扩散参数的不确定性及其对扩散因子的影响

胡二邦 王 寒 马红友

(中国辐射防护研究院,太原 030006)

摘要 根据联邦德国卡尔斯鲁厄核研究中心(KfK)31次示踪实验(排放高度为60m)结果,定量估算了高架源、大粗糙度地形条件下,各类天气相应的扩散参数的不确定度.发现同一地点、同一天气类型,扩散参数实测值相差可达二个量级,σ,的不确定 度随天气类型由A至F类而变大.采用拉丁超立方取样方法估算了上述扩散参数不确定度实测值所导致的小时轴向扩散因子 (从而导致空气浓度及吸入剂量等)的不确定度.在F类天气,扩散因子值相差可达4个数量级.图示了各类天气条件下扩散因 子不确定度随下风距离的变化关系.

关键词 大气扩散,扩散参数,扩散因子,不确定度.

Uncertainty of Diffusion Parameters and Its Effect on Diffusion Factor

Hu Erbang Wang Han Ma Hongyou (China Institute for Radiation Protection, Taiyuan 030006)

Abstract This paper estimates quantitatively uncertainty of diffusion parameters for various atmospheric stability under the condition of elevated release and large roughness based on the result of 31 tracer experiments (release hight of 60m) completed by Karlsruhe Nuclear Research Center (KfK), Germany. It could be seen that the difference of measuring values of diffusion parameter is able to reach 2 orders of magnitude even if in the same site and the same atmospheric stability. The uncertainty of σ increases with stability from A to F. The uncertainty of hour axial diffusion factor (and so air concentration) caused from above uncertainty of measuring values of diffusion parameter is estimated by using Latin Hypercube Sample(LHS) method. For F stability the difference of diffusion factor can reach 4 orders of magnitude. The relation between the uncertainty of diffusion factor and downwind distance under various atmospheric stability condition is shown by figures.

Keywords atmosphere diffusion, diffusion parameter, diffusion factor, uncertainty.

80 年代以来,环境评价模式的有效性与参数的不确定性研究,在国内外学术界受到广泛 关注^[1-5].本文根据笔者 1985—1986 年在德国 卡尔斯鲁厄核研究中心(KfK)进修期间所获得 的该中心在 70 年代进行的系列示踪实验(共 31 次)原始数据^[2,5],定量探讨了在类似 KfK 那样的高架源,大粗糙度地形条件下,相应于各 类天气的扩散参数的不确定度及其对小时轴向 扩散因子的影响.

1 扩散参数的不确定性

1.1 KfK 示踪实验概况

KfK 60m 高度 31 次示 踪 实验 是由 Thomas^[5]领导在 70 年代中期完成的. CF2Br2 和 CFCl3 2 类示踪剂在位于 KfK 西南角的 200m 铁塔的 60m 平台上释放. 由风速廓线获 得该处 Z⁰ 约为 1.5m. 每次试验样品约 50 个左

胡二邦:男,56岁,研究员 收稿日期:1997-07-11

1.2 扩散参数的确定

高架源释放造成的地面浓度 *c*(*x*,*y*,0) 由 下述高斯烟羽公式给出:

 $c(x, y, 0) = \frac{Q}{\pi u \sigma_{y} \sigma_{z}} \exp \left\{ -\frac{y^{2}}{2\sigma_{y}^{2}} - \frac{H^{2}}{2\sigma_{z}^{2}} \right\}$ (1) 设 σ_{y} 和 σ_{z} 与下风距离的关系可以用下述幂函 数表示:

$$\sigma_{y} = p_{y} x^{q_{y}} \qquad \sigma_{z} = p_{z} x^{q_{z}} \qquad (2)$$

表 1 给出由上述 31 次示踪实验获得的各类天 气条件下的平均扩散参数.

