

降水对气溶胶粒子清除的参数化 *

彭 红 秦 瑜

(北京大学地球物理系, 北京, 100871)

提 要

本文主要讨论了碰并系数、雨滴谱和气溶胶谱对湿清除率的影响。在 $0.1 \mu\text{m} < r < 1 \mu\text{m}$ 范围内不同碰并系数表达式可对本区间内的气溶胶粒子的清除率有影响，对全谱范围内的大气气溶胶粒子的总清除率影响不大。雨滴谱型的不同对总清除率有很大影响。用 Marshall-Palmer 分布谱表示的降雨清除率与雨强的关系为 $\Delta (\text{h}^{-1}) = 0.69 I^{0.80}$ ($I: \text{mm/h}$)，而用在广东实测的雨滴谱，计算的清除关系式为 $\Delta (\text{h}^{-1}) = 0.32 I^{0.83}$ 。本文还用雨滴谱资料计算了在广东、广西实测的大气气溶胶 9 种可溶性组分的清除率，结果表明：对不同的离子谱分布，其清除率系数差别不大。

关键词：湿清除率；碰并系数；雨滴谱。

一、引 言

随着工业化和都市化发展过程，人类活动对大气环境的影响越来越引起人们的关注。污染物的传输，酸雨生成机制的研究是大气污染研究的热门课题，而降水对大气气溶胶粒子的清除是其主要的组成部分：降水对气溶胶的清除是维持大气中悬浮粒子源汇平衡，大气自清洁的重要过程；而气溶胶在被云雨水清除后，又影响着云雨水的化学成分和酸碱度。

在区域范围内评估酸雨的生成和分布时，常将各参与的过程，如降雨对气体和粒子的清除作参数化处理，以简化计算。最常用的方式之一是将物种浓度 C 随时间的变化用准一级反应的形式表示，即

$$\frac{dc}{dt} = -\Delta c, \quad (1)$$

其中 Δ 为所讨论的那种过程所决定的单位时间内的清除效率，如无其他过程， Δ 为常数，则 c 将以指数方式衰减。 $1/\Delta = \tau$ 即为物种的生命时间。在讨论降水对大气气溶胶粒子的湿清除时，显然这种湿清除率的大小与降水的强度有关。通常将湿清除率 $\Delta (\text{h}^{-1})$ 表示为降水强度的指数形式：

$$\Delta = AI^B, \quad (2)$$

其中参数 A ， B 取决于雨滴浓度随尺度谱分布、气溶胶谱分布和雨滴与气溶胶粒子的碰并系数。

1991年1月19日收到，8月7日收到修改稿。

* 本工作得到国家自然科学基金资助。

对于雨滴与粒子间碰并系数，已有许多理论^[1-4]和实验^[5-11]研究。它不仅与雨滴和气溶胶粒子的尺度有关，在不同的气溶胶粒子尺度段，可以有不同的起决定作用的碰并机制。在考虑热致迁移和电迁移的碰并机制中，与大气湿度、粒子荷电多少都有关。此外，实际雨滴和粒子都不是理想的球形，这就使得碰并系数与降雨及粒子的关系更为复杂。在实际工作中有的直接应用实验曲线值来求取清除率；也有人干脆使用平均碰并系数 \bar{E} ，如 Scott^[12] 取 $\bar{E}=0.65$ ，得粒径为 10 μm 的粒子的清除率与雨强的关系为

$$\Delta (h^{-1}) = 1.26 I^{0.78} \quad (3)$$

Pruppacher^[13] 给出降水对粒子的清除率为

$$\Delta (s^{-1}) = 4.2 \times 10^{-4} \bar{E} I^{0.79}, \quad (4)$$

其中假定了雨滴谱为 Marshall-Palmer 分布。对大于 10 μm 粒子取 $\bar{E}=0.83$ ，则结果和 Scott 的一致。本文比较了各种不同的碰并系数表达式，讨论了碰并系数对清除率的影响。

雨滴谱和气溶胶谱随时间、地点和大气状况的不同有很大的差异。本文讨论了雨滴谱和气溶胶谱对湿清除率的影响，并利用两广地区实测的雨滴谱和大气气溶胶组分的实测资料得到了适用于两广地区的气溶胶粒子湿清除率和雨强的关系。

