站点信息如表 1 所示.

表 1　国外各观测站的经纬度、海拔高度、类型以及数据来源

Table 1　Latitude, longitude, altitude, type, and data source of international observation station

站点名	经纬度	海拔(m)	站点类型	数据来源
日本 Sado-Seki	38.251 °N, 138.4 °E	159	Remote	EANET
日本 Happo	36.697°N, 137.789°E	1850	Remote	EANET
日本 Oki	36.289°N, 133.185°E	90	Remote	EANET
俄罗斯 Mondy	51.622°N, 100.919°E	1996	Remote	EANET
韩国 Kanghwa	37.709°N, 126.274°E	60	Rural	EANET
泰国 Nai-Muaeng	14.980°N, 102.098°E	184	Urban	EANET
泰国 Bangkok	17.7844°N, 100.5394°E	5	Urban	EANET
中国 Haibin-park	22.2611°N,113.5736°E	30	Urban	EANET
韩国 Imsil	35.6025°N, 127.1814°E	217	Rural	EANET
中国 Lulin	23.470°N, 120.870°E	30	GAW Other elements	WDCGG
韩国 Anmyeon-do	36.5386°N, 126.33°E	2862	GAW Regional	WDCGG
日本 Yonagunijima	24.4667°N, 123.0106°E	42	GAW Regional	WDCGG
越南 Pha Din	21.5731°N, 103.5157°E	1466	GAW Regional	WDCGG

1.2　评估方法

1.2.1　误差衡量参数　本研究的站点观测对比图中选取了相关系数和均方根误差两个误差衡量参数,用于对比可变分辨率和传统网格分辨率的 CESM 模型与站点观测值之间的差异,更为直接的体现可变分辨率的 CESM 模型在东亚地区对大气污染物模拟的优势.

相关系数是用来衡量两个变量之间线性相关程度的统计量,由皮尔逊(Pearson)提出.皮尔逊相关系数是一种最常见的相关系数,通常用字母 R 表示.

$$R=\frac{\mathrm{cov}(X,Y)}{\mathrm{std}(X)\cdot\mathrm{std}(Y)} \tag{1}$$

式中: cov(X,Y)表示 X 和 Y 的协方差; std(X)和 std(Y)分别表示 X 和 Y 的标准差.相关系数越接近于 1 则说明两组数据相关系数越高.

均方根误差(RMSE)是一种常用的评估模型模拟准确度的指标.它表示模拟值与实际值之间误差平方和的平均值的平方根,计算式如下:

$$\mathrm{RMSE}=\mathrm{sqrt}\left(\frac{1}{n}\cdot\mathrm{sum}\left((\breve{y}_i-y_i)^2\right)\right) \tag{2}$$

式中: n 表示样本数据总量; y_i 表示第 i 个样本的实际值, $\breve{y}_i$ 表示第 i 个样本的模拟值; sqrt()表示平方根, sum()表示求和.

1.2.2　高斯误差拟合　高斯误差拟合[33-34]是一种常用的曲线拟合方法,基于最小二乘法原理,对数据点进行回归分析,根据高斯分布的概率密度函数对数据进行拟合.在高斯误差拟合中,通常假设数据点满足高斯分布(也称为正态分布),即数据点的分布形状呈钟形曲线,公式如下:

$$f(x)=\frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}}\cdot e^{-\frac{(x-\mu)^2}{2\sigma^2}} \quad (3)$$

式中:μ 代表模拟结果与观测结果的误差均值,即误差分布的对称轴;σ 代表模拟结果与观测结果误差的标准差,即误差分布的离散程度,标准差越大,分布越分散;标准差越小,分布越集中.

1.3 模式设置

表 2 模拟实验设置

Table 2 Simulation experiment setup

案例名称	SE	FCSD
模型	CESM2.2.0	CESM2.2.0
组件	FCnudged	FCSD
物理方案	CAM6.3	CAM6.3
化学机制	MOZART-TS1	MOZART-TS1
动力方案	MERRA2Nudging	MERRA2Nudging
模拟年份	2017~2019	2017~2019
spin-up 时段	2017	2017
分析时段	2018~2019	2018~2019
分辨率	东亚 0.25°,其他地区 1°;32 层	0.9°×1.25°;56 层
排放数据	CMIP6 (2015 年循环)	CMIP6 (2015 年循环)
计算时长	49.3h/a	29.3h/a

本文中 CESM 模式使用的版本为最新发布的 2.2.0 版,包含了最新的大气模块 CAM6.3 (Community Atmosphere Model, version6.3),具有平流层和对流层化学完全耦合,化学机制为 MOZART-TS1,开展了两组实验(表 2),一组采用 0.9°×1.25°传统网格分辨率的 CESM 模拟实验(FCSD),垂直 56 层,层顶气压为 1.86hPa;另一组使用 MUSICAv0 模型(SE),本研究基于 Yue 等[24]的东亚地区水平分辨率加密网格,该网格中东亚地区细化后的区域水平分辨率达 0.25°(约 28km),垂直分辨率 32 层,模式层顶气压 3.64hPa.两组实验均由 MERRA2 (Modern-Era Retrospective analysis for Research and Applications, Version 2)再分析气象数据驱动,该数据集水平分辨率为 1.9°×2.5°,垂直层数为 56 层,时间分辨率为 1d 4 次,网格精细化实验(SE)中气象场通过插值程序将 MERRA2 再分析数据以保守插值的方式插值到 MUSICAv0 网格中,使得气象场数据的水平及垂直分辨率能与 MUSICAv0 网格匹配.排放清单使用 CMIP6,模式循环读取 2015 年的排放.模拟实验的年份为 2017~2019 年,2017 年为 spin-up 时段,数据分析时段为 2018~2019 年.网格精细化实验(SE)也需要将排放清单进行细化匹配.两组实验均采用离线计算.

2 结果与讨论

2.1 对流层臭氧评估

基于 OMI/MLS 卫星数据,评估 2018~2019 年东亚地区四季平均对流层 O_3 柱浓度的时空分布,并对比了 SE 与 FCSD 的模拟结果(图 1).DJF、MAM、JJA、SON 分别代表冬、春、夏、秋季.两组实验的模拟结果均再现了东亚地区 TCO 冬低夏高的时空分布特征,并呈现冬低夏高的趋势.但模拟结果普遍偏高,特别是中国东部夏季,高出约 5DU.SE 模拟的 TCO 普遍比 FCSD 模拟的 TCO 高出约 2DU,比 OMI/MLS 卫星数据中的 TCO 高出 5~6DU.模拟结果中,TCO 是通过将 O_3 从地表积分到对流层顶计算,虽然单从均值来看 FCSD 模拟的 TCO 比 SE 模拟的 TCO 更加接近于 OMI/MLS 卫星数据,这可能是 SE 的垂直分辨率相对于 FCSD 的垂直分辨率较粗所导致的(图 2),SE 的垂直分辨率为 32 层,在对流层内大概有 16 层;FCSD 的垂直分辨率为 56 层,在对流层内大概有 30 层.两者的垂直分层差异主要集中在平流层中上层以及对流层中下层,在对流层顶附近的垂直分层差异并不明显.SE 所呈现的 TCO 分布趋势与 FCSD 基本一致,青藏高原地区由于其特殊的地形一年四季都是东亚 TCO 的低值中心,东亚 TCO 高值区有明显的季节性向北扩展的现象.冬季东亚地区 TCO 超过 45DU 的高值区位于中低纬度地区,春季开始向北扩展,夏季该高值区范围扩展到高纬度地区,秋季开始往南退减,冬季退至中低纬度地区. 两组实验的模拟结果在冬春秋季时的高值区,SE 相对于 FCSD 明显偏低,说明精细化网格模拟的 TCO 对于普通网格模拟的 TCO 在高值区的偏高有着良好的改善,其中包括四川盆地、珠三角以及长三角地区.