表1 各类天气条件下的扩散系数推荐值1)

天气类型	\overline{p}_{y}	\overline{q}_{y}	\overline{p}_{z}	\overline{q}_{z}	实验次数
Α	0.0376	1.81	3.56	0.500	3
В	7.99	0.547	0.362	1.00	2
С	1.90	0.684	0.239	0.964	10
D	0.327	0.931	0.283	0.764	9
Е	1.31	0.723	0.729	0.552	5
F	0.274	0.995	0.512	0.523	4

1) 标称值, H = 60m

1.3 扩散参数的分布范围

根据 31 次示踪实验数据,计算了各类天气 条件下不同下风向距离处,水平扩散参数 σ, 与 垂直扩散参数 σ_a 的分布范围. 作为例示. 图 1 与图 2 分别给出 A, C 类和 F 类天气条件下, 不 同下风距离处 σ 的分布范围. 计算结果表明: ①即使根据 31 次的有限次数示踪实验数据,同 一地点同一类天气给出的扩散参数、其大小可 相差几倍、几十倍甚至几百倍,其不确定度是非 常显著的. 在 x = 10 km 处, 同一天气类型下, σ_v 的最大值与最小值之比可高达 285,其最大值 与标称值之比也高达 70. 对于 σ.,相应的比值 分别约为78和7.6. ②扩散参数不确定度(即 分布范围) 与天气类型有关. 水平扩散参数 G 分布范围大体上随稳定度增加(由A类至F 类) 而增大; 但垂直扩散参数 α 的趋势不十分 清晰,大体上是 C、D 类天气的 σ₂ 分布范围较 大.③扩散参数不确定度与下风距离的关系.总 的趋势是随下风距离的增加而略有增加.

2 扩散参数不确定度对扩散因子的影响

2.1 归一化小时轴向扩散因子

由于对评价问题存在 2 类不同的回答方法:确定论方法和概率论方法,因而存在 2 类不同性质的不确定度,称为 A 类和 B 类. A 类是由随机变量引起的, B 类是对系统中确定论成分缺乏了解而引起的.在下述小时轴向扩散因子 X 的表达式中,扩散参数 σ,和 σ.的不确定度属于 B 类:

$$X = \frac{1}{\pi t \iota \sigma_y \sigma_z} \exp(-\frac{H^2}{2\sigma_z^2})$$
(3)

式中, 风速 *u* 取单位风速, 即 *u*= 1m/s, 因而(3) 式中的 *X* 也可称为归一化小时轴向扩散因子, 其物理意义是单位源强、单位风速下不同下风 向距离轴线上地表空气中的污染物浓度.

2.2 拉丁超立方取样方法(Latin hypercube sample, LHS)^[5]

LHS 是传递参数不确定度的数值方法之 一,可用于估计参数不确定度所导致的预测结 果 Y 的不确定性. LHS 可视为分组阶乘取样方 法. 通过下述步骤获得 $n \land m$ 参数组值,此中n为样品容量,m 为不确定参数的数目:①把每个 不确定参数的分布范围分成n 个等概率的间 隔;②从每个参数的每个间隔中随机选取一个 值作为此间隔的代表值,这样就获得n 个随机 值;③随机选出的参数 P_1 的n 个值与参数 P_2 的n 个值随机组合成n 个双参数组,此n 个参 数组再与参数 P_3 的n 个随机值随机组合成n个三参数组,依次类推直至 $n \land m$ 参数组的个数n 称为 样品容量.

对应每一个 *m* 参数组有一个预测值, 当样 品容量为 *n* 时, 相应地产生 *n* 个预测值, 把算得 的 *n* 个预测值按大小排列, 并分配给最小的预 测值一累积概率 1/*n*, 分配给次最小预测值的 累积概率为 2/*n*, 依次类推得预测值的经验分 布函数. 此经验分布函数提供了样品的分位值, 即第 *k* 个预测值是 *k*/*n* · 100% 的样品分位值.

环境评价领域感兴趣的分位值一般取为 95%或 97.5%,故只有当 n 较大时,上述样品 分位值才是预测值 Y 的主观概率分布的相应 分位值的代表值. 引入统计允许限值(u%,v%)这一概念,表 示对于所希望的u%的分位值,其置信限大于 v%,满足此要求的最小n值由下式估算:

1-(百分分位值 u/100)ⁿ>百分置信水平 v/ 100

若取u=v=95, 得n=59, 对由简单随机取 样获得的 59 个m参数组计算其预测值Y, 保 证其最大预测值 Y_{max} 是所希望的模式预测值的 95%分位值, 其置信限大于 95%.