二、碰并系数对湿清除率的影响

1. 降水对气溶胶粒子清除的计算公式

单位时间内，降水粒子对气溶胶的总质量清除率可写为

$$\Delta = \frac{\int_{a=0}^{\infty} \left(\int_{D=0}^{\infty} \pi D^2 V(D) E(a, D) N(D) dD \right) m(a) da}{\int_{a=0}^{\infty} m(a) da}, \quad (5)$$

式中， a ， D 为气溶胶粒子和雨滴直径； $m(a)$ 为对应粒径为 a 的气溶胶粒子的质量密度； $N(D)$ 是直径为 D 的雨滴的数密度； $E(a, D)$ 为粒径 a 的气溶胶粒子与直径 D 的雨滴的碰并系数； $V(D)$ 为雨滴下落末速。这里假定气溶胶粒子粒径很小，相对静止大气其下落速度可略。

雨滴下落末速采用实验结果^[14]。

雨滴的数密度随尺度的分布通常可采用 Marshall-Palmer 公式，形式简单，计算方便。

$$N(D) dD = N_0 e^{-\lambda D} dD, \quad (6)$$

其中 $N_0 = 0.08 \text{ cm}^{-4}$ ， $\lambda = 41 I^{-0.21} \text{ cm}^{-1}$ ， I 为雨强 (mm/h)。

气溶胶谱常用的有 Junge 分布

$$n(r) d \log r = \frac{c}{r^n} d \log r. \quad (7)$$

不难将此式化为质量分布形式，也常用对数正态分布表示为

$$m_{(r)} d \log r = \frac{m_T}{\sqrt{2\pi} \sigma_g} \exp\left(-\frac{\log^2(r/r_g)}{2\sigma_g^2}\right) d \log r, \quad (8)$$

其中 m_T 为总质量浓度， r_g 为几何中值半径， σ_g 为几何标准偏差。

2. 雨滴和粒子的碰并系数

当给定雨滴谱分布和气溶胶粒子质量谱分布后，清除系数 λ 即取决于碰并系数。

雨滴在降落过程中与大气中悬浮的气溶胶粒子发生碰并，不同尺度的气溶胶粒子，其碰并机制不同。当气溶胶粒子半径 $r < 0.1 \mu\text{m}$ 时，布朗扩散碰并起主要作用，碰并系数 E_1 可用无量纲数 Peclet 和 Reynolds 数表示：

$$\begin{aligned} r &< 0.1 \mu\text{m}, \\ E_1 &= 4 Pe^{-1} (2 + 0.6 Re^{\frac{1}{6}} Pe^{\frac{1}{3}}), \end{aligned} \quad (9)$$

其中 Peclet 数 $Pe = 2DV/D_B$ (D_B : 布朗扩散系数)，Reynolds 数 $Re = 2DV/v$ (v : 空气动力粘性系数)。当气溶胶粒子尺度较大时， $r > 1 \mu\text{m}$ ，惯性(重力)碰并为主要过程，碰并系数 E_3 可用表征惯性力大小的无量纲参数 Stokes 数表示：

$$\begin{aligned} r &> 1 \mu\text{m}, \\ E_3 &= \left[\frac{stk - \frac{1}{12}}{stk + \frac{7}{12}} \right]^{\frac{3}{2}}, \end{aligned} \quad (10)$$

式中 Stokes 数 $stk = \frac{2r^2 \rho_p V}{9 \eta_a D}$ ，其中 r 为粒子半径， ρ_p 为粒子的密度， η_a 为空气的粘性系数， V ， D 为雨滴落速和直径。

处于 $0.1 \mu\text{m} < r < 1 \mu\text{m}$ 之间的粒子与雨滴的碰并机制比较复杂，扩散和惯性碰并作用比较弱，电致迁移、热致迁移和扩散迁移都可能起作用，图1是 Wang 等人^[3] 通过理论和实验给出的雨滴和粒子的碰并系数曲线，图中的多条曲线表示不同电荷和湿度条件下的碰并系数。可以看出在 0.1 — $1 \mu\text{m}$ 区间内，最小和最大的值可差到两个量级，其平均值约在 10^{-3} ，和大粒子相比(例如 $10 \mu\text{m}$ ， $E=1$)则小 3 个量级。目前还没有一个既准确而又简单的公式来表示这个区间的碰并系数。Slinn^[11] 提出了一个经验公式，在实际使用上是很方便的。

$$0.1 \mu\text{m} < r < 1 \mu\text{m},$$

$$E_2 = 3 \frac{r}{R}, \quad (11)$$

式中 r, R 为气溶胶粒子和雨滴半径，用(11)式算得的 E 值在图1中以点标出，与 Wang 的 E 值相比偏大。这种偏差是否会影响清除系数值，需要进行考察。