图 3 为 2018~2019 年中国区域四季平均地表 O_3 站点分布.如图所示,地表 O_3 呈现显著的季节变化,冬季浓度低,夏季浓度高.SE 模拟的春秋冬季地表 O_3 均值比 FCSD 更加接近 CNEMC 的观测数据,表明 SE 在区域尺度上对 O_3 的模拟性能优于 FCSD. SE 改善了春季华南地区以及春冬季部分四川盆地 FCSD 模拟偏高的缺陷.夏季时,虽然 FCSD 的模拟结果均值比 SE 更接近 CNEMC 的观测数据,但 SE 缓解了京津冀地区 FCSD 模拟偏低以及华南部分地区

模拟偏高的缺陷.总体来看,SE 对于地表 O_3 模拟的改善主要集中在华北、长三角以及部分华南地区,经过 SE 改善过的区域地表 O_3 的空间分布与 CNEMA 观测数据高度一致.

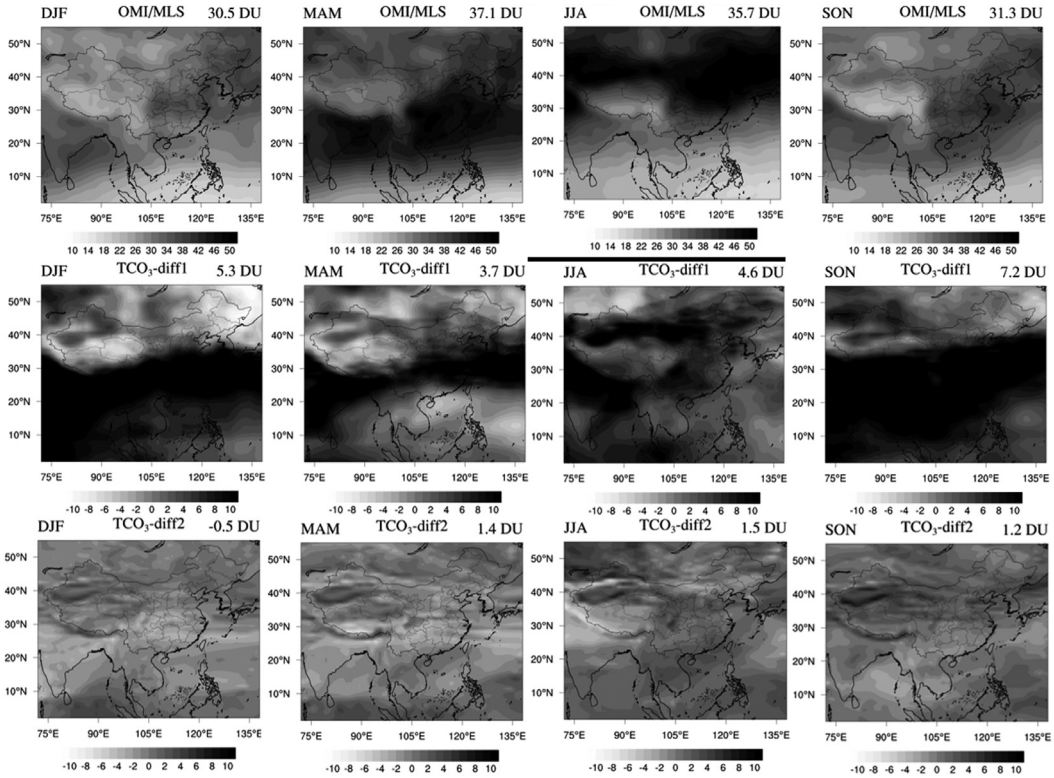


图 1　2018~2019 年东亚地区四季平均对流层 O_3 柱浓度(TCO, DU)

Fig.1　The seasonal average tropospheric ozone column concentration (TCO, DU) in East Asia from 2018 to 2019

第一行为 OML/MLS 的卫星观测数据,第二行为 FCSD 与卫星观测数据的差值(TCO_3−diff1),第三行 SE 与 FCSD 的差值(TCO_3−diff2).右上角的数值为研究区域的平均值

审图号:GS(2016)2556 号

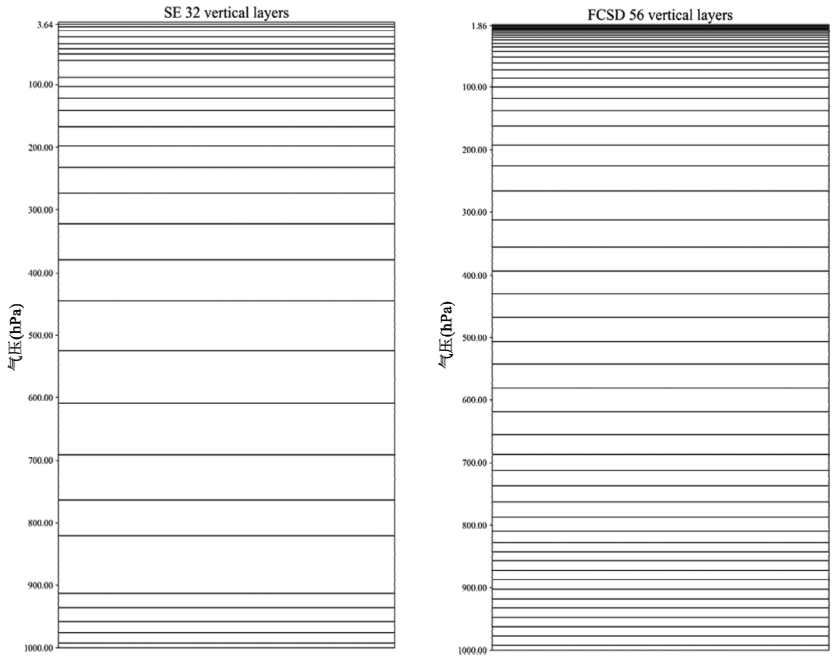


图 2　SE 及 FCSD 模拟方案的垂直分层

Fig.2　Vertical stratification of the refined and traditional model simulation schemes

