

东亚地区沙尘气溶胶影响硫酸盐形成的模式评估*

肖 辉

(中国科学院大气物理研究所, 北京 100029)

Gregory R. Carmichael Yang Zhang

(CGRER, University of Iowa, Iowa City, IA 52240, USA)

摘 要 利用 STEM-II 三维区域大气化学模式, 耦合沙尘气溶胶表面相过程, 研究了1994年3月1日至14日间东亚地区沙尘气溶胶对硫酸盐形成的影响。结果表明, SO_2 气体在沙尘气溶胶表面上进行的非均相氧化过程是硫酸盐形成的一条重要途径, 由这条途径提供的硫酸盐占其总浓度的20%~50%。并发现在模拟时段, 沙尘暴过程主要影响沙尘源地下游的中国东部地区硫酸盐的分布, 使得那里的硫酸盐浓度增加60%以上。

关键词 沙尘气溶胶 硫酸盐 非均相化学 东亚地区

1 引言

沙尘气溶胶是地球与大气系统的一个重要组成部分。据估计, 全球每年大约有1 000~3 000 Mt的沙尘气溶胶排放进入大气^[1,2]。与之相比, 二次气溶胶, 估计年排放量大约只有400 Mt^[3]。东亚地区是近20年来世界上经济发展和人口增加最快的地区之一, 也是大气污染物(如 SO_2 、 NO_x 等)排放量增长较快的地区之一, 由此带来的大气污染、酸雨等环境问题已相当突出。在春季由大风吹起的沙尘暴又成为该地区环境问题的另一个突出特征。沙尘暴是大气中沙尘气溶胶的重要来源。沙尘气溶胶的存在不仅对源地, 而且还可通过大气输送对其下游广大地区的生态系统、大气环境和大气化学等产生很大的影响。它的存在还可能改变沙尘源地下游大气气溶胶和降水的物理化学特性。观测表明, 在该地区, 春季沙尘暴期间北太平洋上空大气气溶胶中硫酸根和硝酸根浓度显著增加, 并且大部分为人为源成分^[4]。与沙尘长距离输送相联系的大气污染物常常可以到达朝鲜、日本, 甚至夏威夷群岛^[5]。Zhang等^[6]利用箱式(Box)大气化学模式, 研究了沙尘在硝酸盐粒子和臭氧形成中的作用, 发现沙尘对硝酸盐颗粒物和光化学氧化剂的形成有重要的影响。看来, 沙尘气溶胶与大气污染物之间存在某些重要的物理化学过程。然而, 目前对沙尘气溶胶影响大气化学和硫循环过程的机理研究尚少。

1994年春, 由NASA主持在西太平洋周边地区进行的PEM-West(B) (The Pacific Exploratory Mission~West Phase B) 观测实验, 为研究东亚地区沙尘气溶胶和硫循环

1996-09-20收到, 1997-03-28收到修改稿

* 本文获中国科学院留学人员回国工作基金资助

的相互作用提供了机会。本文应用三维区域尺度对流层大气化学模式, 结合这次观测实验, 研究了 1994 年 3 月 1 日至 14 日沙尘气溶胶对硫酸盐粒子形成的影响。

2 模式概述

利用 STEM-II 区域尺度模式^[6,7], 研究东亚地区沙尘气溶胶和硫化物 (SO_x) 的相互作用。STEM-II 模式是一个三维欧拉数值模式, 它考虑大气污染物的输送、化学转换、沉降等过程。大气边界层采用参数化方法处理^[8]。本研究使用该模式的参数化版本, 对 SO_2 向硫酸盐的化学转换进行参数化, 并耦合 SO_2 在沙尘气溶胶表面上进行的非均相化学转换过程。这将在后面作进一步介绍。

2.1 模式区域和气象场资料

研究的区域为 100°E 和 20°N 至 160°E 和 55°N (见图 1), 其包括中国大部、日本、朝鲜、韩国和俄罗斯及蒙古一部分。模式使用地形追踪坐标系。水平网格分辨率为 $1^{\circ}\times 1^{\circ}$, 垂直区域为地面至 10 km 高空, 垂直网格分辨率为 500 m。

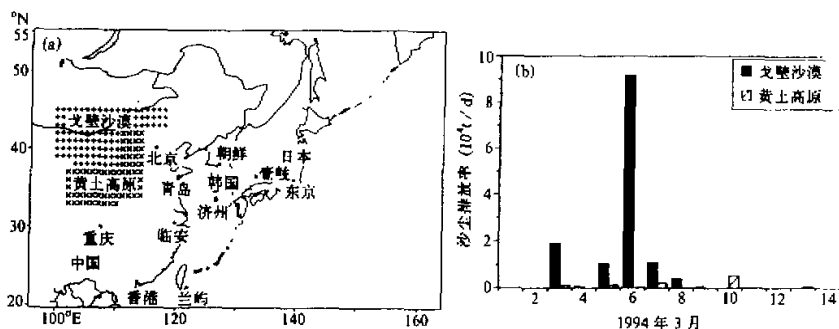


图 1 (a) 模式区域和主要沙尘排放源区, 图中“+”区表示戈壁沙漠源区, “x”区表示黄土高原源区; (b) 这两个源区计算的沙尘日排放率

模式中所用的气象场 (气压、温度、湿度、风向、风速等) 数据是根据 ECMWF 客观分析场插值得到。首先, 把 $2.5^{\circ}\times 2.5^{\circ}$ 等压面格点上的 ECMWF 气象场数据插值到的 $1^{\circ}\times 1^{\circ}$ 模式格点上, 然后, 根据质量守恒原理计算出格点上的垂直风速。模式所用的气象资料的时间间隔为 12 h。