我们根据一些实验结果来给出此段的碰并系数。Hampl 等人^[7] 实验表明，小雨滴时， E 可用如下公式表示：

$$E = 1.68 Pe^{-\frac{2}{3}}.$$

而 Lai 等人^[9] 的研究表明大雨滴时可表示为

$$E = \frac{stk}{1 + stk^2}.$$

Wang 等人^[3] 的文章指出雨滴半径 $R = 500 \mu\text{m}$ 时碰并系数有一极大值。我们将上述两式分别用于 R 大于及小于 $500 \mu\text{m}$ 时这一段粒子的碰并系数可表为

$$0.1 \mu\text{m} < r < 1 \mu\text{m},$$

$$E_2 = \begin{cases} 1.68 Pe^{-\frac{2}{3}} & R < 500 \mu\text{m} \\ \frac{stk}{1 + stk^2} & R \geq 500 \mu\text{m} \end{cases} \quad (12)$$

在应用(5)式计算清除系数时，碰并系数 E 取为

$$E = E_1 + E_2 + E_3,$$

其中 E_2 分别取(11)式和(12)式作比较。

3. 碰并系数对清除率影响的敏感性试验

图2给出了两个不同的 E_2 表示式计算的降水对粒子的质量总清除率，可以看出两条线完全重合，即不同的 E_2 表示式并不影响总清除率。 E_2 分别取(11)式和(12)式，按(5)式拟合的清除率表示为雨强函数形式相应为

$$\Delta (h^{-1}) = 0.69 I^{0.798},$$

$$\Delta (h^{-1}) = 0.69 I^{0.802}.$$

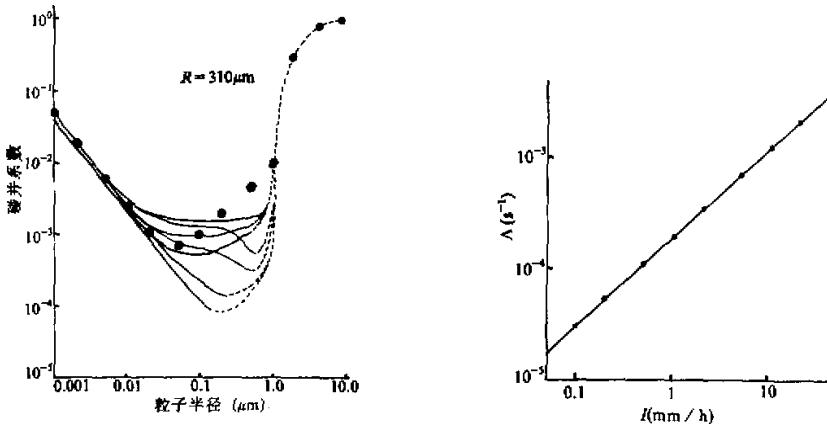


图1 Wang 等人的碰并系数(实线和虚线)
与 Slinn 的值(点)比较

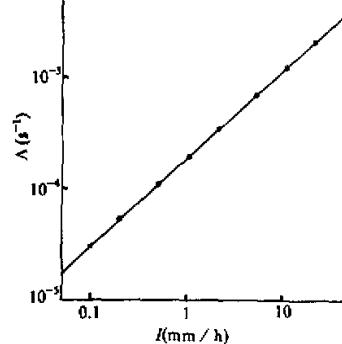


图2 用不同 E_2 公式计算的总清除率
(两条线重合)

