

三维对流云对大气光化学组分的 再分布作用及其化学效应^{*}

李 冰 刘小红 洪钟祥

(中国科学院大气物理研究所大气边界层物理和大气化学国家重点实验室, 北京 100029)

摘 要 利用一个三维的冰雹云模式与化学组分输送模块耦合, 得到云输送引起大气光化学组分的再分布, 然后用一个包含详细气相化学反应机制的箱模式研究了云输送引起的气相体积分数的变化及其对大气化学系统产生的影响。结果表明, 云输送后 O_3 体积分数大于无云个例, 但其后两天内两者的变化趋势相差不大; HNO_3 、 NO_2 、 NO_3 、PAN 等的体积分数均明显高于无云个例, 分别增长了 87%、70%、62% 和 49%, 其中 NO_2 体积分数的增加主要由于云输送造成, 而 NO_3 、 HNO_3 、PAN 主要是输送对化学扰动的结果。两天内 OH 和 HO_2 自由基体积分数比无云个例平均增长了 13% 和 11%。

关键词: 云输送; 对流层; 臭氧; 化学反应箱模式

1 引言

云对对流层大气化学组分的垂直再分布、化学转化、迁移起着重要作用。当有活跃的深对流云存在时, 垂直输送可在 1 小时内把边界层内的空气抬升到对流层顶^[1], 使得地表附近短寿命的污染物能够迅速地输送到对流层上部, 增长污染物的大气驻留时间, 扩大其影响范围, 尤其是深对流云和强的局地风暴, 它们的顶部能穿透对流层进入平流层, 引起对流层和平流层之间化学物质的交换, 影响那里的化学过程和化学组分的再分布。

目前, 已有不少观测研究证实了云可把对流层的化学物质直接输送到对流层的上部。Dickerson 等^[2]分析了一次雷暴过程对不易溶痕量气体的对流输送, 指出雷暴中的上升气流把 NO_x 带到高处, 造成云内 NO_x 的高体积分数。在 NASA/STRAT 项目中, 飞机的大量观测表明, 丙酮 (CH_3COCH_3)、 CH_3OOH 、 H_2O_2 等 HO_x 储库的对流输送可引起热带对流层上部 HO_x 的大量增加, 从而影响对流层上部的光化学过程^[3]。

近年来, 有关的模式研究也表明了垂直混合对化学组分垂直再分布的显著影响。Wang 和 Chang^[4]发展了一个较为完善的包括动力学、微物理和化学的三维复杂云模式, 其二维版本曾被用来模拟局地强风暴对 SO_2 再分布的影响^[5]及热带深对流云对臭氧和 DMS 的输送作用^[6]。Kong 和 Qin^[7]用一个二维对流云输送模式模拟了深对流云对惰性化学组分的垂直输送。

利用一个三维的冰雹云模式与化学输送模块相耦合, 研究三维云输送引起的 O_3 及其前体物 (NO_x) 的再分布, 并用一个包含详细气相化学反应机制的箱模式来比较云输

1999-11-08 收到, 1999-12-27 收到修改稿

^{*} 本研究得到中国科学院“九五”重大项目 KZ951-A1-403-01 课题的资助

送引起的大气化学组成的变化尤其是对臭氧光化学产生的扰动。

2 模式描述

本文的模式计算分为两部分, 首先将三维云动力学模式和化学组分的输送相耦合计算一次强风暴过程对化学组分的输送, 再用化学反应箱模式计算云输送前后气相体积分数的改变对其后 48 小时大气化学系统所产生的扰动。

2.1 云输送模式

2.1.1 三维云模式的动力结构

模式方程:

云动力学及微物理采用中国科学院大气物理研究所发展的三维云数值模式^[8]。该模式采用 K-W 模式体系的完全弹性原始方程组为模式动力结构, 模式方程组包括速度 (u, v, w)、温度 (θ)、气压 (π) 和水汽、云、雨、冰晶 (雪) 和霰 (雹) 5 种水成物的比含水量等 10 个预报变量的预报方程。

在本文的个例中, 对流启动方式采用热泡启动方式。该方式是在模拟区域的低层加一有限范围的正位温扰动场 (采用轴对称的位温扰动函数), 通过垂直运动方程的浮力项来激发对流形成。

模式采用标准空间交错网格系统, 即热力学状态量和水成物量位于网格单元的中心, 速度分量则分别位于网格单元法向边界的中央。模式的求解采用“时步分离”技术。

2.1.2 云微物理

模式将云中液相质粒分为云水、雨水, 将冰相质粒分为冰晶 (雪)、霰 (雹), 雨滴和霰遵循 Marshall-Palmer 指数谱分布。共有 21 个详细的微物理过程, 其中暖云微物理过程有 4 个, 使用 Kessler 参数化方法, 冰相微物理过程有 17 个, 使用体积水参数化方案。

2.1.3 化学输送

化学输送方程:

化学输送模块由云动力学模式提供气象场, 计算化学组分的体积分数分布。本文的模拟主要考虑一些溶解度较低的气相组分如 NO_x 、 O_3 、 CO 等的输送, 因而可将它们视为被动的示踪物 (passive tracers), 略去了气、液相互作用及化学转化过程。化学组分的输送方程为

$$\frac{\partial c}{\partial t} = -u \frac{\partial c}{\partial x} - v \frac{\partial c}{\partial y} - w \frac{\partial c}{\partial z} + K_h \left(\frac{\partial^2 c}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 c}{\partial y^2} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(K_v \frac{\partial c}{\partial z} \right), \quad (1)$$