2.2 SO_x 输送和排放源

SO_x 的传输方程可表示为

$$\frac{\partial C_{pi}}{\partial t} + \nabla \cdot (\bar{u} C_{pi}) = \nabla \cdot (\bar{K} \cdot \nabla C_{pi}) + R_{pi} + S_{pi} + G_{pi} + L_{pi}, \quad (1)$$

其中, C_{pi} 第 p 种组分 (这里, $p=1$ 为 SO_2 , $p=2$ 为 SO_4^{2-}) 在第 i 种尺度气溶胶上的浓度, $\bar{u}$ 为风速矢量, $\bar{K}$ 是大气湍流扩散系数张量, R_{pi} 是第 p 种组分的化学反应速率, S_{pi} 是第 p 种组分的排放率, G_{pi} 是第 p 种组分在不同尺度之间的质量传输率, L_{pi} 是干湿沉降引起的第 p 种组分的变化率。

本文考虑的化学组分主要是 SO_2 和硫酸盐 (SO_4^{2-})。所用的 SO_x 排放源是由 RAINS-ASIA 模式预测得到的 1994 年数据^[9,10]。排放源包括自然源和人为源。自然源主要由模式区域内活动的火山源组成。人为源包括航船活动源, 陆上面源和高架源。所有的面源置于模式的第 1 层(地面), 高架源平均放在模式的第 1 层和第 2 层(500 m), 火山源分别放在模式的第 2 层(占 25%)、第 3 层(占 50%)和第 4 层(占 25%)。并假定在所排放的 SO_x 中, 有 95% 是 SO_2 , 5% 是硫酸盐。

2.3 沙尘输送和源的计算

沙尘的传输包括平流、湍流扩散、碰并和沉降等过程, 其中湍流扩散过程的处理方法与气相成分的方法相同。沙尘的输送方程可表示为

$$\frac{\partial Q_i}{\partial t} + \nabla \cdot (\bar{u} Q_i) = \nabla \cdot (\bar{K} \cdot \nabla Q_i) + (RQ_i)_{\text{cond/evap}} + (RQ_i)_{\text{cong}} + (RQ_i)_{\text{react}} + (RQ_i)_{\text{source/sinks}} \quad (2)$$

其中, Q_i 为第 i 种尺度的气溶胶的质量 ($i=1, \dots, 5$), $(RQ_i)_{\text{cond/evap}}$ 、 $(RQ_i)_{\text{cong}}$ 和 $(RQ_i)_{\text{react}}$ 分别为凝结或蒸发、碰并和表面液相反应引起 Q_i 的变化率, $(RQ_i)_{\text{source/sinks}}$ 是排放和干湿沉降引起 Q_i 的变化率。本研究主要考虑直径 d 为亚微米至 $40 \mu\text{m}$ 尺度的沙尘气溶胶, 并将其分为 5 档: $0.1 \leq d < 0.5$, $0.5 \leq d < 1.5$, $1.5 \leq d < 6.0$, $6 \leq d < 20$, $20 \leq d < 40$ 。

沙尘长距离输送的一个主要问题是怎样计算从沙尘源地进入大气的沙尘排放率, 根据实际风场, 使用下列公式估算沙尘的排放量 $E^{[1]}$ 为

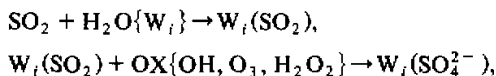
$$E = CA \Delta t \left[u_*^4 \left(1 - \frac{u_{*c}}{u_*} \right) \right], \quad (3)$$

其中, E 是在 Δt 时间内排放的沙尘质量, C 为一常数, $C=1.4 \times 10^{-15}$, A 是所考虑区域的面积, u_* 和 u_{*c} 分别为地面层摩擦风速和可以起沙的阈值摩擦风速。

本文主要考虑东亚地区两大沙尘源地: 戈壁沙漠和黄河上游的黄土高原, 如图 1a 所示。中国科学院黄土高原综合考察队 1991 年在黄土高原和其他沙漠考察时, 发现扬沙起始地表风速约为 $6 \text{ m/s} \sim 8 \text{ m/s}$ 。考虑到本文模拟所用的风场是经过两次插值得到的, 中间已包含了在水平方向上的平滑过程, 因此, 本模式在这两个源地均取扬沙起始地表风速为 6 m/s , 大约相当于 u_{*c} 为 20 cm/s 。图 1b 给出了 1994 年 3 月 1 日至 14 日利用 ECMWF 实际气象场数据计算得到的沙尘排放量。由图可见, 在这期间, 沙尘排放主要集中在戈壁地区。3 月 3 日排放量为 $2 \times 10^{10} \text{ g/d}$ 。最大的排放量出现在 3 月 6 日, 为 $9 \times 10^{10} \text{ g/d}$ 。黄土高原的排放量很小, 但 3 月 10 日的排放量仍达到 $5.3 \times 10^9 \text{ g/d}$ 。