计算时，取雨滴谱服从 Marshall-Palmer 分布，粒子取 Junge 谱分布，雨滴半径 R 从 0.1 mm 取到 3 mm，气溶胶粒子半径从 0.001 到 10 μm 。上述两式相差甚微，可取为

$$\Delta (\text{h}^{-1}) = 0.69 I^{0.80}. \quad (13)$$

图 3 是对应于两种不同 E_2 式算得的降水对粒径 0.5 μm 的粒子的清除率，两条线差别很大， E_2 用 Slinn 的(11)式所得的参数化公式为

$$\Delta (\text{h}^{-1}) = 0.004 I^{0.62}, \quad (14)$$

而用(12)式计算得

$$\Delta (\text{h}^{-1}) = 0.003 I^{1.24}. \quad (15)$$

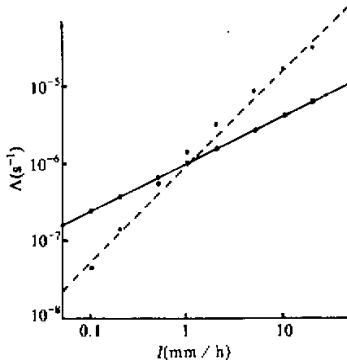


图3 用不同 E_2 公式计算的粒径 0.5 μm 粒子的清除率（— 对应(11)式，--- 对应(12)式）

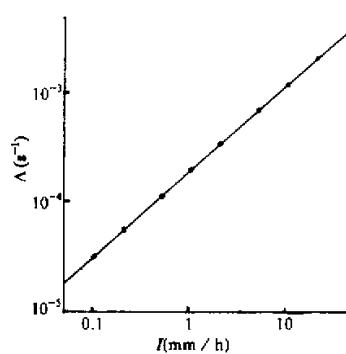


图4 用不同 E_2 公式计算的粒径 5.0 μm 粒子的清除率（两条线重合）

但对粒径为 5.0 μm 的大粒子用两种 E_2 公式计算清除的清除率，所得的两条线重合（见图 4），其清除率与雨强的参数关系式为

$$\Delta (\text{h}^{-1}) = 0.74 I^{0.79} \quad (16)$$

综合上述的清除率相对于粒子碰并系数的敏感性试验结果可以看出：降水对大粒子的清除率关系式和对粒子的总清除率的关系式是相近的；降水对粒子的总清除率的表示式对于 E_2 ($0.1 \mu\text{m} < r < 1 \mu\text{m}$) 的取值不敏感，这说明在粒子总质量中大粒子占有相当的份额，而在中间段，尽管其质量在总质量中占有一定比例，但由于碰并系数较大粒子小 1—3 个量级，对粒子质量的总清除系数贡献不大，因而在计算降水对粒子的总清除率时，在中间段可以采用 Slinn 公式(11)这一最简单的形式，而当专门计算中间粒子段 ($0.1 \mu\text{m} < r < 1 \mu\text{m}$) 的清除时，需要仔细的选择碰并系数的取值和表示式。

三、雨滴谱对清除率的影响

在实际工作中常用经验公式来表示雨滴谱尺度分布，其中用负指数形式的 Marshall-Palmer 分布(6)式是很简单可行的，因而也最为常用。但许多观测结果表明，用负指数分布拟合实际雨滴谱资料，所得的 N_0 值并不如(6)式那样确定的值，可以有相当大的变化。为了考察雨滴谱对清除率的影响，我们作了数值试验。按公式(6)，

$N_0 = 0.08 \text{ cm}^{-4}$, $\lambda = 41 I^{-0.21} \text{ cm}^{-1}$, 变换 N_0 值如下: $N_0 = 0.01 \text{ cm}^{-4}$, 0.8 cm^{-4} , 相应的 λ 值分别为: $\lambda = 27.4 I^{-0.22} \text{ cm}^{-1}$ 和 $\lambda = 65.2 I^{-0.20} \text{ cm}^{-1}$.

对应于三个不同的 N_0 值的雨滴谱, 按公式(5), 可以计算得到清除率 Δ 和雨强 I 的对应关系(示于图 5), 即

$$N_0 = 0.8 \text{ cm}^{-4}, \Delta (\text{h}^{-1}) = 1.07 I^{0.793} \quad (17)$$

$$N_0 = 0.08 \text{ cm}^{-4}, \Delta (\text{h}^{-1}) = 0.69 I^{0.798} \quad (18)$$

$$N_0 = 0.01 \text{ cm}^{-4}, \Delta (\text{h}^{-1}) = 0.40 I^{0.795} \quad (19)$$

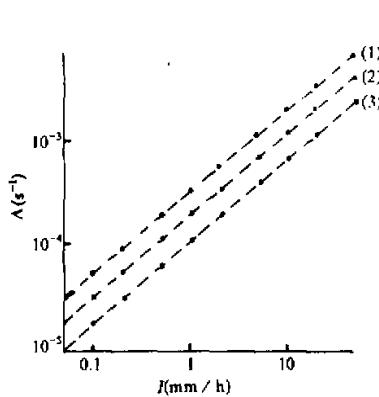


图 5 对应于不同的雨滴谱参数的清除率

(1) $N_0 = 0.8 \text{ cm}^{-4}$, (2) $N_0 = 0.08 \text{ cm}^{-4}$,
(3) $N_0 = 0.01 \text{ cm}^{-4}$.