其中, c 表示组分的气相体积分数, K_h 、 K_v 分别为水平、垂直扩散系数。为了提高数值计算的精度, 对平流项采用修正的上游差分格式处理。

边界条件:

侧边界条件: 取体积分数梯度连续, 即 $\left. \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} \right|_x = 0$, 则

左边界: $c_1 = 2c_2 - c_3$, 右边界: $c_{NI} = 2c_{NI-1} - c_{NI-2}$;

上边界条件: $c_1 = c_2$

下边界条件: $c_{NK} = c_{NK-1}$

2.2 化学反应箱模式

为了研究云输送后所引起的气相成分分布的改变对对流层大气化学系统产生的后效应, 我们使用气相化学反应的箱模式对有云输送和无云输送的情况进行了比较。化学反应采用 Stockwell 等^[9]发展的 RADM II 的反应机理, 包括 62 个组分的 158 个气相反应, 其中光化学反应 21 个。

进行比较的具体做法是:

(1) 给出 62 个气相组分随高度变化的初始体积分数分布;

(2) 进行云输送模式的计算, 得到云消散后污染物的三维分布, 我们只考虑溶解度较低的组分和与对流发展的时间尺度相比具有较长的大气驻留时间的组分的输送, 略去气相组分中易溶的 15 种成分, 如 HNO_2 、 OH 、 HNO_3 、 HNO_4 、 HO_2 、 NO_3 、 H_2O_2 、 ALD 、 PAA 、 N_2O_5 、 ORA1 、 ORA2 、 HCl 、 NH_3 , 以及易被氧化清除的 SO_2 等, 假设它们在云发展过程中被降水清除;

(3) 为了研究地面人为排放的污染物通过云输送对对流层上部化学的影响, 我们选取对流层上部离地面 8~12 km 厚的空气层做为化学反应箱, 输送前后化学组分的体积分数、温度和湿度分别在箱内进行平均, 得到两组平均值, 把它们分别做为无云和有云输送的初始场, 代入箱模式计算, 各积分 48 小时, 计算化学过程中各组分体积分数随时间的变化。其中, 对易溶的 15 种成分, 由于它们的湿清除多发生在对流层的下半部, 因此对对流层上部的反应箱来说, 可以假设它们箱模式的初始场是相同的;

(4) 对无云和有云输送进行对比, 了解云过程扰动后 48 小时化学组分体积分数变化潜势。

2.3 模拟区域及初始条件

模拟的水平尺度 X 方向为 36 km, Y 方向为 36 km, 高度为 19 km, 水平格距为 1 000 m, 垂直格距为 500 m。云动力学模式的时间步长为 10 s, 化学输送模块的时间步长为 30 s, 也就是说云动力学模式每计算 3 个时步, 其输出的气象场驱动一次化学输送模块。

云模式的初始场是 1997 年 7 月 9 日 12:55 在陕西旬邑一次降雹过程发生前的实际探空观测。图 1a 和 b 是温度、露点温度和环境风场的初始廓线。

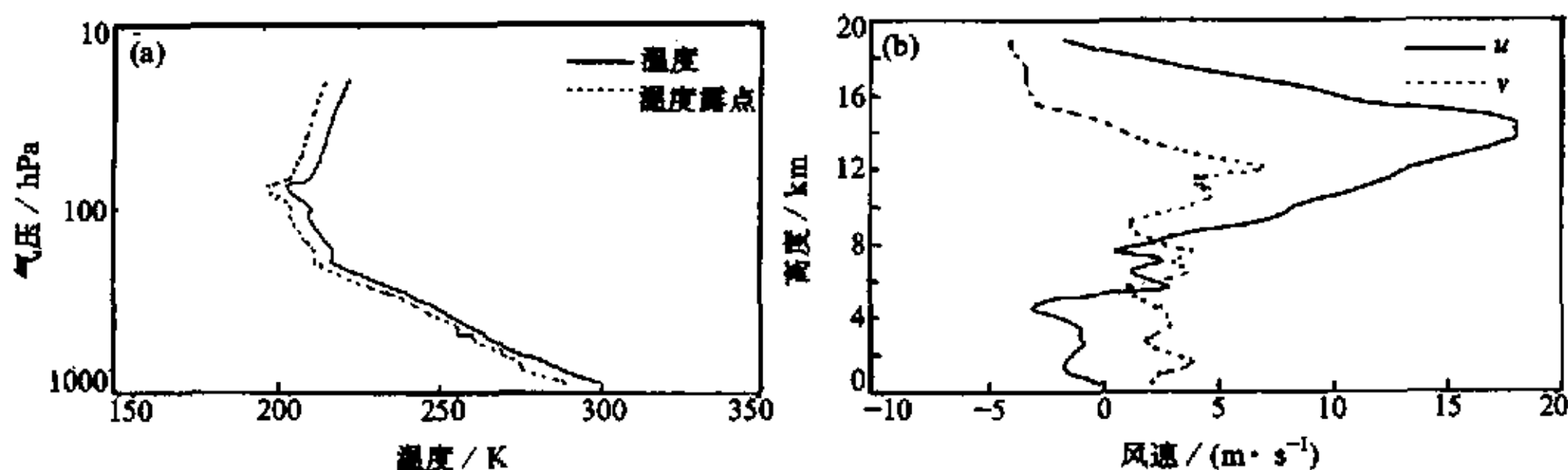


图 1 (a) 温度、露点温度的初始廓线; (b) 环境风场 u 、 v 分量的初始廓线

云输送模式中假设各组分体积分数的初始分布是水平均一的。这里给出其中两个组分的分布。图 2a、b 给出了 O_3 、 NO_2 的初始体积分数廓线。其中 O_3 的初始值用的是中纬度大陆地区的观测值, 其体积分数是随高度增加的, NO_2 的体积分数随高度呈负指数递减,