2.3 扩散参数不确定度对扩散因子的影响
 2.3.1 对 x = 1.0km 处扩散因子的影响

由文献[5] 可见, σ 与 σ 可作为 2 个独立 的不确定参数考虑. 假定 *x* = 1.0km, σ 和 σ 的 分布为均匀分布,表 2 给出 x = 1.0km 处各类 天气条件下 σ_{r} 和 σ_{a} 的最大值、最小值和标称值 (也即最佳估计值).根据上述拉丁取样技术,把 σ_{y} 和 σ_{a} 值的分布范围各分成 59 个等间隔,因 而 σ_{r} 和 σ_{a} 值落在每一间隔的概率是相等的,都 为 1/59.对于每一个间隔,再随机地取一个值 代表该间隔的 σ_{r} ,得到 59 个间隔的 σ_{r} 代表值, 同理得到相应的 59 个随机的 σ_{a} 代表值,随机 地组合成 59 对参数组,代入(3)式得到 59 个扩 散因子值,然后由小至大依次排列.并依 2.2 节 所示方法,依次分配相应的累积概率,则得扩散 因子的主观概率经验分布曲线.作为例示,图 3 给 出D、E2类天气条件下的扩散因子的经

 $\begin{array}{c}
40/59 \\
30/59 \\
20/59 \\
10/59 \\
10^{-7} \\
10^{-6} \\
10^{-5}
\end{array}$

50/59

图 1 水平扩散参数 σ, 的分布范围 天气类型: A、C

5, ∕m

水平扩散参数 σ, 的分布范围 天气类型:F

验分布曲线. 对于上述扩散因子的经验分布而 言, 其 95%的分位值相当于第 56 个预测值(因 为 56/59=0.95),即样品提供的 A 至F 类天气 的扩散因子的 95%分位值 \hat{Y}_{95} 分别为 3.31 × 10^{-7} , 3.77 × 10^{-6} , 1.64 × 10^{-5} , 8.92 × 10^{-6} , 2.01 × 10^{-5} , 9.88 × 10^{-7} . 但因样品容量 n 太 小, 保证上述 \hat{Y}_{95} 值不会低估的置信度小于 50%. 当 n 取大时, 其 \hat{Y}_{95} 会渐渐变大. 如前所 述, 对于 n= 59,预测值(扩散因子)真实的 95% 分位值小于最大预测值的置信度大于 95%. 因 此若取 59 个预测值中的最大值作为 A 至 F 天 气条件下扩散因子的 95%分位值 \hat{Y}_{95} (见表 3), 则置信度大于 95%. \hat{Y}_{95} 的物理意义是预测值低 于 \hat{Y}_{95} 的主观置信水平为 95%. 95%的扩散因 图 3 短期轴向扩散因子的经验分布 下风距离: 1.0km 天气类型:D、E

子预测值低于表 3 所给的 Y_{95} 值. 而根据表 1 给 出的平均扩散参数(推荐值) 算得的 1.0km 处 的扩散因子标称值对应的概率如表 4 所示(忽 略了样品容量的误差).表 4 表明,根据推荐扩 散参数值算得的标称扩散因子,在 A 类,实际 的扩散因子低于标称扩散因子的概率为 73%; 在 B 类,其概率为 63%;在 C、D、E、F 类其相应 的概率分别为 64%、97%、86%、88%,几乎都 小于 95%.若计及样品容量误差,上述概率值 还要减小.另外,由计算得知,扩散因子的不确 定范围与天气类型密切相关,在 A、B 类, X_{max} 与 X_{min} 只相差几倍,在 C 类相差 1 个量级,在 D、E 类相差近 2 个量级,在 F 类相差可达 4 个量级, 详见表 5.