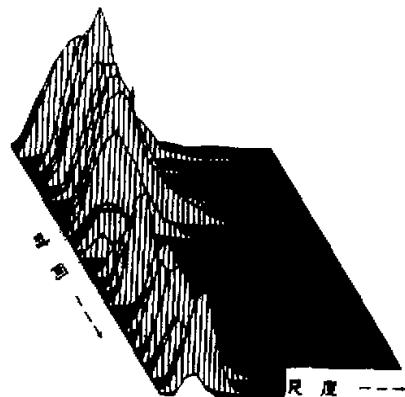


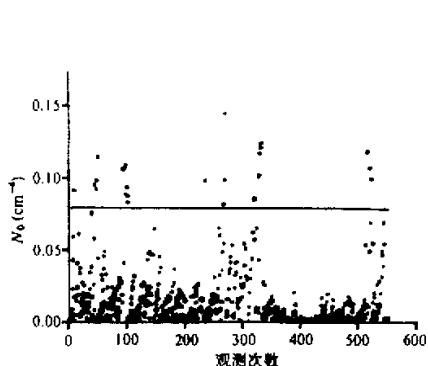
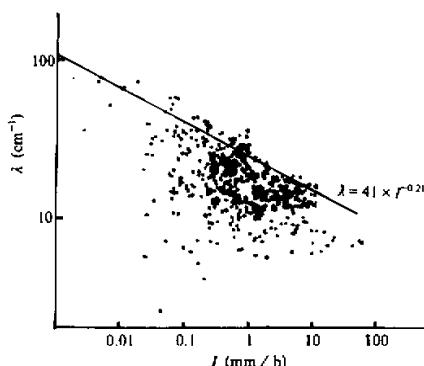
图 6 番禺, 1985 年 3 月 30 日 8:00—13:36

降水的雨滴谱分布变化

从图 5 和公式(13), (17), (18)可以看出雨滴谱的改变对总清除率的影响是很大的. 在相同雨强下, N_0 越大的雨滴谱的湿清除率越大.

1. 实测雨滴谱与 Marshall-Palmer 分布的差异

上面的数值试验说明雨滴谱分布的变化对清除有很大的影响. 为了得到在一个地区能普遍适用的降水对粒子的清除率和降水强度的关系式, 首先考察实测雨滴谱的资料. 我们取广东省热带海洋气象研究所在 1985 年 3 月于番禺和南海所取的雨滴谱资料计 552 份, 以此作为广东春季降水的代表. 所取资料包括了各种形式降水: 有阵性的, 也有连续性的. 雨强范围很宽, 从小于 0.01 mm/h 到 50 mm/h 都有. 图 6 是番禺 1985 年 3 月 30 日 8:00—13:36 的一次连续采样的雨滴谱演化图. 由图可以看出: 刚开始下雨时, 滴谱很宽, 平均直径大, 数密度高; 随时间推移, 滴谱有较大起伏, 小雨时滴谱窄, 小雨滴多. 雨滴谱大都服从偏正态分布, 多数都有一个峰值. 对这 552 份资料, 仍按 e 负指数分布拟合, 可以得到平均雨滴谱参数 $N_0 = 0.03 \text{ cm}^{-4}$, $\lambda = 22.69 I^{-0.15}$, 与 Marshall-Palmer 分布(6)式的参数相差甚远. 事实上每份资料都可用 e 负指数分布拟合, 将所得的 N_0 和 λ 值点绘于图 7 和图 8, 图上也标明了 M-P 分布的相应值. 由图 7 可以看出, 实际降水的 N_0 值大都低于 M-P 分布值 (0.08 cm^{-4}). 由图 8 可以看出, λ