$$c(z) = c_0 \exp\left(-\frac{z}{H_i}\right), \quad (2)$$

式中, c_0 为 NO_2 的地面体积分数初值, H_i 是标高, 这里取为 2 000 m。

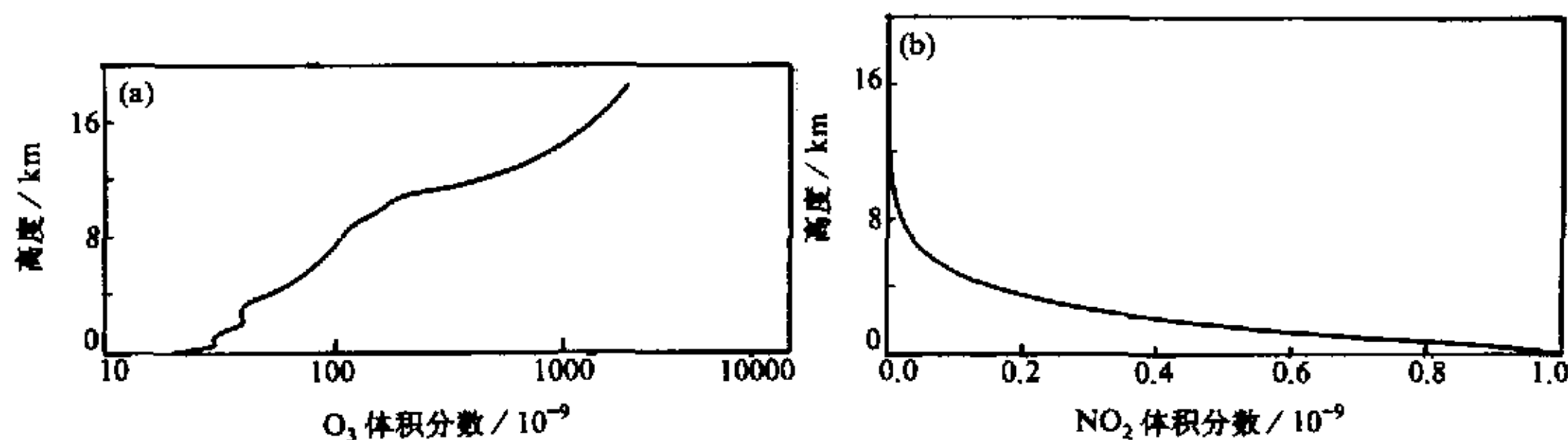


图 2 (a) O_3 的初始体积分数廓线; (b) NO_2 的初始体积分数廓线

3 计算结果与讨论

有关深对流云输送对化学组分再分布的计算结果见文献[10]。下面给出化学反应箱模式的计算结果, 研究云输送前后大气气相组成的变化对大气化学系统的影响。

3.1 O_3

图 3 是以输送前后 O_3 平均体积分数 (8~12 km) 为初始场分别用箱模式积分 48 小时的结果 (本文把这两种情况分别称为有云个例和无云个例)。虽然云内上升气流能把低体积分数 O_3 输送上去, 但同时对流层顶的高体积分数 O_3 也会被夹卷下来, 平均的结果使得体积分数略有增大, 输送后 O_3 的体积分数平均值为 204.4×10^{-9} , 比 193.4×10^{-9} 的无云情况高 6%。图中两条曲线均呈下降的变化趋势, 这是由于白天 O_3 的光解消耗和对流层上部没有污染物的补充存在净的 O_3 消耗所造成。