2.4 沙尘表面的 SO_x 化学

SO_x 与沙尘的相互作用过程相当复杂, 它包括 SO_2 气体在潮湿的沙尘表面上的吸收和随后的氧化反应过程。这些化学反应过程可表示为



其中, W_i 表示第 i 档气溶胶粒子 ($i=1, \dots, 5$), OX 为氧化剂。

这里, 暂时不考虑沙尘气溶胶本身不同化学成分的作用, SO_2 在气溶胶表面净清除的准一阶反应速率系数 k (单位为 s^{-1}) 可以表示为^[6]

$$k = \int_{r_2}^{r_1} K_d(r)n(r)dr, \quad (4)$$

这里, $n(r)dr$ 是单位体积内 (cm^3) 半径在 r 和 $r+dr$ 之间的粒子数, $K_d(r)$ 是 SO_2 气体在半径为 r 的粒子表面上的质量传输系数 (单位为 cm^3/s), 它是粒子尺度、适应系数、状态变量和扩散组分特征的函数, 并可用 Fuchs 和 Sutugin^[12] 公式计算:

$$K_d(r) = \frac{4\pi r D V}{1 + Kn [\lambda + 4(1 - \alpha) / 3\alpha]}, \quad (5)$$

这里, D 是 SO_2 气体分子扩散系数 (单位为 cm^2/s), Kn 是 Knudsen 数, $Kn = \lambda / r$, λ 是 SO_2 分子在空气中的有效自由程, V 是通风系数, α 是适应系数。参照文献[13], 取 $\alpha = 0.005$ 。

本文除了考虑 SO_2 在沙尘气溶胶表面上的非均相氧化反应过程外, 还考虑 SO_2 与 OH 基之间的气相化学反应过程。并且假定, 由 SO_2 气相反应形成的 H_2SO_4 , 要么成为新的粒子, 它可以碰并到沙尘表面上, 要么直接凝聚到沙尘表面上。

应当指出, 上述机理允许硫酸盐可以在大小粒子上形成。Horai 等^[14]在亚洲地区观测的气溶胶尺度分级数据支持这样一个事实: 硫酸盐既可以存在于积聚模态气溶胶中, 也可以出现在沙尘气溶胶表面上。他们发现, 沙尘气溶胶表面上的硫酸盐占其总量的 10%~90%。在韩国济州 (Cheju) 岛上观测的气溶胶数据显示, 有 10%~20% 的硫酸盐质量是与粗模态气溶胶有关。

2.5 PEM-West(B)实验

由 NASA 主持在西太平洋周边地区进行了两期 PEM-West 飞机观测实验, 主要研究不同季节东亚地区大气化学组分及其向太平洋中部的长距离输送过程^[15]。第一期, PEM-West(A), 在 1991 年 9~10 月进行, 主要针对秋季的情况; 第二期, PEM-West(B), 在 1994 年 2 月 21 日~3 月 15 日进行, 主要就春季的情况作研究。

PEM-West(B)飞机观测实验测量的项目有 SO_2 、硫酸盐等多种大气组分和相关的气象参数。在此期间, 除了飞机观测实验之外, 还在东亚地区一些站点作了相应的地面观测。本研究主要针对 1994 年 3 月 1 日至 14 日, 在这段时间里, 典型的天气特征是冷空气系统不断地从西到东通过本模拟区域。特别是在 3 月 6 日有一较强的冷锋穿过本模拟区域的戈壁地区, 并形成了在呼和浩特、银川、兰州一线可以观测到的沙尘暴天气。

3 结果与讨论

3.1 沙尘的模拟

本文首先利用实测风场, 模拟了 1994 年 3 月 1 日至 14 日东亚地区沙尘浓度的变化。图 2 给出了其中 3 月 4、6、8、10 日模拟的 1 km 高度上沙尘浓度分布。在此期间, 第一次起沙过程发生在 3 月 3 日。这些沙尘气溶胶在未来几天内随着高空风场向东

南方向输送。较强的沙尘暴发生在 3 月 6 日。在源区附近地面层, 模拟的沙尘浓度超过 $700 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 。这一过程释放的沙尘, 随着低压系统的移动, 首先向东输送, 然后转向东北, 强烈地影响沙尘所经地区 (如中国北部、朝鲜半岛和日本) 的大气环境质量。3 月 8 日输送进入西太平洋上空的沙尘浓度超过 $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 。3 月 10 日, 有沙尘从黄土高原源区释放, 并向东移动, 进入西太平洋。可见, 沙尘暴的发生、发展和输送特征与天气形势有密切的关系。