图 7 观测雨滴谱按负指数分布拟合的 N_0 值图 8 观测雨滴谱按负指数分布拟合的 λ 值

和雨强 I 的关系也大都低于 M-P 分布的值。用这 552 份资料计算得到的对粒子的清除率与用 M-P 分布计算的清除率有相当大的出入。计算方法是对每一份资料计算一个清除率 λ 和雨强 I , 然后对 552 对 λ 和 I 拟合, 得到 $\lambda - I$ 关系式为

$$\lambda (h^{-1}) = 0.32 I^{0.83} \quad (19)$$

公式(19)的拟合方差很小, 为 3.09×10^{-5} 。比较(19)式、(13)式和(3)式, 可以看出, 在小雨情况下 (I 较小), 用实际谱计算得到的粒子清除率值大约是用 M-P 谱计算的清除率之半, 大约是 Scott^[12] 的值的 $1/4$ 。Scott 是取平均碰并系数 $E = 0.65$ 得到的 $\lambda - I$ 关系式, 因此, 对于两广地区降水对气溶胶的平均碰并系数可取为 Scott 的 $1/4$ 左右, 即 $0.15 - 0.2$ 。

2. 不同气溶胶组份的清除率

广州热带海洋气象研究所于 1988 年春、秋在广东、广西的广州、韶关、龙门、柳州、南宁、阳朔用 Anderson 分级采样器 (9 级) 取样, 共取样 12 次, 108 个分级样品¹⁾。除对各级样品称重得到每个样品的质量分布外, 并将各分级样品溶于水后, 对水溶液进行了化学分析, 用离子色谱仪和 ICP 方法分别测定溶液的负、正离子。图 9 给出柳州的分级的 9 种离子的浓度谱分布。从图上可以看出以大粒子段 SO_4^{2-} 的浓度为最高。

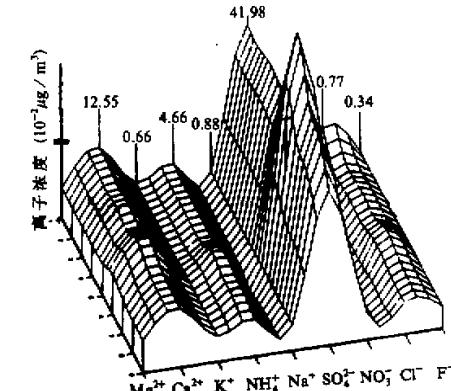


图 9 柳州, 用 Anderson 取样器分级采样的离子浓度谱

用上述实测的 552 份雨滴谱资料和 12 次采样所得到 9 级样品的 9 种离子计算了清除率, 并拟合了清除率和雨强的关系, 其结果列入表 I。由表中可以看出尽管各次取

1) 吴兑等, 1990, 华南地区大气气溶胶质量谱与水溶性成分的初步研究, 国家“七五”科技攻关项目总结报告 (75) SB-5-02-02 (4)。

样间、不同采样级间、不同的离子间有很大的差异，但计算所得到 $\Delta - I$ 关系式中的 A 、 B 却很少变化。

表1 9种离子的清除率雨强关系

组 份	$\Delta (h^{-1}) = AI^B$	
	A	B
F^-	0.29	0.83
Cl^-	0.30	0.83
NO_3^-	0.24	0.83
SO_4^{2-}	0.34	0.83
Na^+	0.31	0.83
NH_4^+	0.36	0.83
K^+	0.36	0.83
Ca^{2+}	0.34	0.83
Mg^{2+}	0.31	0.83

注：9种离子中， NO_3^- 的系数 A 值明显偏低，是由于其含量极少，有两次取样根本没有测出 NO_3^- ，相对测量误差较大，导致计算的清除率偏低。

四、结 论

(1) 对 $0.1 \mu m < r < 1 \mu m$ 区间的粒子和雨滴的碰并系数，采用不同公式计算，对总清除率结果影响不大，在计算总清除值时，主要是大粒子起作用；但在仔细考察 $0.1 \mu m < r < 1 \mu m$ 区间内粒子的清除时，碰并系数的影响不可忽视。