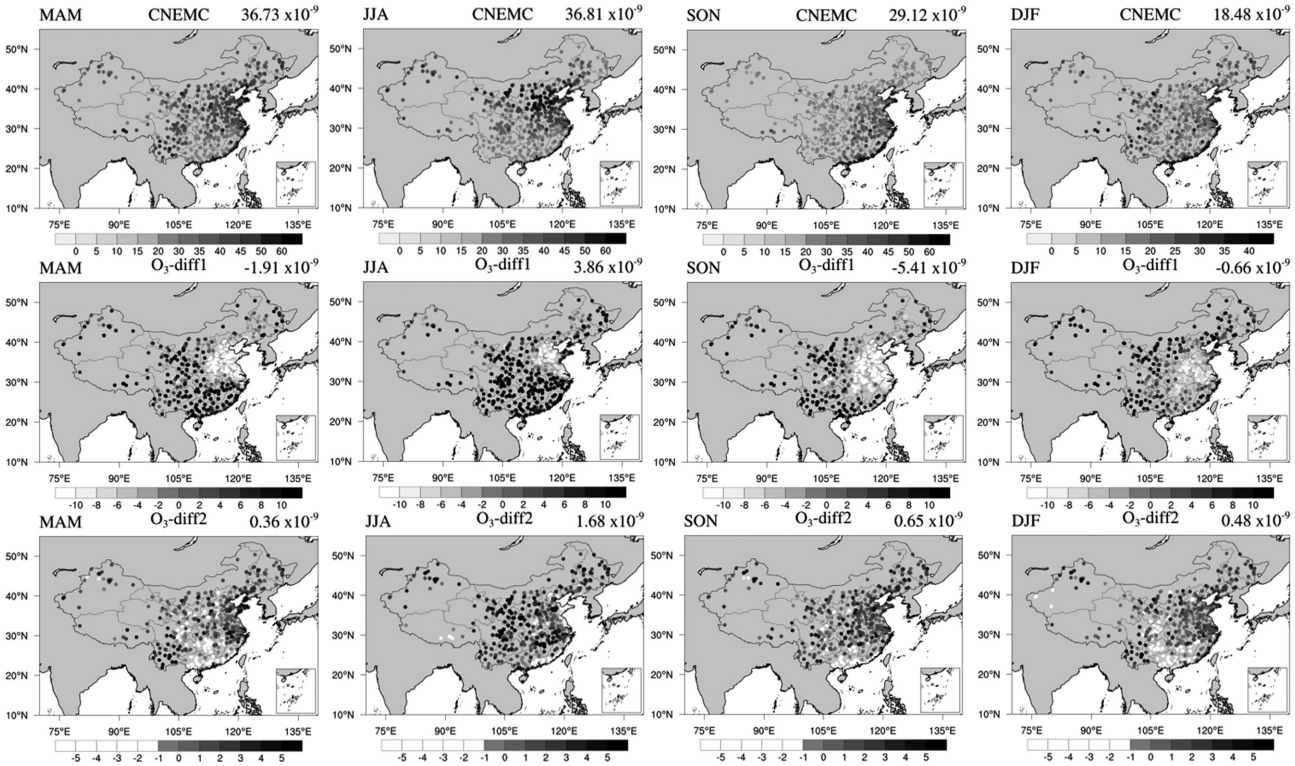


图 3 2018~2019 年中国区域四季平均地表 O_3 站点分布图(体积混合比,10^{-9})

Fig.3 Spatial distribution of seasonal mean surface O_3 concentrations at monitoring sites across China during 2018~2019 (volume mixing ratio, 10^{-9})

第一行代表 CNEMC 的数据,第二行代表 FCSD 与 CNEMC 的差值(O_3−diff1),第三行代表 SE 与 FCSD 的差值(O_3−diff2).右上角的数值为研究区域的平均值

审图号:GS(2016)2556 号

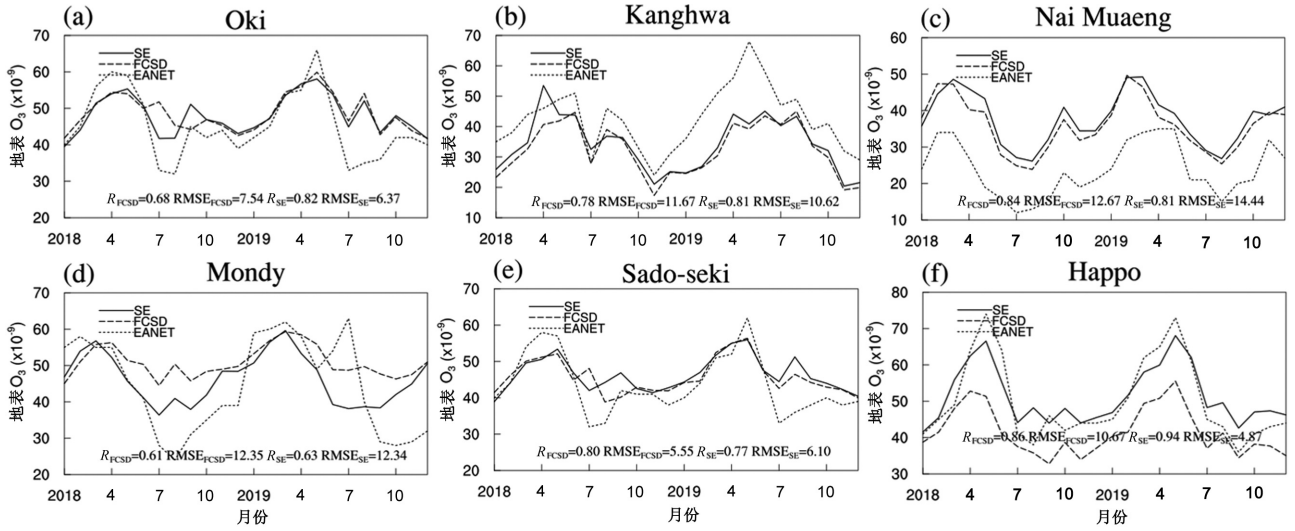


图 4 O_3 站点观测对比(体积和混合比,10^{-9})

Fig.4 Comparison of ozone site observations (volume mixing ratio, 10^{-9})

实线代表 SE 的模拟结果,虚线代表 FCSD 的模拟结果,点线代表 EANET 的站点观测结果

两组实验模拟的地表 O_3 与 EANET 观测值的比较表明(图 4),模拟再现了这些站点的季节变化,SE 模拟的地表 O_3 与 EANET 的站点观测值的相关系数(R_{SE})都比较高.在 Oki, Kanghwa, Mondy, Happo 4 个站点(图 4(a),图 4(b),图 4(d)和图 4(f)),R_{SE} 均大于 FCSD 与观测值之间的相关系数(R_{FCSD}),且 SE 与观

测值之间的误差($RMSE_{SE}$)均小于FCSD与观测值之间的误差($RMSE_{FCSD}$),间接说明了 SE 对于地表 O_3 的模拟表现略好于 FCSD.相反在 Nai−Muaeng 和 Sado−Seki 站点(图 4(c)和图 4(e)),R_{FCSD} 大于 R_{SE},且 $RMSE_{FCSD}$ 小于 $RMSE_{SE}$,其原因可能是 SE 与 FCSD 的垂直分辨率的差异,导致 SE 在该地区的优化不显著.但总体来说,SE 对于 O_3 的模拟结果比 FCSD 更接近站点观测数据.

从图 5 的高斯误差拟合曲线可以看出,对于 Oki,Sado−seki 这两个站点(图 5(a),图 5(c)),SE 的 σ 均比 FCSD 的 σ 小.但对于 Happo 和 Mondy 站点的模拟(图 5(b),图 5(d)),SE 的 σ 比 FCSD 的 σ 更大,可能的原因是 Happo 站点和 Mondy 站点的海拔位置较高(分别为 1850m 和 1996m),由于 SE 的垂直分层没有 FCSD 细,故而 FCSD 对于高海拔站点的取值比 SE 更加精确.但在这 4 个站点中,SE 的 μ 均比 FCSD 的 μ 更接近于 0,证明了在区域尺度上可变分辨率的 CESM 模型对 O_3 的模拟误差小于传统网格的 CESM 模型,具有更优的表现.

总的来说,可变分辨率的 CESM 模型模拟的表现与传统网格的 CESM 模型对 O_3 浓度水平在较大时空特征上的表现非常相似,但在某些细节的呈现上传统网格的 CESM 模型的模拟效果弱于可变分辨率的 CESM 模型,这表明了可变分辨率的 CESM 模型在区域尺度上模拟大气污染物有很好的实用性.再加上地球系统模型与普通区域模型相比,具有完全耦合的平流层分量,为对流层 O_3 相关研究,特别是平流层入侵的影响,提供了更好的选择.