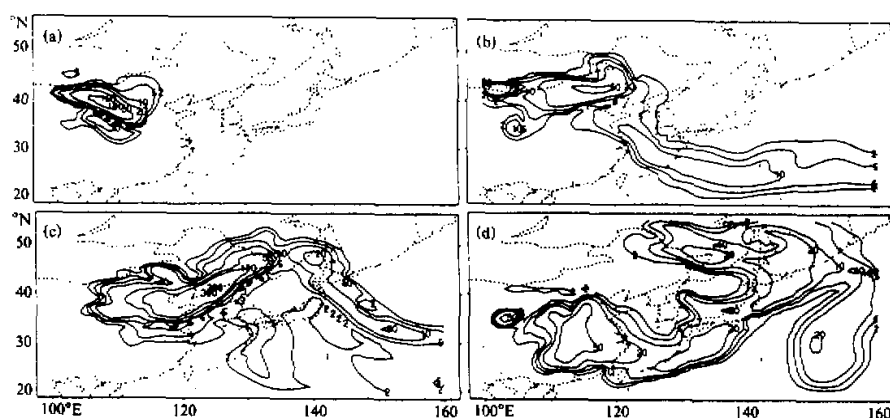


图 2 1994 年 3 月 1 km 高度上沙尘质量浓度的分布 (单位: $\mu\text{g}/\text{m}^3$)

(a) 4 日, (b) 6 日, (c) 8 日, (d) 10 日

3.2 SO_x 的模拟和非均相反应的作用

许多观测事实表明, 在沙尘气溶胶的表面覆盖着一层硫酸盐和硝酸盐。例如, Parungo 等^[16]对东亚沙尘粒子作痕迹测试和 TEM 检测的结果清楚地说明了这一点。在北太平洋地区进行的飞机采样观测发现, 即使在相对湿度小于 40% 的情况下也有一部分沙尘气溶胶粒子的表面是湿的, 并且表面包含一层硫酸盐和硝酸盐的可溶性溶液^[4]。在东地中海的测量也表明, 沙尘气溶胶表面上包有一层硫酸盐, 并且这层硫酸盐使得这些气溶胶成为有效的云凝结核 (CCN)。本文用模式模拟了这一过程。

图 3a 和 b 分别给出了模式模拟的日本壹岐 (Oki) 岛 SO_2 体积分数和韩国济州岛硫酸盐 (SO_4^{2-}) 浓度及相应的 PEM-West (B) 实验期间地面观测结果。模式模拟分为同时考虑背景气溶胶与沙尘暴表面的非均相化学作用 (GLB) 和不考虑气溶胶的表面相作用 (ND) 两种情况。可以看出, 考虑 SO_2 在沙尘气溶胶表面化学作用的模拟结果与观测比较吻合, 能较好地模拟出了观测所显示的天气尺度的变化规律。模拟结果还表明, 不考虑 SO_2 在沙尘表面上的反应会高估 SO_2 体积分数和低估硫酸盐浓度。

根据上述模式数据, 可以计算出在沙尘表面上非均相化学反应生成的硫酸盐的百分比。在背景气溶胶浓度情况下 (如 3 月 8 日之前在日本壹岐岛上), 有 20%~50% 的硫酸盐是由气溶胶表面相化学产生的; 在沙尘暴到来的沙尘高浓度情况下 (如 3 月 9 日在