分析 O_3 的源、汇项, 见图 4。 O_3 的消耗主要是它的两个光解反应和它与自由基的

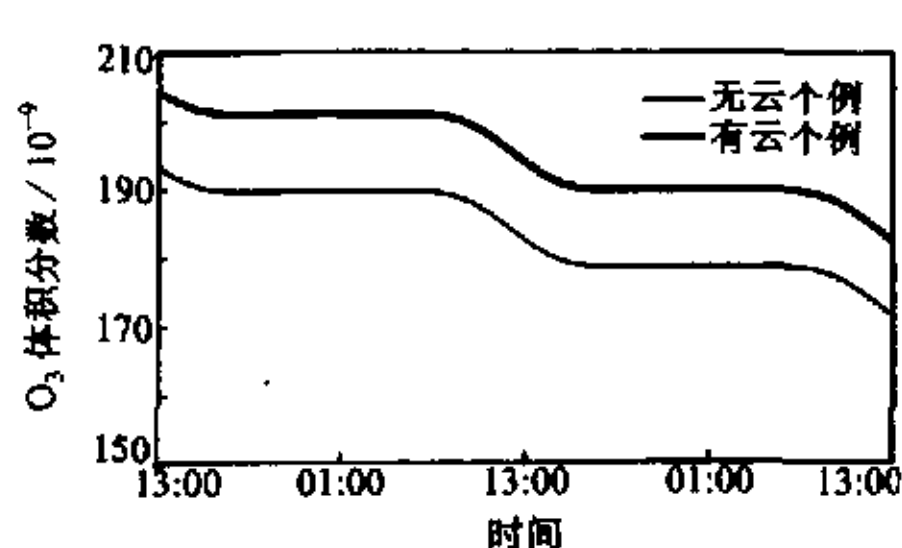


图 3 有云与无云个例 O_3 体积分数的对比

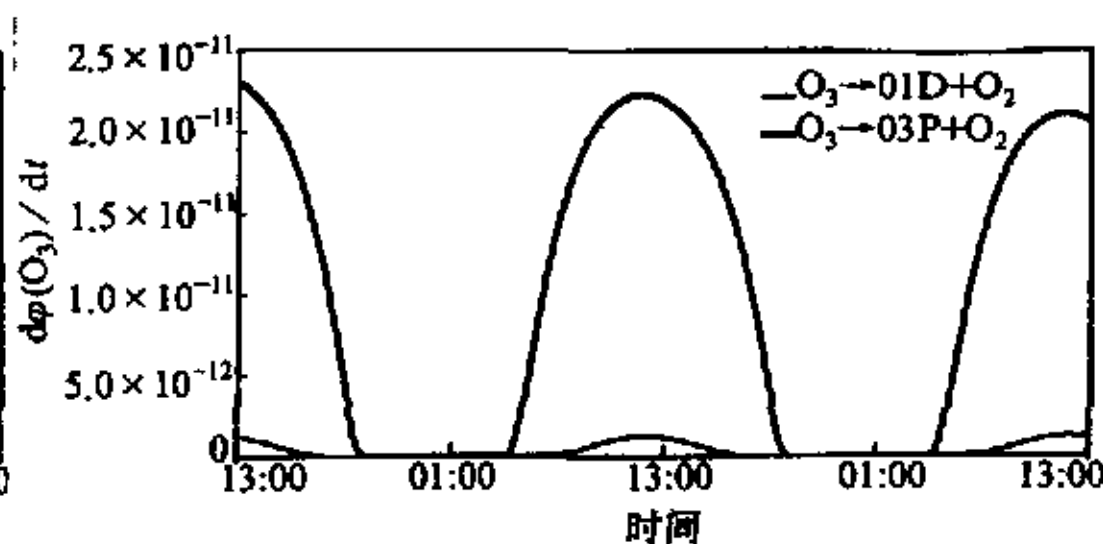


图 4 O_3 消耗速率的日变化

反应, 其光解分别生成 O^1D+O_2 和 O^3P+O_2 , 后一个反应占总消耗的 96% 以上, 直接产生 O_3 的唯一反应是 $O^3P+O_2 \rightarrow O_3$, 而 O^3P 来源于 NO_2 的光分解。在夜间, 从晚上 8 点到早晨 5 点, O_3 的生成及消耗速率比白天小得多, 因此夜间 O_3 的体积分数曲线几乎是平直的。早晨 5 点以后, 随着辐射的增强, 光化学反应加快, O_3 的生成及消耗同时增加, 中午 12 点左右达到峰值, 以后又逐渐减弱。表 1 列出了 O_3 产生及消耗速率的两天的平均值。

表 1 中输送前及输送后的汇项之和都稍大于源项, 造成 O_3 体积分数曲线出现下降趋势, 输送后 O_3 的产生及消耗速率都有增加, 由于源和汇的同时增加且增加幅度接近, 所以 O_3 输送前与输送后的体积分数变化曲线近于平行。48 小时后的 13 点, 有云个例的 O_3 体积分数与无云个例的差是 10.92×10^{-9} , 而初始时的体积分数差是 10.98×10^{-9} , 说明在这 48 小时中, 有云个例的 O_3 体积分数的下降速率只略低于无云个例, 差别很小。因此, 在不考虑液相化学影响的假设下, 本个例计算的结果表明, 对流输送改变了 O_3 体积分数的多少, 使得 O_3 箱体积分数增大, 但对其随后的化学变化趋势影响不大。

表 1 O_3 产生及消耗速率的平均值

	汇		源
	$O_3 \rightarrow O^1D+O_2$	$O_3 \rightarrow O^3P+O_2$	$O^3P+O_2 \rightarrow O_3$
无云个例 ($\times 10^{-7} \text{ Pa/s}$)	0.322	9.45	9.77
有云个例 ($\times 10^{-7} \text{ Pa/s}$)	0.342	10.03	10.33

一些研究^[11]认为对流输送可以增大对流层上部的 O_3 体积分数, 因为云把 O_3 的前体物 NO_x 、 HC 等输送上去使化学反应生成更多的 O_3 。在本个例的计算中, 云输送的确增加了对流层上部 NO_x 等的体积分数, 同时也增大了 O_3 的化学反应的源的产生速率 (见表 1), 平均由 $9.77 \times 10^{-7} \text{ Pa s}^{-1}$ 增大到 $1.03 \times 10^{-6} \text{ Pa s}^{-1}$ 。积分 48 小时, 两天时间 O_3 的体积分数增加了 96.8×10^{-9} 。但是云的输送增大了对流层上部本身的 O_3 体积分数, O_3 体积分数的增大一方面使其自身的光解消耗增加 (见表 1), 另一方面 O_3 与 OH 、 HO_2 自由基的反应消耗也随之增大, 其结果导致 O_3 的化学反应的汇增大。由于对流层上部 O_3 反应的源和汇同时增加, 因此与无云输送情况相比, 两者 O_3 体积分数的时间变化差别不大, 而随着时间的增长, 输送上去的前体物如 NO_x , 会由于转化成一些相对稳定的组分如 HNO_3 、 PAN 等而逐渐消耗, 导致 O_3 的体积分数也随之呈下降趋势。