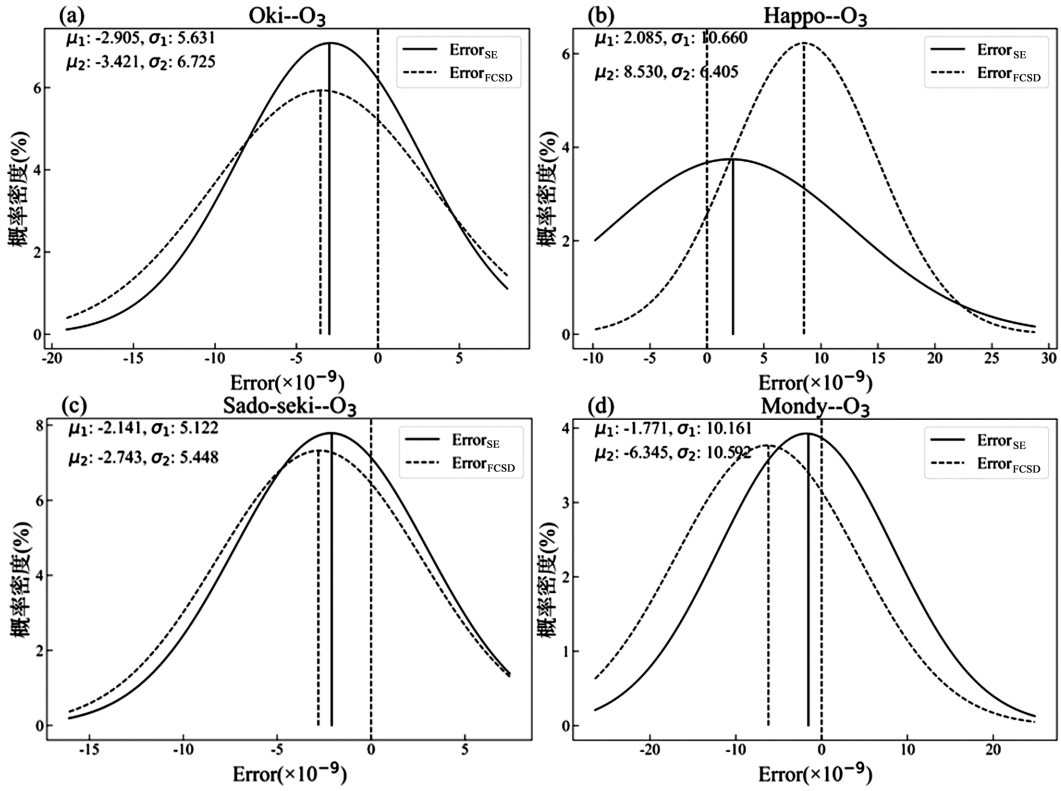


图 5　O_3 高斯误差拟合曲线图(体积和混合比,10^{-9}),

Fig.5　The figure shows the Gaussian error fitting curve for O_3 (volume mixing ratio,10^{-9})

实曲线代表 SE 的模拟结果与 EANET 站点观测值的误差,虚曲线代表 FCSD 的模拟结果与 EANET 站点观测值的误差,垂直于 X 轴的三条线分别代表 SE(实线)和 FCSD(虚线)与观测数据的误差均值以及零线.图中μ是高斯分布的均值(μ1 为 SE,μ2 为 FCSD);σ是分布的标准差(σ1 为 SE, σ2 为 FCSD)

2.2　其他污染物的评估

2.2.1　地表 CO 评估　CO 不仅是一种主要的大气污染物,还是一种重要的示踪物,用于研究污染物在大气中的转化、传输和再分布过程,它与 OH 的反应对 O_3 的大气化学过程具有重要影响,因此很有必要评估 CO 的模拟效果.

如图 6 所示,SE 模拟的地表 CO 与 CNEMC 观测数据呈现相同的季节变化,冬季浓度高,夏季浓度低,与 O_3 相反.这是因为相对于其他季节来说:夏季

光照充足、水汽含量高以及温度适合,这些因素更有利于 OH 自由基的生成,从而也加速了 CO 与 OH 自由基的反应,使 CO 的浓度相对于其他季节较低.CESM 能够成功地反映这一显著特征,说明其在光化学反应机理方面的处理是较为成功的.在中国区域内对于 CO 的模拟,FCSD 的模拟结果显著低估了地表 CO 浓度的平均水平,这很可能是模式采用的 CMP6 排放清单对中国地区排放量时空分布的估算存在偏差.但在相同排放清单的条件下,SE 的模拟结果缓解了 FCSD 对国内大部分地区地表 CO 的低估,其中包括四大重点城市群(京津冀,珠三角,长三角以及四川盆地).SE 模拟的 2018~2019 年的地表 CO 浓度均值比 CNEMC 观测数据低约 158×10^{-9},FCSD 低约 165×10^{-9},说明 SE 模拟结果比 FCSD 模拟结果更接近于 CNEMC 观测数据,表明了 SE 对 CO 的模拟效果亦优于 FCSD.

由 CO 站点观测对比图可以看出(图 7),在这 4 个站点中,SE 模拟的地表 CO 与 WDCGG 观测值的相关系数(R_{SE})都在 0.8 以上, R_{SE} 均大于 R_{FCSD} 且 $RMSE_{SE}$ 均小于 $RMSE_{FCSD}$,证明 SE 对于地表 CO 的模拟效果好于 FCSD.两组实验均较好的呈现了 Anmyeon-do 和 Yonagunijima 站点的季节变化(图 7(a)和图 7(c)),模拟结果与观测结果吻合较好.从图 7(b)和图 7(d)可以看出在 2019 年 4 月份两组实验模拟结果与 WDCGG 的观测值有着显著的差异,其原因可能是 Pha Din 和 Lulin 两个站点属于高海拔站点,模拟结果对于高海拔站点的取值并没有低海拔观测站点精确.