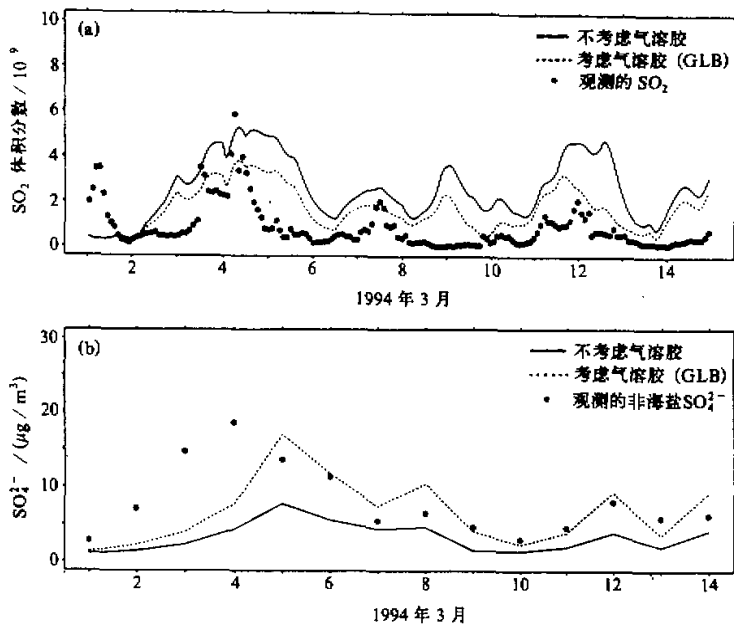


图 3 观测与计算的地面的 (a) 日本壹歧岛地面 SO_2 日均体积分数
和 (b) 韩国济州岛地面硫酸盐日平均浓度

韩国济州岛), 这个百分比达到 60%~80% (图 4a 和 b)。这些结果与在该地区的观测是一致的。Parungo 等^[16]在分析从青岛收集的单个沙尘粒子的化学组分时, 发现有 50%~80% 的大粒子 ($d > 2 \mu\text{m}$) 表面覆盖有硫酸盐。春季在日本鹿儿岛等地进行的粒子分级观测^[14], 表明有 5%~40% 的硫酸盐出现在尺度大于 $0.5 \mu\text{m}$ 的粒子上, 而且这部分硫酸盐的大多数并不能归结于海盐源的贡献。Gao 等^[17]发现, 在日本有 20%~30% 的硫酸盐出现在粗模态气溶胶中。Nishikawa 等^[18,19]在日本进行的粒子分级观测表明, 在沙尘过程中, 有近半数的气溶胶硫酸盐出现在粗模态气溶胶中。Luria 和 Sievering^[20]的研究表明, 在海洋环境中, SO_2 在人为气溶胶表面上的非均相氧化可提供硫酸

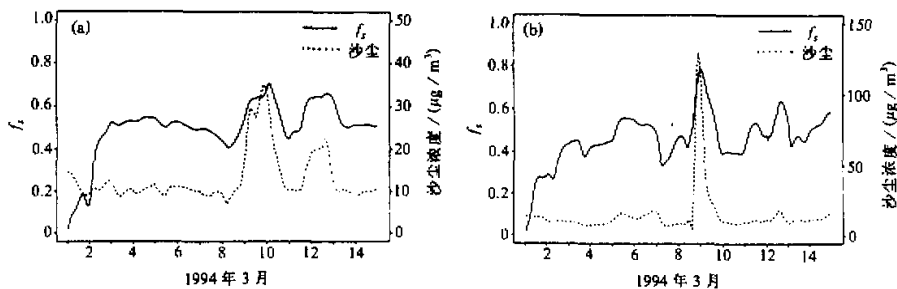


图 4 沙尘表面反应产生的硫酸盐浓度与硫酸盐总浓度的比值 f_s 和相应的沙尘浓度的变化
(a) 壹歧岛, (b) 济州岛

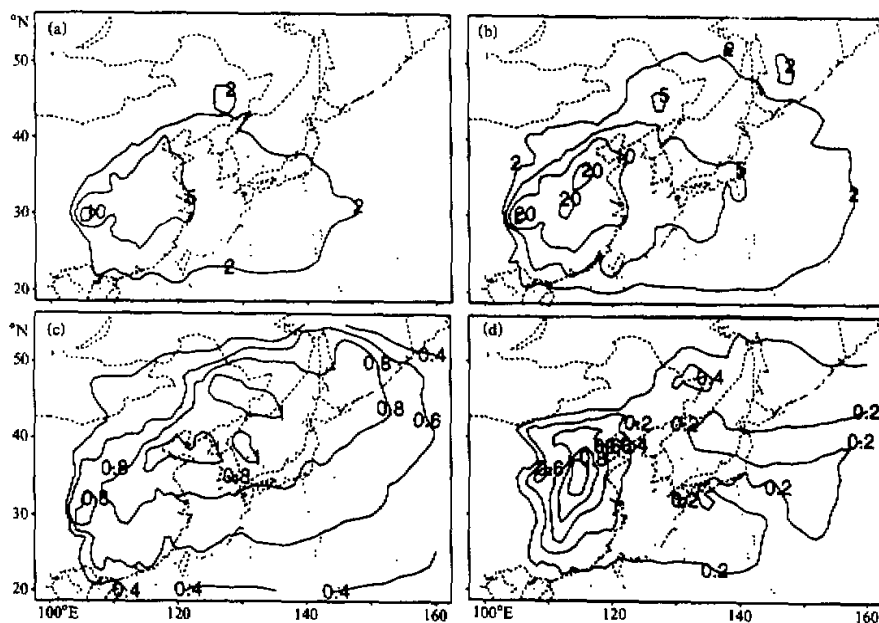
盐总量的 60%。

有一个问题, 是否在粗模态气溶胶中发现的硫酸盐都是在沙尘气溶胶的长距离输送过程中通过表面相反应产生的, 还是直接来源于沙尘源地土壤本身? Nishikawa 等^[19]指出, 中国干旱地区土壤中硫酸盐的重量百分比从小于 0.01% 变化到 0.46% (硫含量为 0.003%~0.15%), 这显然不能足以解释在沙尘气溶胶中发现的硫酸盐高浓度现象。根据对韩国济州岛测量的气溶胶进行与亚洲土壤有关的硫酸盐富集因子的计算, 发现这个富集因子超过 4000。这清楚地说明, 与粗模态气溶胶相关的硫酸盐是在气溶胶长距离输送过程中形成的。

上述结果说明, SO_2 在沙尘气溶胶表面相上的非均相化学是硫酸盐形成的一条重要途径。在早春时期这种非均相化学反应过程会更重要, 因为那时气温相对较低, 气相化学反应仍相当慢。