3.2 NO 、 NO_2 、 NO_3 、 HNO_3 、 PAN

有云个例和无云个例 NO_2 体积分数时间变化的比较见图 5。云把地表附近高体积分数的 NO_2 输送上去, NO_2 的箱平均体积分数从初始的 1.02×10^{-11} 明显增大到输送后的 6.58×10^{-11} , 使得有云个例的初始值是无云个例的 6 倍多。13 点化学模式计算开始后, 由于 NO_2 的体积分数高, 发生快速光解反应, 使体积分数很快降低, 约 4 小时后达到较为稳定的状态, 此后有云个例和无云个例体积分数曲线的变化趋于一致。对每个时刻体积分数进行平均, 有云个例的体积分数较无云个例增加了 70%。白天, NO_2 反应的消耗大于它的生成, 使体积分数降低较快, 其中最重要的消耗反应是 NO_2 光解生成 O^3P+NO 。图 6 为该反应所引起的 NO_2 的消耗速率对两个个例的比较, 有云个例的消耗速率大于无云个例, 其生成的 O_3 就多。在夜间, NO_2 体积分数略有升高, 原因在于 HNO_4 夜间的分解

和 HNO_4 与 OH 的反应生成以及 NO_2 消耗速率的降低。图 7 是 NO 的体积分数比较图, 可以看出白天 NO 的体积分数较大, 其主要来源是 NO_2 的光解。

图 8 是 NO_3 的体积分数曲线。 NO_3 是极易溶的组分, 在云发展过程中很容易被液相清除, 所以模式没有计算它的直接输送, 但由于输送改变了其他组分的体积分数, 也就导致了 NO_3 体积分数的变化。对两条曲线体积分数进行平均, 有云个例 NO_3 体积分数比无云时高 62%。 NO_3 体积分数有明显的日变化, 在白天它极不稳定, 易光解, 所以体积分数较低。由图 9 和图 10 可以看出, 虽然 NO_3 在白天的生成速率很大, 但其消耗速率更大, 平衡的结果使体积分数较低。在夜里, O_3 和 NO_2 的反应是生成 NO_3 的主要源, 由于高体积分数 NO_2 的输送, 使反应生成的 NO_3 体积分数较大, 以后随着 NO_2 的消耗, NO_3 的峰值体积分数有所降低。

HNO_3 是易溶的气体, 可不考虑它的输送, 有云和无云个例化学箱模式的初始值一样, 都取输送前的箱平均体积分数。从图 11 中可以看出, 虽然初始值相同, 但有云个例的 HNO_3 的体积分数大大超过了无云的体积分数, 平均增大了 87%。造成体积分数增大