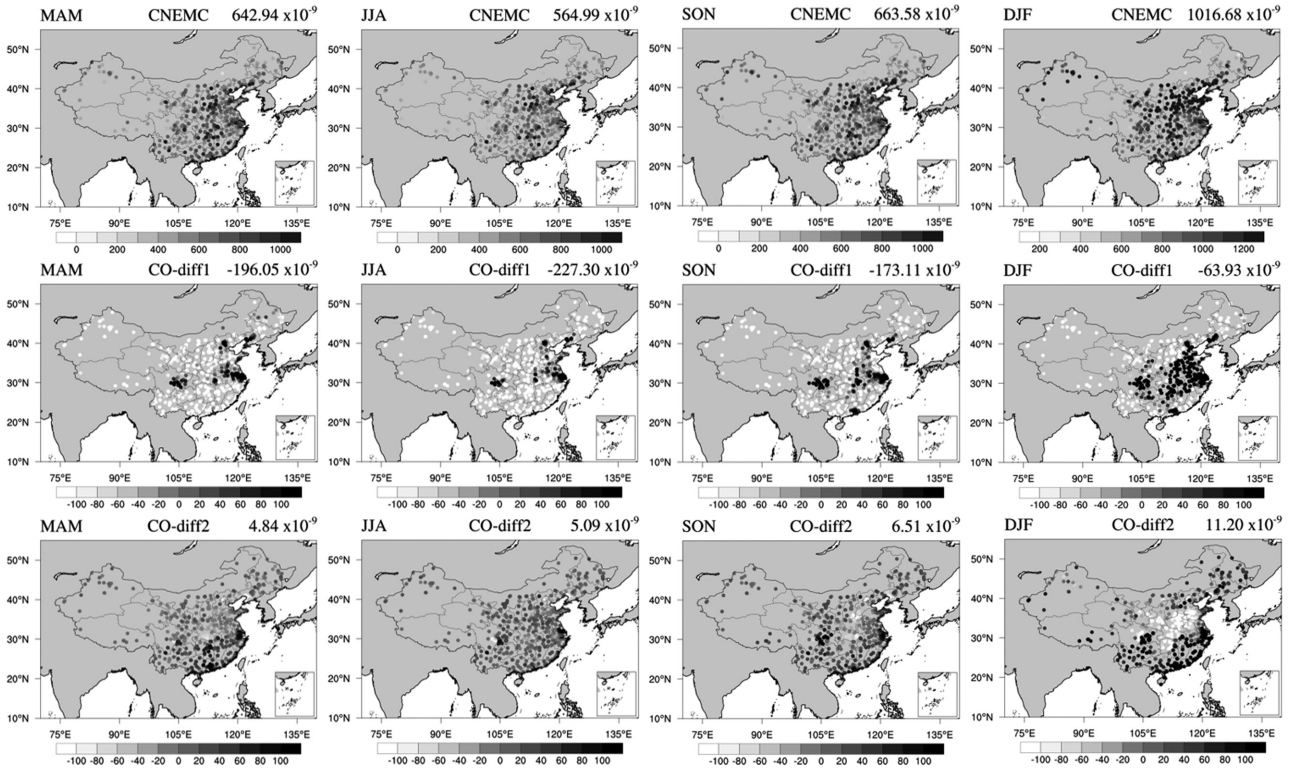


图 6 2018~2019 年中国区域四季平均地表 CO 站点分布图(体积混合比,10^{-9})

Fig.6 Spatial distribution of seasonal mean surface CO concentrations at monitoring sites across China during 2018~2019 (volume mixing ratio,10^{-9})

第一行代表 CNEMC 的数据,第二行代表 FCSD 与 CNEMC 的差值(CO-diff1),第三行代表 SE 与 FCSD 的差值(CO-diff2).右上角的数值为研究区域的平均值

审图号:GS(2016)2556 号

从 CO 高斯误差拟合曲线(图 8)可以看出,SE 的 μ 均比 FCSD 的 μ 小,并且在 Anmyeon-do、Pha Din 和 Lulin 3 个站点(图 8(a)、图 8(b)和图 8(d)),SE 的 σ 也是小于 FCSD 的 σ.在 Yonagunijima 站点(图 8(c)),SE 的 σ 略大于 FCSD,说明在该站点 SE 的模拟结果与 WDCGG 观测值的误差比 FCSD 的模拟结果与 WDCGG 观测值的误差略微分散,但总体来说 SE 对于 CO 的模拟效果好于 FCSD.

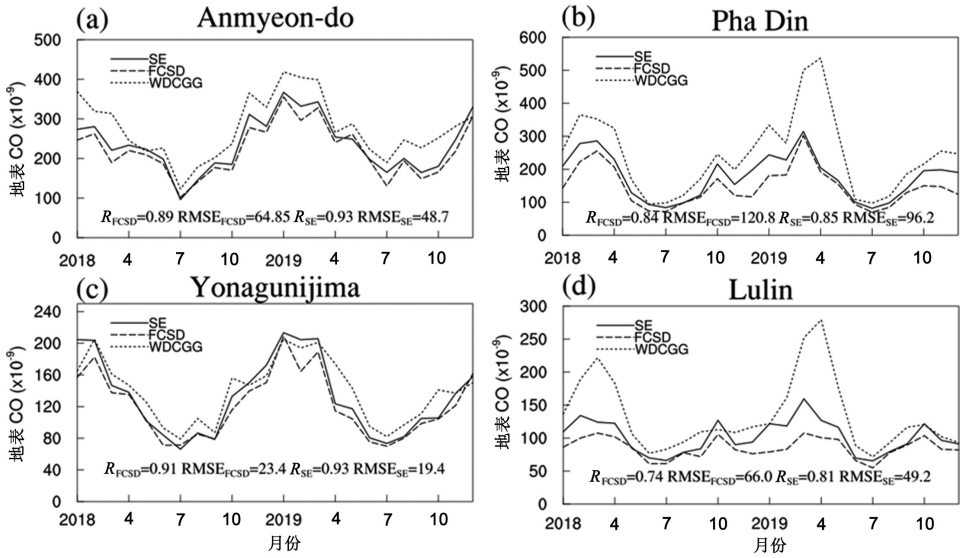


图 7　CO 站点观测对比图(体积混合比,10^{-9})

Fig.7　CO site observation comparison chart(volume mixing ratio,10^{-9})

红线代表 SE 的模拟结果,蓝线代表 FCSD 的模拟结果,灰色虚线代表 WDCGG 的站点观测结果

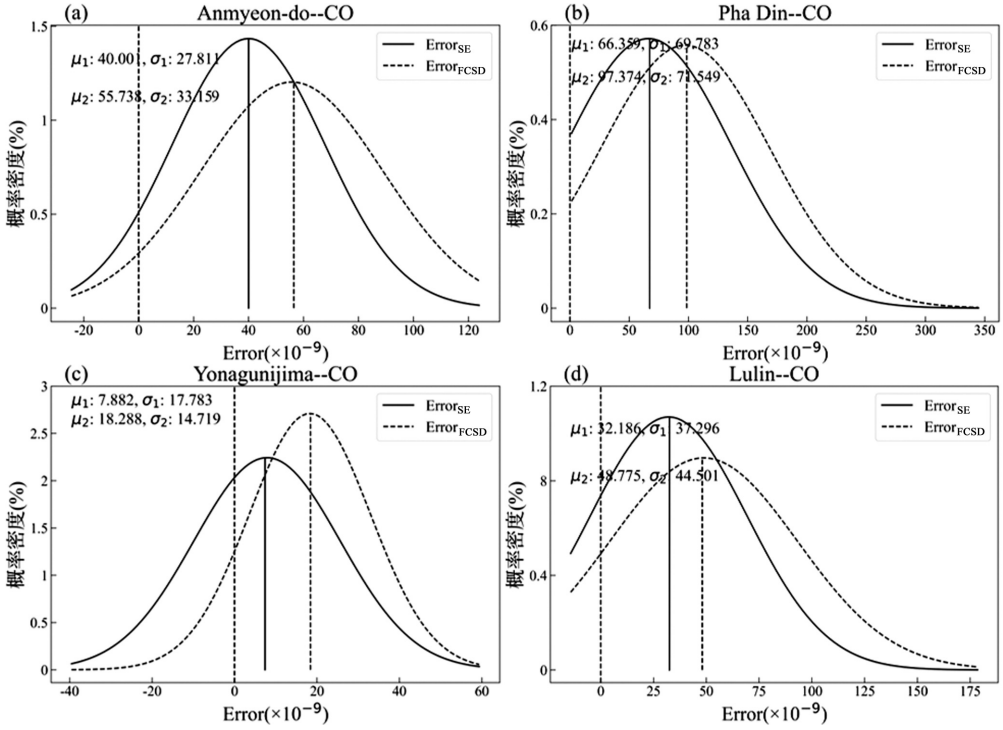


图 8　CO 高斯误差拟合曲线图(体积和混合比,10^{-9})

Fig.8　The figure shows the Gaussian error fitting curve for CO (volume mixing ratio, 10^{-9})

实曲线代表 SE 的模拟结果与 EANET 站点观测值的误差,虚曲线代表 FCSD 的模拟结果与 EANET 站点观测值的误差,垂直于 X 轴的三条线分别代表 SE(实线)和 FCSD(虚线)与观测数据的误差均值以及零线.图中μ是高斯分布的均值(μ1 为 SE,μ2 为 FCSD);σ是分布的标准差(σ1 为 SE, σ2 为 FCSD)

2.2.2　地表 NO_2 评估　氮氧化物(NO_x),包括一氧化氮(NO)和二氧化氮(NO_2),是形成 O_3 的主要前体污染物之一.在阳光照射下,NO_x 与挥发性有机化合物(VOCs)发生复杂的光化学反应,这一过程被称为光化学臭氧生成过程.NO_2 在紫外光照射下可以直接发生光解,产生 NO 和氧原子,这些氧原子随后与氧气反应生成臭氧.因此,评估 SE 对 NO_2 的模拟效果有利于进一步理解该模式对 O_3 方面的模拟性能.