3.3 沙尘气溶胶对硫酸盐分布的一般影响

在亚洲经常可观测到 $5\sim 10\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ 的背景气溶胶浓度。这样的浓度水平可为 SO_2 转换为硫酸盐提供足够的反应界面。为了说明这一点, 本文分别计算了不考虑气溶胶作用(ND), 仅考虑背景气溶胶作用(GLO), 及考虑背景气溶胶和沙尘暴共同作用(GLB)三种情况下, 模式区域大气边界层 ($0\sim 1\ \text{km}$) 内模拟的 14 天平均硫酸盐浓度的分布, 如图 5 所示。可见, 在 SO_2 转化为硫酸盐过程中气溶胶表面相的反应占很大比



重。与不考虑气溶胶作用(ND)的情况(图 5a)相比,有背景气溶胶存在(GLO)时整个东亚地区硫酸盐浓度增加了 40%以上,特别是在中国东部、朝鲜半岛和日本大部,硫酸盐浓度的增加在 60%以上(图 5c)。由图 5d 还看到,沙尘暴过程主要影响沙尘源区下游 SO_2 排放量高值区的中国东部的硫酸盐分布,使得那里的硫酸盐浓度再增加 60%以上。在整个西太平洋地区,沙尘暴过程可使大气边界层硫酸盐浓度增加 20%以上。

上述结果表明,沙尘作为一个重要的反应界面,在沙尘源区的下风方, SO_2 在沙尘气溶胶上的反应对硫酸盐的形成有着重要的作用,尤其是在中国东部地区这个作用更重要。一方面,这个地区是硫化物的重要排放源区,并且未来的排放量还会继续增加;另一方面,由于降水形式的改变和土壤特性的变化,可能使得这个地区干旱和半干旱面积的扩大,进一步加剧了沙尘气溶胶的排放。看来,在东亚地区,仅假定硫酸盐气溶胶处

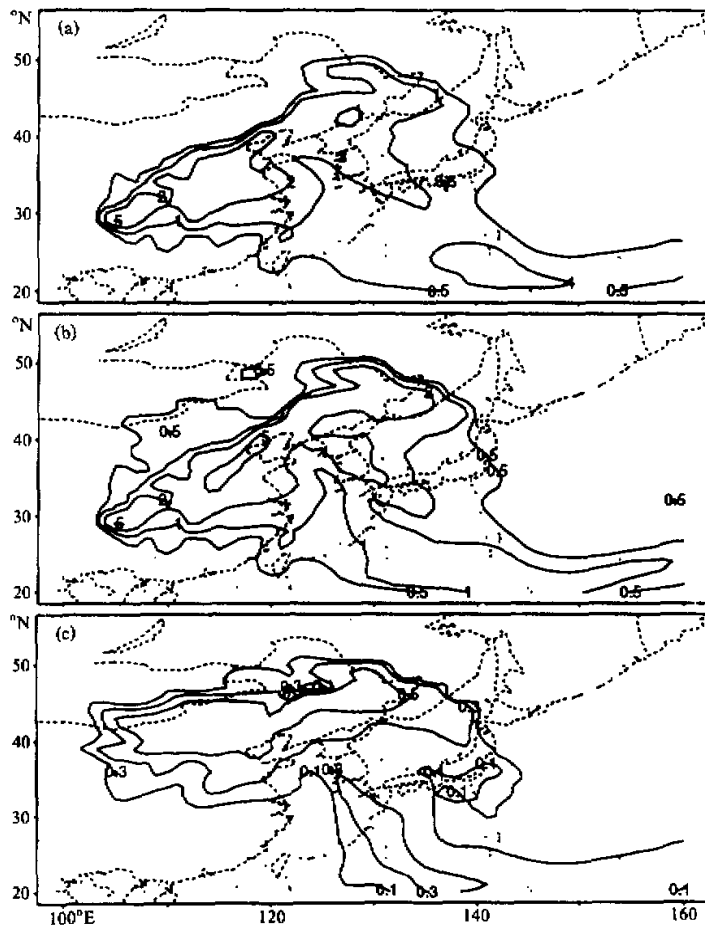


图 6 1994 年 3 月 7 日 1 km 高度上计算的硫酸盐浓度分布(单位: $\mu\text{g}/\text{m}^3$)

(a) 无沙尘反应, (b) 有沙尘反应(但无背景气溶胶作用), (c) 沙尘反应产生的硫酸盐所占的百分比

于积聚模态尺度范围^[21,22]可能会过高估计硫酸盐气溶胶的气候冷却效应。

3.4 与 PEM-West(B) 实验观测的比较

PEM-West(B) 期间在 3 月 7 日进行的第 16 次航测中, 飞机基本上沿着 30°N 线, 从 139°E 飞到 163°E。这天的主要天气特征是: 一个高压天气系统中心位于日本东南海域和一个低压系统中心处于朝鲜半岛与山东半岛之间的海域, 因此, 在日本南部地区的低空主要受偏南气流控制, 而在中高层则以西风为主。

图 6 给出了 1994 年 3 月 7 日不考虑沙尘作用 (ND) 和仅考虑沙尘作用 (GLD) 的硫酸盐浓度在 1 km 高度上的分布, 以及沙尘反应对硫酸盐浓度影响的百分比。可见, 沙尘气溶胶表面相化学反应的最大影响主要发生在中国北部地区, 这是因为输送进入这个地区的大量沙尘气溶胶 (见图 2), 与该地区富含 SO₂ 的空气相结合而产生的。由这个过程产生的硫酸盐浓度占其总浓度的 50% 以上。