图 2

表 2 x= 1.0km 处扩散参数的分布范围/m

天气类型	$\sigma_{\rm ymi}$	$\sigma_{\rm yme}$	$\sigma_{ m ymn}$	$\sigma_{ m ymi}$	$\sigma_{\rm yme}$	$\sigma_{ m yma}$
А	6. 67 × 10 ³	1.01×10^{4}	1.57×10^{4}	8.80 × 10 ¹	1.13×10^{2}	1.81×10^{2}
В	2.08 × 10^2	3. 50 × 10^2	5.88 × 10^2	3. 40 × 10 ²	3. 62 × 10^2	3. 84 × 10^2
С	1.03×10^{2}	2. 14×10^2	3. 20 × 10^2	5. 52 × 10^1	1.86 × 10^2	4. 72 × 10^2
D	6.65 × 10^1	2. 03 × 10^2	4. 93 × 10^3	4. 01 × 10^1	5. 54 × 10^1	9. 42 × 10^1
Е	5. 04 × 10^2	1.93×10^{2}	1. 14 × 10^3	2. 18×10^{1}	3. 30 × 10^1	5. 17 × 10^1
F	2. 93 × 10^1	2. 65 × 10^2	2. 64 × 10^3	1.26×10^{1}	1.90×10^{1}	2. 37 × 10^1

表 3 各类天气条件下置信限大于 95%的 Y₉₅(x=1.0km)

天气类型	Α	В	С	D	Е	F
0.95 分位值 Y95	3. 55 × 10 ⁻⁷	4. 14 × 10 ⁻⁶	2.31 × 10 ⁻⁵	2.49 × 10 ⁻⁵	4. 41 × 10 ^{- 5}	3.38 × 10 ⁻⁶

表 4 各类天气条件下扩散因子标称值所对应的分位点

天气类型	Α	В	С	D	Е	F
扩散因子标称值	2.42 × 10 ⁻⁷	2.48 × 10 ⁻⁶	7. 57 × 10 ⁻⁶	1.57 × 10 ⁻⁵	9. 57 × 10 ⁻⁶	4. 28 × 10 ⁻⁷
主观置信水平	~ 43/ 59(0.73)	~ 37/ 59(0.63)	~ 38/ 59(0.64)	~ 57/ 59(0.97)	~ 51/ 59(0.86)	~ 52/ 59(0. 88)
相对应的分位点	\hat{Y}_{73}	Ŷ ₆₃	\hat{Y}_{64}	\hat{Y}_{97}	\hat{Y}_{86}	Ŷ 88

表 5 各类天气条件下扩散因子最大值与最小值的比 X_{max}/X_{min} (x = 1.0 km)

天气类型	А	В	С	D	Е	F
$\chi_{ m max}$ / $\chi_{ m min}$	3.11	2.92	9.59	4. 21 × 10^1	5. 99 × 10^1	9. 01 × 10^3

2.3.2 扩散因子分布范围随下风距离的变化 与 x = 1.0km 所采用的方法类似, 笔者还 计算了 x = 0.2, 0.5, 2.0, 5.0, 10.0km 处各类 天气条件下的扩散因子的分布(每处 59 个扩 散因子值),从而得到因扩散参数不确定度导 致的短期轴向扩散因子的分布范围随下风向 距离的变化. 作为例示. 图 4 给出 B, D 类气候 条件下,扩散因子不确定度随下风距离的变 化,图中也给出了各类天气条件下相应的标称 扩散因子随下风距离的变化.图4中分布范围 的上限值代表着不同下风距离处小时轴向扩 散因子的 95% 分位值 Y95, 所具有的置信度大 干 95%. 即我们有 95% 的把握讲. 不同距离处 实际的扩散因子低于图中上限值的概率为 95%,但低于图中标称值的概率就有可能大大 低于 95%.

3 初步结论

(1)在本文所讨论的高架源、大粗糙度地 形条件下,扩散参数具有很大的不确定度.同 一地点,同一天气类型条件下,扩散参数可以



图 4 小时轴向扩散因子分布范围随下风距离的变化 天气类型: B、D

差几倍、甚至几十、几百倍.

(2) σ, 的不确定度大体上随天气类型由 A 类至 F 类而逐渐变大. 垂直参数 σ_α 的不确 定度似乎与天气类型关系不大.