由图 9 可见, SE 和 FCSD 模拟的地表 NO_2 均呈

现出与 CNEMC 观测数据相吻合的东高西低的空间分布,再从季节分布来看,均是夏季最低,冬季最高.两组实验都高估了地表 NO_2 的浓度水平,其原因也很可能是模式采用的 CMP6 排放清单对中国地区排放量时空分布的估算存在系统偏差,但 SE 对 NO_2 的高估相比于 FCSD 有明显的缓解,尤其是在中国东部地区以及京津冀地区.SE 模拟的 2018~2019 年的地表 NO_2 浓度均值比 CNEMC 观测数据高约 0.9×10^{-9},FCSD 高约 1.3×10^{-9},说明了 SE 的模拟结果比 FCSD 更接近于 CNEMC 观测数据.

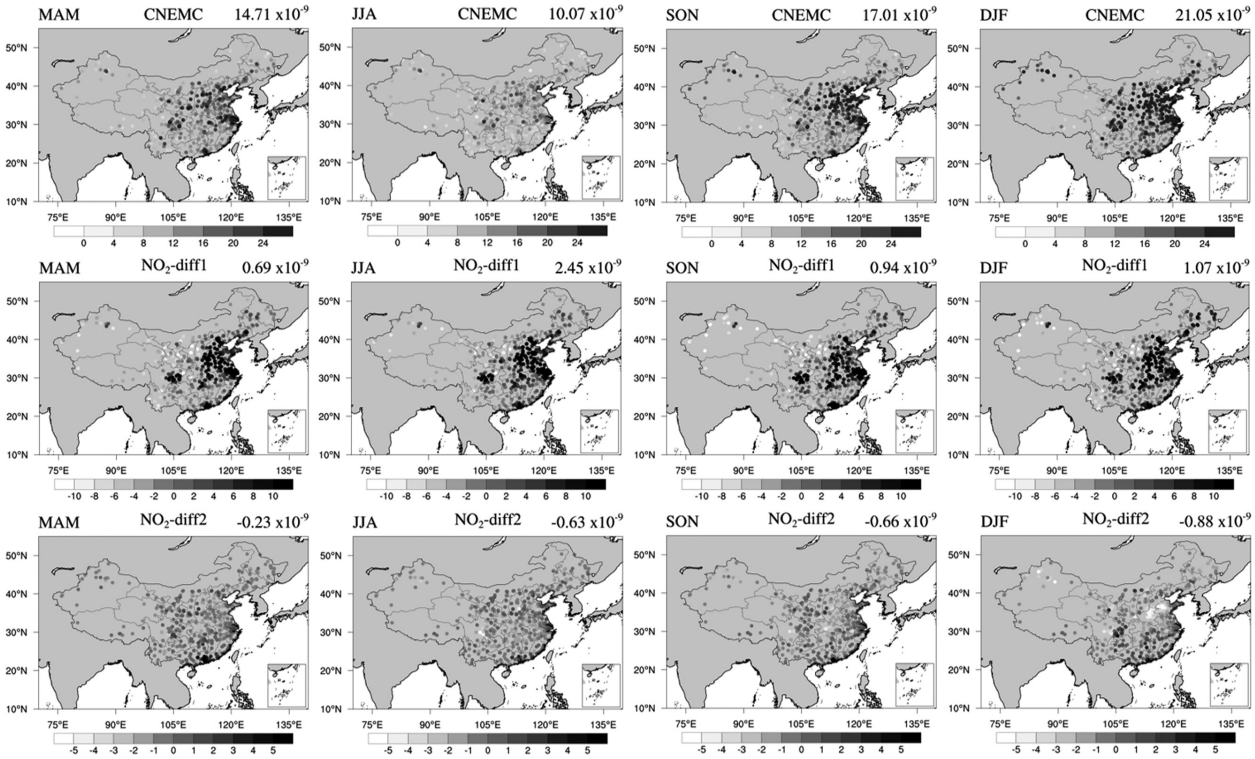


图 9 2018~2019 年中国区域四季平均地表 NO_2 站点分布图(体积混合比,10^{-9})

Fig.9 Spatial distribution of seasonal mean surface NO_2 concentrations at monitoring sites across China during 2018~2019 (volume mixing ratio, 10^{-9})

第一行代表 CNEMC 的数据,第二行代表 FCSD 与 CNEMC 的差值(NO_2-diff1),第三行代表 SE 与 FCSD 的差值(NO_2-diff2).右上角的数值为研究区域的平均值

审图号:GS(2016)2556 号

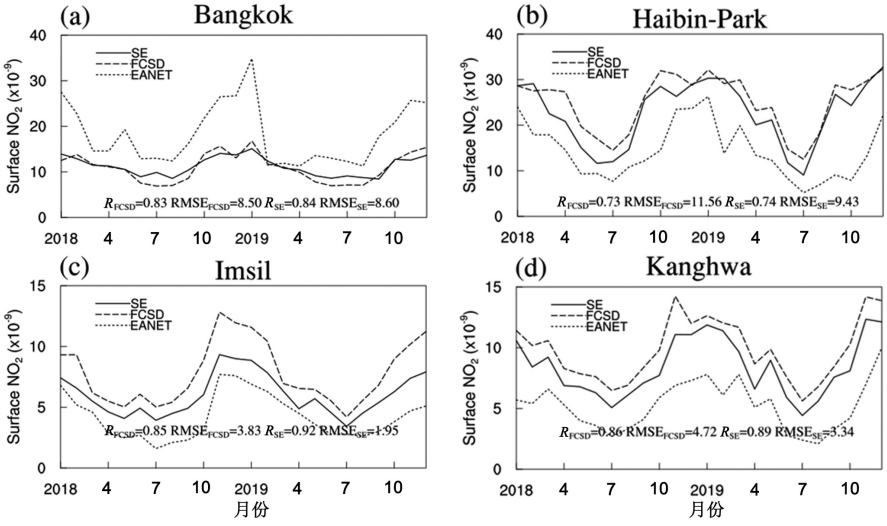


图 10 NO_2 站点观测对比图(体积混合比,10^{-9})

Fig.10 NO_2 site observation comparison chart (volume mixing ratio, 10^{-9})

红线代表 SE 的模拟结果,蓝线代表 FCSD 的模拟结果,灰色虚线代表 CNEMC 的站点观测结果

由图 10 可以看出,两组实验模拟的地表 NO_2 与 EANET 站点观测值的比较表明,模拟再现了这些站点的季节变化,SE 模拟的地表 NO_2 与 EANET 的站点观测值的相关系数(R_{SE})都比较高.图 10(c)和图 10(d)可以明显看出 SE 对 Imsil 和 Kanghwa 站点的模拟效果好于 FCSD,SE 对于这两个站点的模拟结果与 EANET 观测值之间的误差都比较小.但 SE 对于 Bangkok 和 Haibin−park(图 10(a)和图 10(b))这两个站点的模拟误差($RMSE_{SE}$)相对较大,可能的原因是 Bangkok 和 Haibin−park 这两个站点属于城市站点,相对于 Imsil 和 Kanghwa 两个乡村站点来说受城市工业和交通排放的影响较大.