图 7 给出了 1994 年 3 月 7 日沿着 30°N 线模拟的 SO₂ 和硫酸盐体积分数垂直剖面图, 以及飞机飞行轨迹及 SO₂ 和硫酸盐沿航线的测量值。可以看出, 沿着图 7a 和 c 中虚线所示的飞行路线, 在 139~160°E 的 9.5 km 高空 (对应于图 7b 和 d 的 5000~15000 s 时段), 模拟的 SO₂ 和硫酸盐体积分数均在 0.2×10^{-9} 左右, 这与测量值很接近。在 160°E 附近 4 km 高度上 (对应于图 7b 和 d 的 20000~22000 s 时段), 模拟的

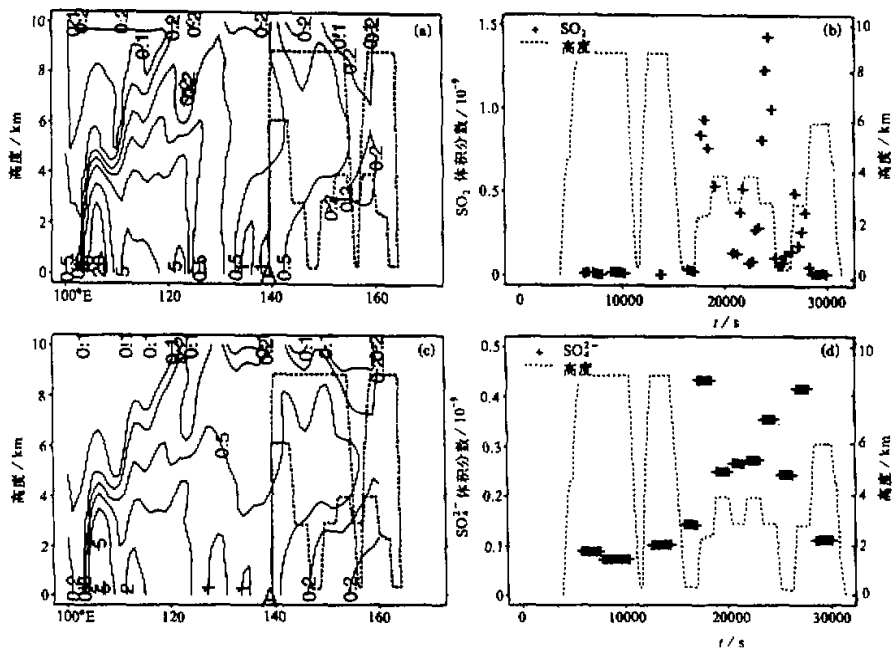


图 7 1994 年 3 月 7 日 15:00 (此时对应于第 16 次航测的时间), 计算的 SO₂ 和硫酸盐沿 30°N 线的垂直剖面图

(a) 和 (c) 分别为模拟的 SO₂ 和硫酸盐体积分数垂直分布及飞机航线 (虚线),

(b) 和 (d) 分别为测量的 SO₂ 和硫酸盐体积分数沿航线 (虚线) 的分布

SO₂ 和硫酸盐体积分数显示出一个相对极小值区 (SO₂ 体积分数 $< 0.2 \times 10^{-9}$, SO₄²⁻ 体积分数 $< 0.2 \times 10^{-9}$), 而在该区的两侧它们的浓度较大。这些结果与当时观测到的极小值区和极大值区的位置是很一致的。

4 小结

本文利用 STEM-II 区域尺度大气化学模式, 研究了 1994 年 3 月 1 日至 14 日东亚地区沙尘在硫酸盐形成过程中的作用。结果表明, 沙尘气溶胶为硫酸盐的形成提供了一个重要的反应界面。SO₂ 气体在沙尘气溶胶表面上进行的非均相氧化过程是硫酸盐形成的一条重要途径。由这条途径提供的硫酸盐占其总浓度的 20%~50%。并且在 SO₂ 生成硫酸盐的过程中, 与不考虑气溶胶作用的情况相比, 在背景气溶胶表面上进行的非均相反应可使整个东亚地区硫酸盐浓度增加 40% 以上。在模拟时段, 沙尘暴过程主要影响沙尘源地下游的中国东部硫酸盐浓度, 使得那里的硫酸盐浓度增加 60% 以上。在整个西太平洋地区, 沙尘暴过程可使大气边界层 SO₄²⁻ 浓度增加 20% 以上。