(3) 扩散参数的不确定度(下转第79页)

肉桂醇中的双键也没有被氧化,对于很活泼的 糠醇,如果氧化反应被控制在适当条件下进 行,则糠醇不发生氧化开环,而只是醇羟基被 氧化为相应的羰基.可见,PEG · NO2 对芳香 醇类化合物的氧化具有选择性,是一种良好的 选择性氧化剂.

据文献报道^[7], NO_x 直接氧化芳香醇制备 相应的羰基化合物一般是在 0 以下进行, 操 作起来有相当难度, 且反应时间长达几十个 h. 因此, 应用有限. 而利用 PEG · NO² 氧化芳 香醇时, 条件温和, 操作简便, 再加上 PEG 本 身价廉易得, 所以 PEG · NO² 作为芳香醇类 化合物的氧化试剂, 具有很强的实用意义.

2.4 尾气分析

收集 PEG · NO₂ 与苯甲醇反应时所放出 的尾气,在 GC-9A 型气相色谱仪上检测,结果 表明,尾气中 N₂ 与 NO 的比例为 308 1,即 尾气中氮气占 99.6%,这表明在氧化反应进 行后, PEG · NO₂ 中的 NO₂ 绝大部分转化成 了 N₂,几乎没有二次污染.

2.5 吸收剂 PEG 的循环利用情况

本文研究了每次循环后 PEG 的回收率、 对 NO2 的吸收率以及吸收产物氧化苯甲醇后 苯甲醛的收率.结果表明, PEG 在循环 5 次以 后, PEG 的回收率达 97.6%, 对 NO² 的吸收 率达 95.4%.另外,由于回收的吸收剂中有残 存的苯甲醇,因此在重复使用时,苯甲醛的收 率也有明显的提高.

综上所述, PEG 作为 NO² 的吸收剂, 不 仅吸收率高, 而且可循环使用, 因此具有广泛 的应用前景.

参考文献

- 马广利等.大气污染控制工程.北京:中国环境科学出版 社,1985:346
- 2 刘如利.活性炭净化 NO_x 废气的讨论与研究.电镀与环保,1988,8(3):19
- 3 Kawamuro K et al. Electron beam treatment of stack gases. Radiat. Phys. Chem., 1985, 25(1-3): 35
- 4 Gary Selby W et al. Aqueous scrubbing of dilute nitrogen oxide gas mixture. Ind. Eng. Chem. Res., 1988, 27 (10):1917
- 5 Zhang Shensong et al. Studies of TBP-NOx A new oxidizing agent prepared from nitrogen oxides. Chinese Chem. Lett., 1992, 3(11): 877
- 6 中国环境保护法规汇编,北京:中国环境科学出版社, 1985:297
- 7 Field BO, Grundy J. The preparation of aromatic aldehydes by means of the dinitrogen tetroxide reagent. J. Chem. Soc., 1955: 1110

(上接第72页)

所导致的短期轴向扩散因子(因而导致地 表空气浓度、地面沉积浓度)的不确定范围与扩 散参数的不确定范围具有相似的量级甚至更 大,例如F类,扩散因子可达4个量级.

(4) 扩散参数的不确定度导致的扩散因子 的不确定度与天气类型有关,在本文中随天气 类型由不稳定至稳定而显著增大.

(5)目前在环境评价实践中所采用的各类 天气条件下的扩散参数几乎都是文献或各级机 构推荐的标称值.据此估算得到的空气中的浓 度及相应的剂量值,并不具有足够的偏保守程度,即难以保证实际的浓度或剂量低于这些计算值的概率达95%,建议在今后的评价实践中,逐步开展评价结果的不确定度估算.

参考文献

- 1 Miller W et al. CONF-80327-4, 1980
- 2 Hu Erbang, Thomas P.KfK 4124, 1986
- 3 胡二邦,李继开.关于高斯烟羽模式在高架源、大粗糙度地 形条件下有效性的研究.环境科学,1989,**10**(6):16
- 4 IAEA. Safety Series, 100, 1989
- 5 Thomas P et al. . KfK 3090. 1981