从 NO_2 的高斯误差拟合曲线图可以看出(图 11),对于 4 个站点的模拟,SE 的误差均值(μ)均比 FCSD 的 μ 更趋近于 0,但在 Bangkok 和 Haibin−park 站点(图 11(a)和图 11(b)),SE 的误差离散程度(σ)大于 FCSD,可能的原因是 Bangkok 和 Haibin−park 属于城市站点,受人为等模式不可控的因素较大.

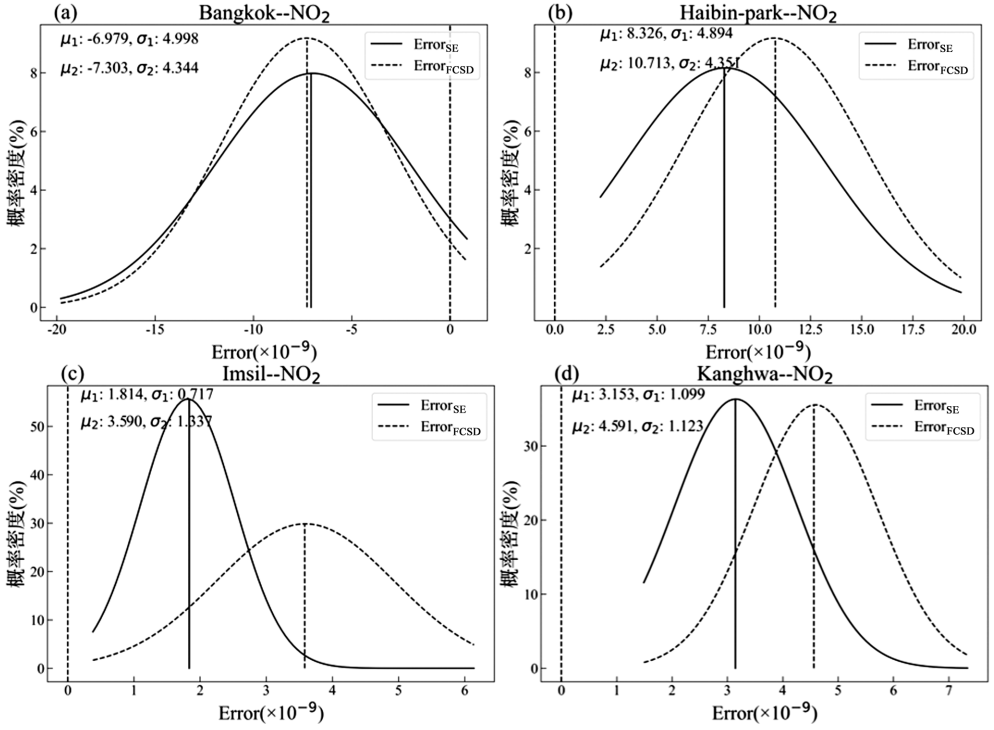


图 11　NO_2 高斯误差拟合曲线图(体积和混合比,10^{-9})

Fig.11　The figure shows the Gaussian error fitting curve for NO_2(volume mixing ratio, 10^{-9})

实曲线代表 SE 的模拟结果与 EANET 站点观测值的误差,虚曲线代表 FCSD 的模拟结果与 EANET 站点观测值的误差,垂直于 X 轴的三条线分别代表 SE(实线)和 FCSD(虚线)与观测数据的误差均值以及零线.图中μ是高斯分布的均值(μ1 为 SE, μ2 为 FCSD);σ是分布的标准差(σ1 为 SE, σ2 为 FCSD)

4　结论

4.1　SE 所呈现的东亚 TCO 的时空分布与 FCSD 基本一致,均呈现出 TCO 高值区显著的季节性向北扩展,青藏高原地区常年为 TCO 低值中心.SE 模拟结果的空间分布在高值区周围显示出更强的变化梯度,精细化程度更高.传统网格分辨率的 CESM 模型因其更细致的垂直分层,在模拟对流层臭氧柱浓度方面展现出优越性,但 SE 和 FCSD 的垂直分辨率在对流层顶附近的差异并不明显,因此可变分辨率的 CESM 模型可以作为研究平流层−对流层物质交换的实用工具.

4.2　SE 模拟的春秋冬季地表 O_3 均值比 FCSD 更加接近 CNEMC 观测数据,表明 SE 在区域尺度上对于 O_3 的模拟性能优于 FCSD, SE 对于地表 O_3 模拟的改善主要集中在华北、长三角以及部分华南地区,经过 SE 改善过的区域地表 O_3 的空间分布与 CNEMA 观测数据高度一致,误差比 FCSD 降低了 5%. SE 模拟的地表 O_3 与 EANET 的站点观测值的相关系数大部分比 FCSD 高(平均高约 3.5%),且 SE 与观测值之间的误差大部分也小于 FCSD 与观测值之间的误差,再次证明了 SE 对于地表 O_3 的模拟表现优于 FCSD.

虽然在个别站点由于 SE 略粗的垂直分辨率,导致 SE 在该地区的优化不显著,但总体来说 SE 对于 O_3 的模拟结果比 FCSD 更接近站点观测数据.

4.3 对于 CO 和 NO_2 的模拟,SE 和 FCSD 均呈现出 CNEMC 观测数据中东高西低的空间分布以及冬高夏低的季节分布,但 FCSD 的模拟结果显著低估了地表 CO 浓度水平,高估了 NO_2 浓度,这很可能是模式采用的 CMIP6 排放清单对中国地区排放量时空分布的估算存在偏差.在相同排放清单的条件下,SE 的模拟结果缓解了 FCSD 对 CO 的低估以及 NO_2 的高估,误差比 FCSD 分别降低了 6.4%和 52.9%.国际站点观测的对比也均证明 SE 对 CO 和 NO_2 的模拟结果与观测数据更加吻合.

参考文献:

[1] 曹庭伟,吴 锴,康 平,等.成渝城市群臭氧污染特征及影响因素分析 [J]. 环境科学学报, 2018,38(4):1275-1284.
Cao T W, Wu K, Kang P, et al. Analysis of ozone pollution characteristics and influencing factors in the Chengdu-Chongqing Urban Agglomeration [J]. Journal of Environmental Sciences, 2018, 38(4):1275-1284.

[2] Feng Y, Ning M, Lei Y, et al. Defending blue sky in China: Effectiveness of the “Air Pollution Prevention and Control Action Plan” on air quality improvements from 2013 to 2017 [J]. Journal of environmental management, 2019,252:109603.

[3] Barrett B S, Raga G B, Retama A, et al. A multiscale analysis of the tropospheric and stratospheric mechanisms leading to the March 2016 extreme surface ozone event in Mexico City [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2019,124(8):4782-4799.

[4] Yi F, McCarl B A, Zhou X, et al. Damages of surface ozone: Evidence from agricultural sector in China [J]. Environmental Research Letters, 2018,13(3):034019.