(2) 雨滴谱的改变对清除率影响很大。

按 Marshall-Palmer 分布计算所得

$$\Delta (h^{-1}) = 0.69 I^{0.80}.$$

按 552 份实测雨滴谱计算得到

$$\Delta (h^{-1}) = 0.32 I^{0.83}.$$

(3) 用在二广的实测雨滴谱资料和实测的粒子化学成分的分级谱计算，发现各种成分的湿清除参数相差甚小。

(4) 与按平均碰并系数计算的 Scott 得到的清除率与雨强的关系相比较，两广地区降水对气溶胶的平均碰并系数可取 0.15—0.2。

参 考 文 献

- [1] Grover, S.N. and K.V. Beard, 1975, A numerical determination of the efficiency with which electrically charged cloud drops and small rain drops collide with electrically charged spherical particles of various densities. *J. Atmos. Sci.*, 32, 2156—2165.
- [2] Grover, S.N., H.R. Pruppacher, and A.E. Hamielec, 1977, A numerical determination of the efficiency with which spherical aerosol collide with spherical Waterdrops in Air Due to Hydrodynamic, Phoretic, and Electrical Forces. *J. Atmos. Sci.*, 34, 1655—1663.
- [3] Wang, P.K., S.N. Grover and H.R. Pruppacher, 1978, On the effect of electric charges on the scavenging of aerosol particles by clouds and small raindrops. *J. Atmos. Sci.*, 35, 1735—1743.

- [4] Slinn, W.G.N. and J.M. Hales, 1971. A Reevaluation of the role of thermophoresis as a mechanism of in and below cloud scavenging. *J. Atmos. Sci.*, **28**, 1465—1471.
- [5] Wang, P.K. and H.R. Pruppacher, 1977. An experimental determination of the efficiency with which aerosol particles are collected by water drops in subsaturated Air. *J. Atmos. Sci.*, **34**, 1664—1669.
- [6] Beard, K.V., 1974. Experimental and numerical collision efficiencies for submicron particles scavenged by small raindrops. *J. Atmos. Sci.*, **31**, 1595—1603.
- [7] Hampl, V., M. Kerker, D.D. Cooke and E. Matijevic, 1971. Scavenging of aerosol particles by falling water droplets. *J. Atmos. Sci.*, **28**, 1211—1221.
- [8] Kerker, M. and V. Hampl, 1974. Scavenging of aerosol particles by a falling water drop and calculation of washout coefficients. *J. Atmos. Sci.*, **31**, 1368—1376.
- [9] Lai, K.Y., N. Dayan and M. Kerker, 1978. Scavenging of aerosol particles by a falling water drop. *J. Atmos. Sci.*, **35**, 674—682.
- [10] Radke, L.F., P.V. Hobbs and M.W. Eltgroth, 1980. Scavenging of aerosol particles by precipitation. *J. Appl. Meteor.*, **19**, 715—722.
- [11] Slinn, W.G.N., 1977. Some approximations for the wet and dry removal of particles and gases from the atmosphere. *J. Wat. Air Soil Pollut.*, **7**: 513—543.
- [12] Scott, B.C., 1982. Theoretical estimates of the scavenging coefficient for soluble aerosol particles as a function of precipitation type, rate and altitude. *Atmos. Environ.*, **16**, 1753—1762.
- [13] Pruppacher, H.R. and J.D. Klett, 1978. *Microphysics of Clouds and Precipitation*. D. Reidel Publishing Company, Dordrecht, Holland, 398.
- [14] 王永生等, 1988. 大气物理学. 气象出版社, 309.

The Parameterization of the Influence of Precipitation on the washout of Aerosol Particles

Peng Hong Q in Yu

(Department of Geophysics, Peking University, Beijing, 100871)

Abstract

This paper discusses the influences of the collision efficiency and size distributions of aerosols and precipitation particles on the wet removal coefficients. First, different collision efficient expressions for aerosols ranging from $0.1 \mu\text{m}$ to $1 \mu\text{m}$ have evident impacts on the washout rate of the aerosols in this range but have little effect on the scavenging of aerosols over the whole size range. Secondly, the raindrop size distribution affects the scavenging rate greatly. With the Marshall-Palmer distribution, the parameterization of the washout rate is: $\Delta(h^{-1}) = 0.691^{0.80}$ (I : mm/h, rain rate). On the other hand, the expression turns out to be $\Delta(h^{-1}) = 0.321^{0.83}$ when the collected raindrop data in Guangdong Province (China) are used. Finally, the scavenging rates of nine soluble ions measured in Guangdong and Guangxi Province are calculated with the collected raindrop data. The results show that, despite large variations of the ions' mass spectra, the parameters of the scavenging rate only change a little.

Key words: Wet removal coefficients; collision efficiency; Raindrop size distribution.