致谢: 整个研究的计算工作是在 Iowa 大学全球与区域环境研究中心 (CGRER) 的 HP750 工作站完成的。

参 考 文 献

- 1 Jonas, P., R. Charlson and H. Rodhe, 1995, Aerosols, in: *Climate Change 1994*, Houghton et al. eds, Cambridge University Press, 92~128.
- 2 D'Almeida, G. A., P. Koepke and E. P. Shettle, 1991, *Atmospheric Aerosols: Global Climatology and Radiative Characteristics*, A. Deepak Publishing, 55~59.
- 3 Preining, O., 1991, Aerosol and Climate -- An overview, *Atmos. Environ.*, **25A**, 2443~2444.
- 4 (日本) 名古屋大学水圈科学研究所编, 1991, 黄沙, Kokon出版, 120~131.
- 5 Gao, Y. et al., 1992, Relationships between the dust concentrations over eastern Asia and the remote North Pacific, *J. Geophys. Res.*, **97**(9), 9867~9872.
- 6 Zhang, Y., Y. Sunwoo, V. Kotamarthi and G. R. Carmichael, 1994, Photochemical oxidant processes in the presence of dust: An evaluation of the impact of dust on particulate nitrate and ozone formation, *J. Appl. Meteor.*, **33**, 813~824.
- 7 Carmichael, G. R., L. K. Peters and R. D. Saylor, 1991, The STEM-II regional scale acid deposition and photochemical oxidant model: I. An overview of model development and applications, *Atmos. Environ.*, **25A**, 2077~2090.
- 8 Carmichael, G. R. and L. K. Peters, 1984, An Eulerian transport / transformation / removal model for SO₂ and sulfate, I: Model development, *Atmos. Environ.*, **18**, 937~951.
- 9 Arndt, R. and G. R. Carmichael, 1995, Long range transport and deposition of sulfur in Asia, *Water, Air and Soil Pollution*, **85**, 2283~2288.
- 10 Foell, W., C. Green, M. Amann, G. R. Carmichael et al., 1995, Energy use, emissions, and air pollution reduction strategies in Asia, *Water, Air and Soil Pollution*, **85**, 2277~2282.
- 11 Gillette, D. A. and R. Passi, 1988, Modeling dust emission caused by wind erosion, *J. Geophys. Res.*, **93**, 14233~14242.
- 12 Fuchs, N. A. and A. G. Sutugin, 1970, Highly Dispersed Aerosols, Ann Arbor Science, Ann Arbor, Michigan, 89~93.
- 13 Gardner, J. A., L. R. Watson, Y. G. Adewuyi et al., 1987, Accommodation coefficient of SO₂(g) on water

- droplets, *J. Geophys. Res.*, **92**, 10887~10895.
- 14 Horai, S., T. Minari and Y. Migita, 1993, Aerosols composition in Kagoshima, Annual Report of the Kagoshima Prefectural Institute, Vol. 9, 25~33.
- 15 Hoell, J. M. et al., 1996, Pacific Exploratory Mission-West A (PEM-West A): September-October 1991, *J. Geophys. Res.*, **101**, 1641~1653.
- 16 Parungo, F., Y. Kim, C.-J. Zhu et al., 1995, Asian dust storms and their effects on radiation and climate, STC Report 2906, 11~16.
- 17 Gao, Y. C., D. Zhang and T. Okita, 1991, Size distribution of atmospheric aerosols and their soluble ion species in Mei-Long area, Shanghai, *Proceedings of the 2nd IUAPPA Regional Conference on Air Pollution*, Seoul, Korea, Vol.1, 65~70.
- 18 Nishikawa, M. and S. Kanamori, 1991, Chemical composition of Kosa aerosol (yellow sand dust) collected in Japan, *Analytical Science*, **7**, 1127~1130.
- 19 Nishikawa, M., S. Kanamori, N. Kanamori et al., 1991, Kosa aerosol as eolian carrier of anthropogenic material, *Sci. Total Environ.*, **107**, 13~27.
- 20 Luria, X. and H. Sievering, 1991, Heterogeneous and homogeneous oxidation of SO_2 in the remote marine atmosphere, *Atmos. Environ.*, **25A**, 1489~1496.
- 21 Charlson, R. J., S. E. Schwartz, J. M. Hales et al., 1992, Climate forcing by anthropogenic aerosols, *Science*, **255**, 423~430.
- 22 Kiehl, J. and B. Briegleb, 1993, The relative roles of sulfate aerosols and greenhouse gases in climate forcing, *Science*, **260**, 311~314.

A Modeling Evaluation of the Impact of Mineral Aerosols on the Particulate Sulfate Formation in East Asia

Xiao Hui

(Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029)

Gregory R. Carmichael and Yang Zhang

(CGRER, University of Iowa, Iowa City, IA 52240, USA)

Abstract The impact of mineral aerosols on the particulate sulfate formation in East Asia during the period of March 1 through March 14, 1994 is studied using a three-dimensional regional-scale atmospheric chemistry model (STEM-II model) coupled with the mineral dust processes. The results indicate that the heterogeneous-phase chemical processes on mineral aerosols account for a significant fraction of the conversion of SO_2 to sulfate during this time period, which may contribute from 20% through 50% of the total sulfate production. Comparing with the case of non-dust reactions, the reactions on the background aerosol cause an increase in sulfate formation by more than 40% throughout the study domain. These dust events during the simulation period mainly affect the sulfate amounts over the eastern China, closely down-wind of dust source regions, where an increase of over 60% in sulfate is caused by mineral dust.

Key words mineral aerosol sulfate heterogeneous-phase chemistry East Asia