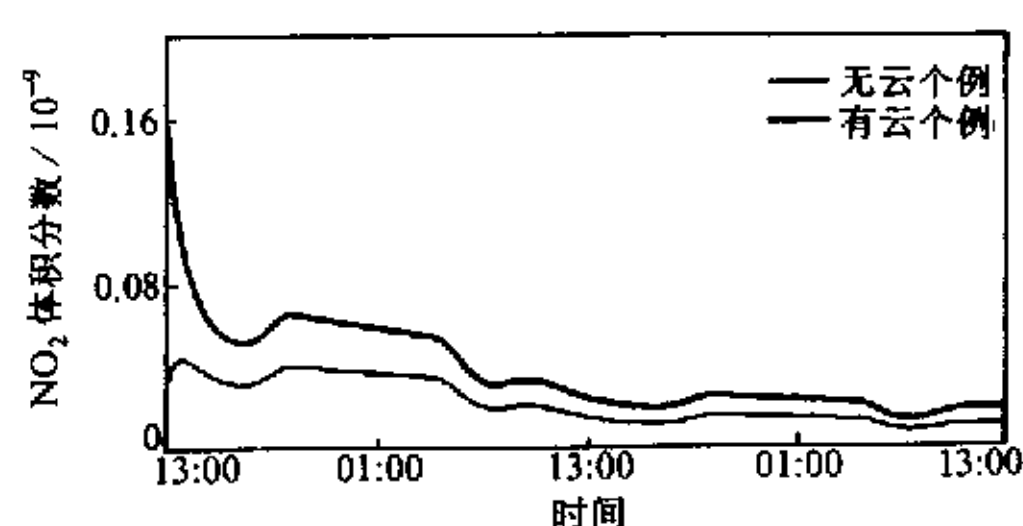


图 5 有云与无云个例 NO_2 体积分数的对比

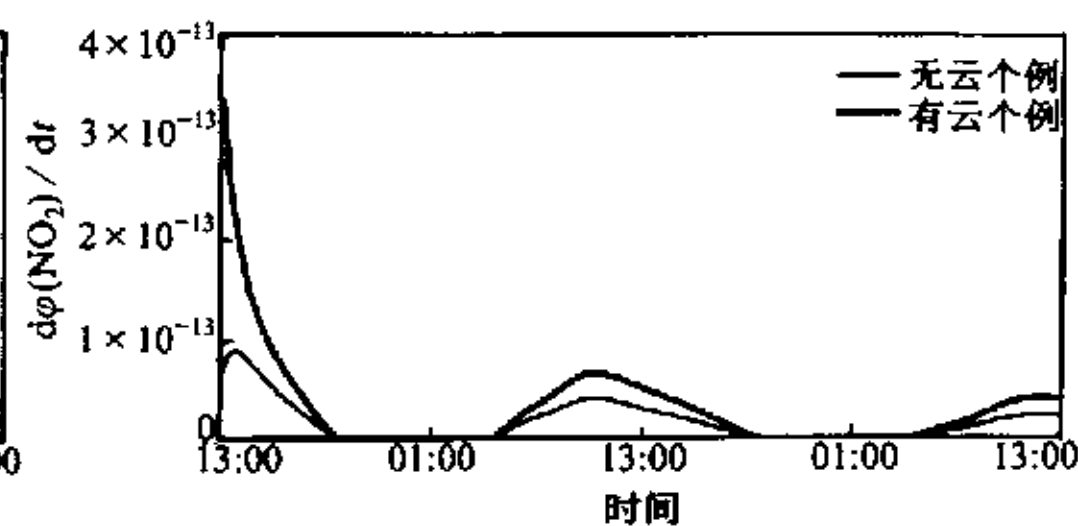


图 6 NO_2 消耗速率的日变化

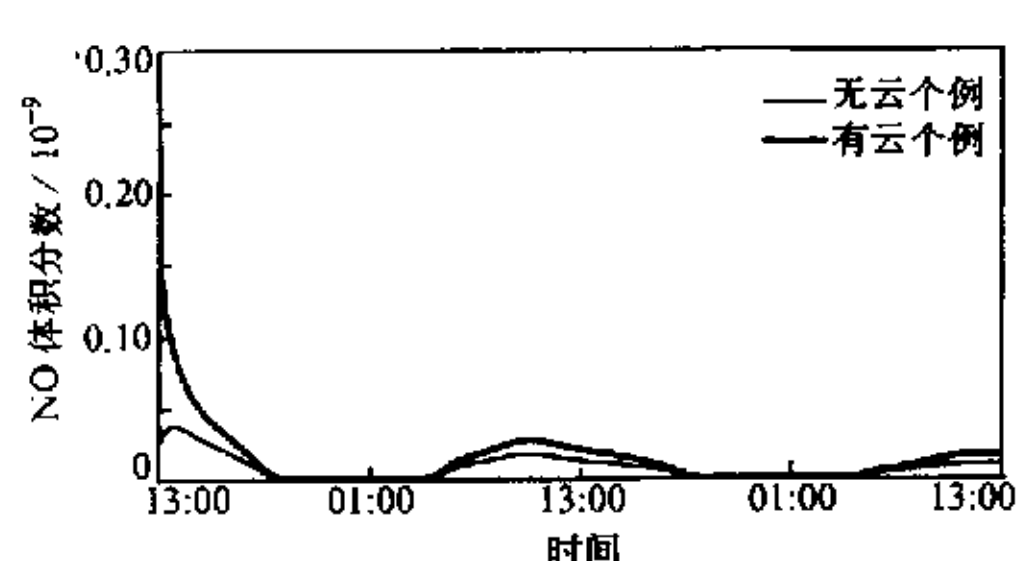


图 7 有云与无云个例 NO 体积分数的对比

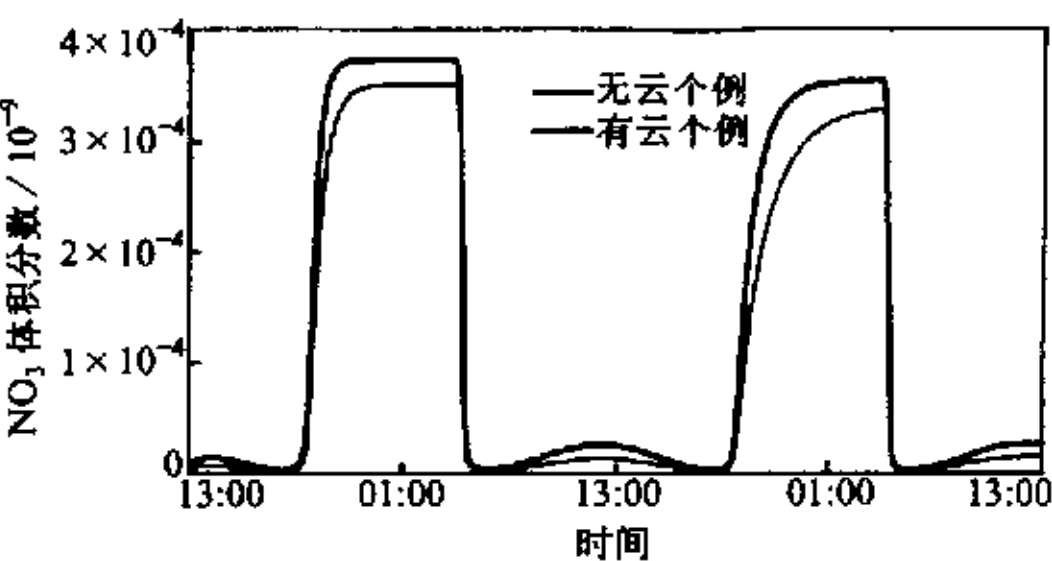


图 8 有云与无云个例 NO_3 体积分数的对比

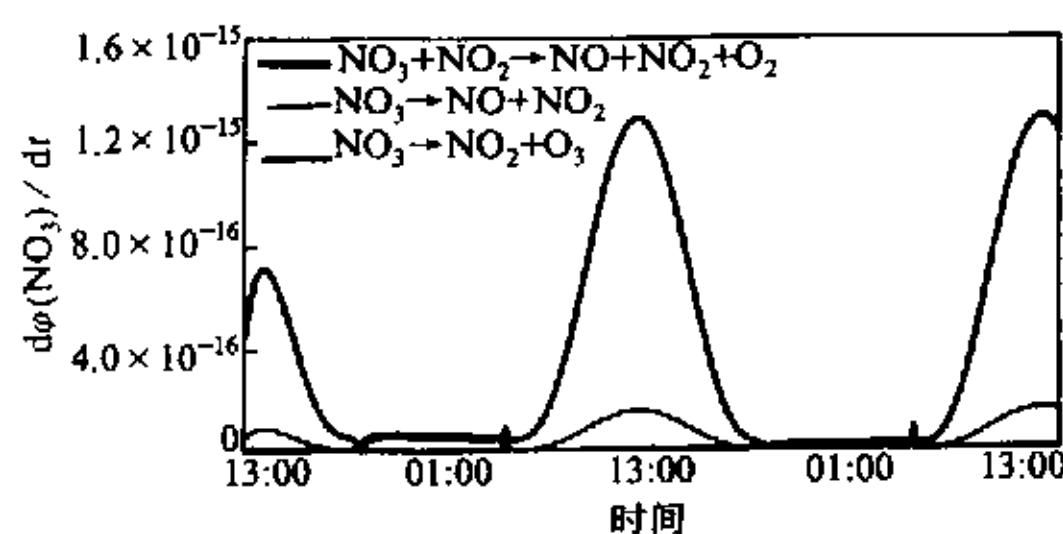


图 9 NO_3 消耗速率的日变化

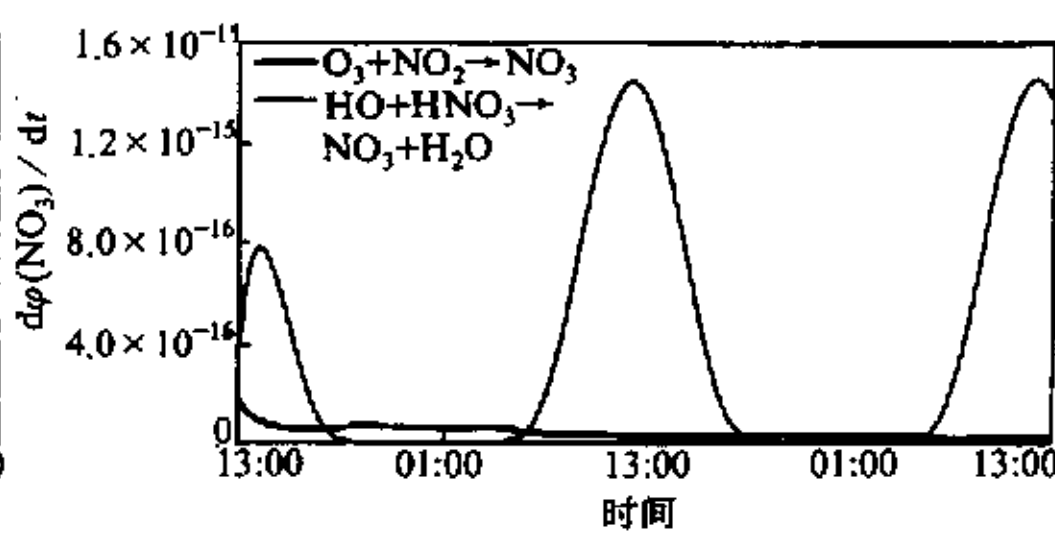


图 10 NO_3 生成速率的日变化

的主要原因是 $\text{OH} + \text{NO}_2$ 反应生成 HNO_3 , 图 12 给出的是该反应对 HNO_3 体积分数变化的贡献, 有云的贡献比没有的要大 91%, 其原因在于输送后 NO_2 和 OH 的体积分数增加。 HNO_3 主要的消耗是与 OH 反应生成 NO_3 , 但 HNO_3 的消耗率与生成率相比要低一个量级, 因此 HNO_3 的体积分数随时间呈增长趋势。由于 HNO_3 是较为稳定的组分, 它的增长对 OH 自由基和 NO_2 的不断消耗, 尤其是对 OH , HNO_3 的生成和消耗反应都会造成 OH 的减少。

PAN 是过氧乙酰硝酸酯的简称, 具有氧化性, 是重要的光化学产物。由图 13 可以看出 PAN 体积分数的变化与 HNO_3 相类似。 NO_2 和 ACO_3 的反应是生成 PAN 的唯一的源, 而 ACO_3 又是丙酮 KET 光解的产物, 输送造成了 NO_2 和 KET 体积分数的增长, 因此生成的 PAN 体积分数就明显变大。对各个时刻的体积分数增长求平均, 有云个例的 PAN 大约增长了 49%。