[5] Chaudhary I J, Rathore D. Effects of ambient and elevated ozone on morphophysiology of cotton (Gossypium hirsutum L.) and its correlation with yield traits [J]. Environmental Technology & Innovation, 2022,25:102146.

[6] 林秋寒,蒋荣复,林 楠,等.基于 WRF-CAMx 模式的近地面臭氧污染事件的个例分析 [J]. 气象与环境科学, 2024,47(3):104-111.
Lin Q H, Jiang F R, Lin N, et al. Case analysis of surface ozone pollution episodes based on the WRF-CAMx Modeling System [J]. Meteorological and Environmental Sciences, 2024,47(3):104-111.

[7] Holloway T, Levy H, Kasibhatla P. Global distribution of carbon monoxide [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2000, 105(D10):12123-12147.

[8] 王玉婷.南极中山站近地面臭氧和一氧化碳的本底特征研究 [D]. 北京:中国气象科学研究院, 2011.
Wang Y T. Baseline characteristics of surface ozone and carbon monoxide at Antarctica's Zhongshan Station [D]. Beijing: Chinese Academy of Meteorological Sciences, 2011

[9] Chi Y, Fan M, Zhao C, et al. Machine learning-based estimation of ground-level NO_2 concentrations over China [J]. Science of The Total Environment, 2022,807:150721.

[10] Boersma K F, Jacob D J, Bucsela E J, et al. Validation of OMI tropospheric NO2observations during INTEX-B and application to constrain NO_x emissions over the eastern United States and Mexico [J]. Atmospheric Environment, 2008,42(19):4480-4497.

[11] Knowlton K, Rosenthal J E, Hogrefe C, et al. Assessing ozone-related health impacts under a changing climate [J]. Environmental health perspectives, 2004,112(15):1557-1563.

[12] Hou X, Wild O, Zhu B, et al. Future tropospheric ozone budget and distribution over east Asia under a net-zero scenario [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2023,23(24):15395-15411.

[13] Chang F, Li J, Li N, et al. Stratospheric intrusion may aggravate widespread ozone pollution through both vertical and horizontal advections in eastern China during summer [J]. Frontiers in Environmental Science, 2023,10:1115746.

[14] Park S H, Klemp J B, Skamarock W C. A comparison of mesh refinement in the global MPAS-A and WRF models using an idealized normal-mode baroclinic wave simulation [J]. Monthly Weather Review, 2014,142(10):3614-3634.

[15] Neal L S, Dalvi M, Folberth G, et al. A description and evaluation of an air quality model nested within global and regional composition-climate models using MetUM, Geosci. Model Dev., 10, 3941–3962 [J]. cited on page, 2017,43.

[16] Giorgetta M A, Brokopf R, Crueger T, et al. ICON-A, the atmosphere component of the ICON earth system model: I. Model description [J]. Journal of Advances in Modeling Earth Systems, 2018,10(7):1613-1637.

[17] Tang Y, Lee P, Tsidulko M, et al. The impact of chemical lateral boundary conditions on CMAQ predictions of tropospheric ozone over the continental United States [J]. Environmental fluid mechanics, 2009,9:43-58.

[18] Herron-Thorpe F L, Mount G H, Emmons L K, et al. Regional air-quality forecasting for the Pacific Northwest using MOPITT/TERRA assimilated carbon monoxide MOZART-4forecasts as a near real-time boundary condition [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2012, 12(12):5603-5615.

[19] Barth M C, Lee J, Hodzic A, et al. Thunderstorms and upper troposphere chemistry during the early stages of the 2006 North American Monsoon [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2012, 12(22):11003-11026.

[20] Wang X, Wu Y, Randel W, et al. Stratospheric contribution to the summertime high surface ozone events over the western united states [J]. Environmental Research Letters, 2020,15(10):1040a6.

[21] Schwantes R H, Lacey F G, Tilmes S, et al. Evaluating the impact of chemical complexity and horizontal resolution on tropospheric ozone over the conterminous US with a global variable resolution chemistry model [J]. Journal of Advances in Modeling Earth Systems, 2022, 14(6):e2021MS002889.

[22] Danabasoglu G, Lamarque J F, Bacmeister J, et al. The community earth system model version 2 (CESM2) [J]. Journal of Advances in Modeling Earth Systems, 2020,12(2):e2019MS001916.

[23] Pfister G G, Eastham S D, Arellano A F, et al. The multi-scale infrastructure for chemistry and aerosols (MUSICA) [J]. Bulletin of the American Meteorological Society, 2020,101(10):E1743-E1760.

[24] Yue M, Dong X, Wang M, et al. Modeling the air pollution and aerosol-PBL interactions over China using a variable-resolution global model [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2023,128 (22):e2023JD039130.

[25] Tang W, Pfister G G, Kumar R, et al. Capturing high-resolution air pollution features using the multi-scale infrastructure for chemistry and aerosols version 0 (MUSICAv0) global modeling system [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2023,128(7): e2022JD038345.

[26] Yue M, Liu Y, Wang M, et al. Weakened aerosol-PBL interactions enhance future air quality benefits under carbon neutrality in China: Insights from the advanced variable-resolution global model [J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2024,129(22): e2024JD041106.

[27] Schwantes R H, Lacey F G, Tilmes S, et al. Evaluating the impact of chemical complexity and horizontal resolution on tropospheric ozone over the conterminous US with a global variable resolution chemistry model [J]. Journal of Advances in Modeling Earth Systems, 2022, 14(6):e2021MS002889.

[28] Ziemke J R, Chandra S, Labow G J, et al. A global climatology of tropospheric and stratospheric ozone derived from Aura OMI and MLS measurements [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2011, 11(17):9237-9251.

[29] Jiang Z, Li J, Lu X, et al. Impact of western Pacific subtropical high on ozone pollution over eastern China [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2021,21(4):2601-2613.

[30] Chen H, Wang H, Sun J, et al. Anthropogenic fine particulate matter pollution will be exacerbated in eastern China due to 21st century GHG warming [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2019,19(1): 233-243.

[31] Yoon J, Pozzer A. Model-simulated trend of surface carbon monoxide for the 2001~2010 decade [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2014,14(19):10465-10482.

[32] He H, Zheng T, Zhao J, et al. Improved Gaussian regression model for retrieving ground methane levels by considering vertical profile features [J]. Frontiers in Earth Science, 2024,12:1352498.

[33] 杨嘉瑞,和　杰,马旭林,等.青藏高原区域资料同化的变分质量控制研究:参数优化及其有效同化 [J]. 气象学报, 2024,82(4):443-458.
Yang J R, He J, Ma X L, et al. Variational quality control for data assimilation over the Tibetan Plateau: Parameter optimization and effective assimilation [J]. Acta Meteorologica Sinica, 2024,82(4): 443-458.

[34] 杨春生,寇蕾蕾,蒋银丰,等.雷达强降水数据小波域统计特征及其与环境参数的关系研究 [J]. 大气科学, 2022,46(6):1425-1436.
Yang C S, Kou L L, Jiang Y F, et al. Statistical characteristics of radar heavy rainfall data in wavelet domain and their relationship with environmental parameters [J]. Chinese Journal of Atmospheric Sciences, 2022,46(6):1425-1436.

致谢：本论文的数值计算得到了国家超级计算天津中心的天河新一代超级计算机以及南京信息工程大学高性能计算中心的计算支持和帮助,在此表示感谢.

作者简介：周逸超(2001-),男,贵州铜仁人,南京信息工程大学硕士研究生,研究方向为气象工程.202312480013@nuist.edu.cn.