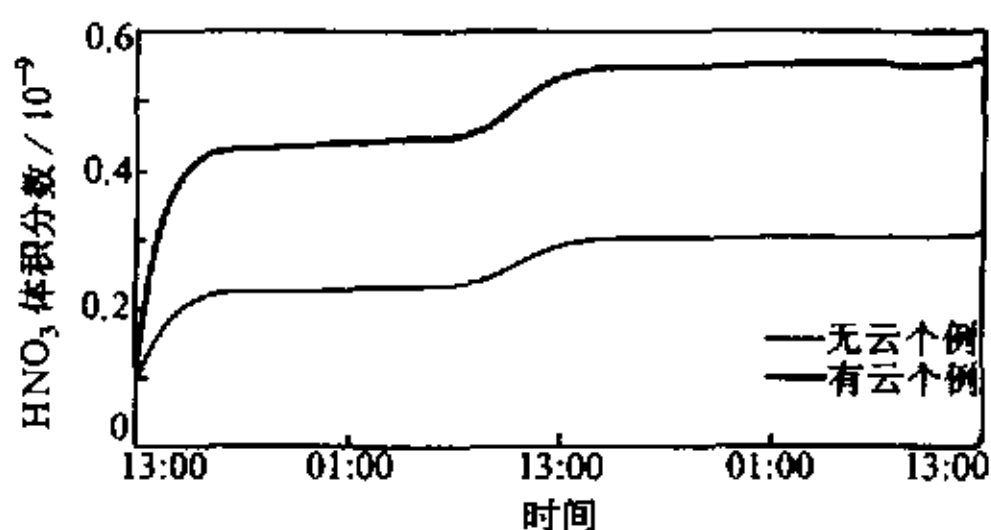


图 11 有云与无云个例 HNO_3 体积分数的对比

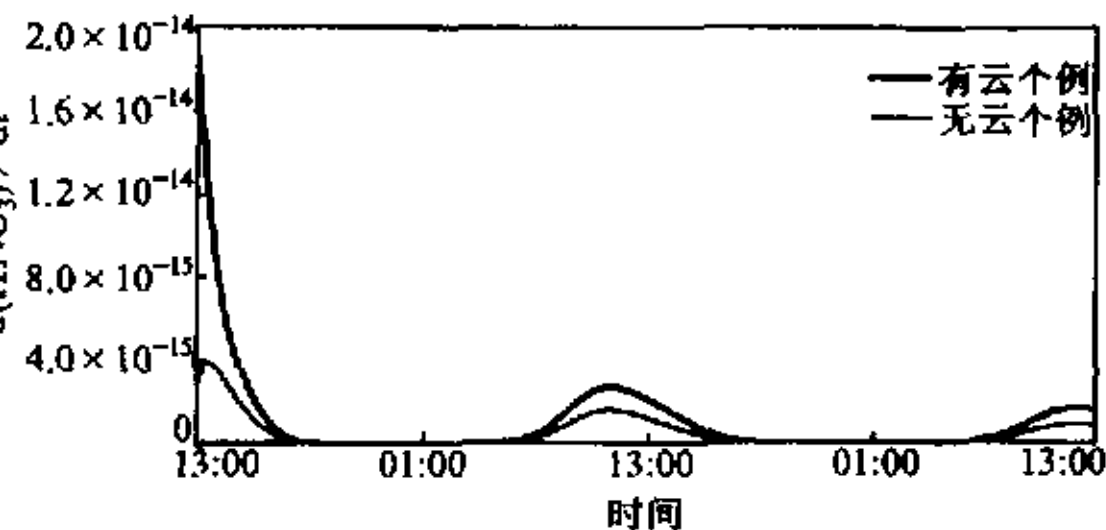


图 12 HNO_3 生成速率的日变化

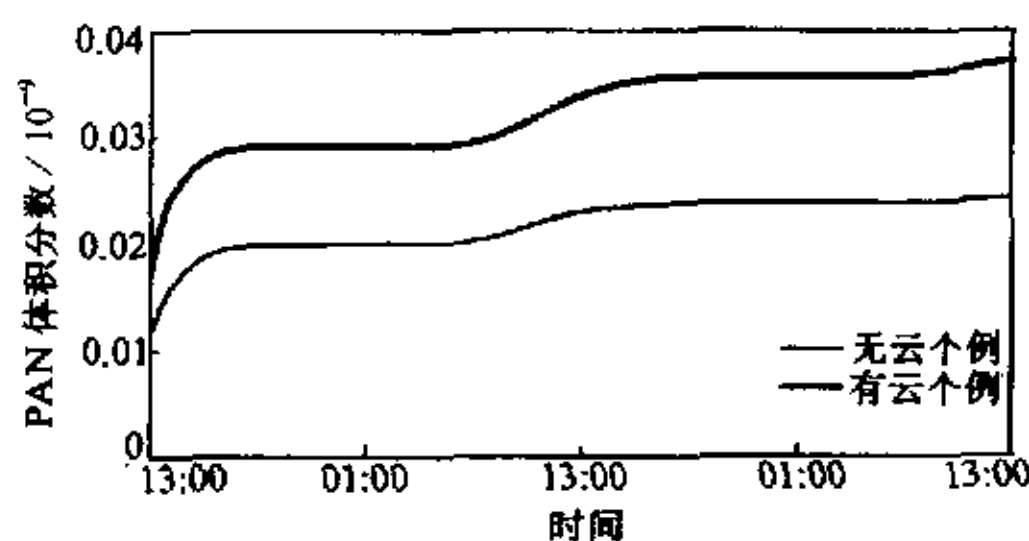


图 13 有云与无云个例 PAN 体积分数的对比

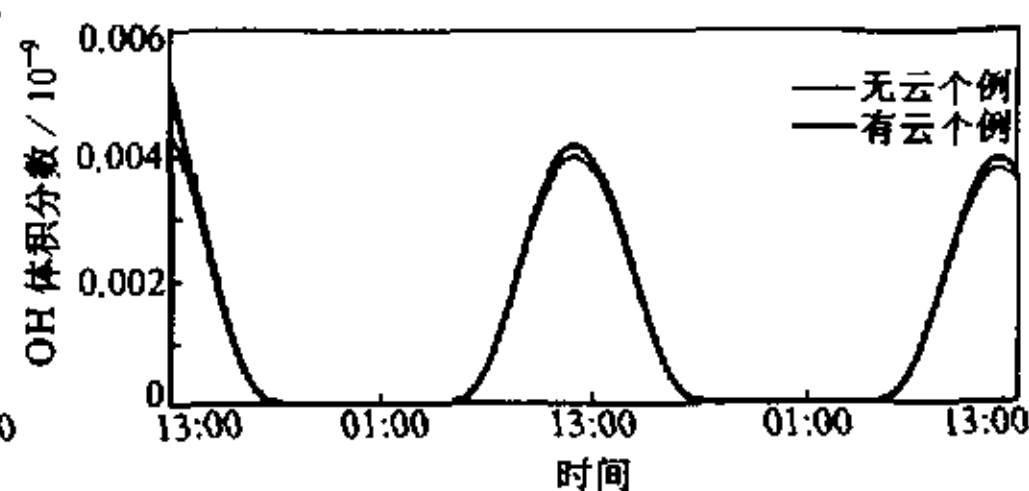
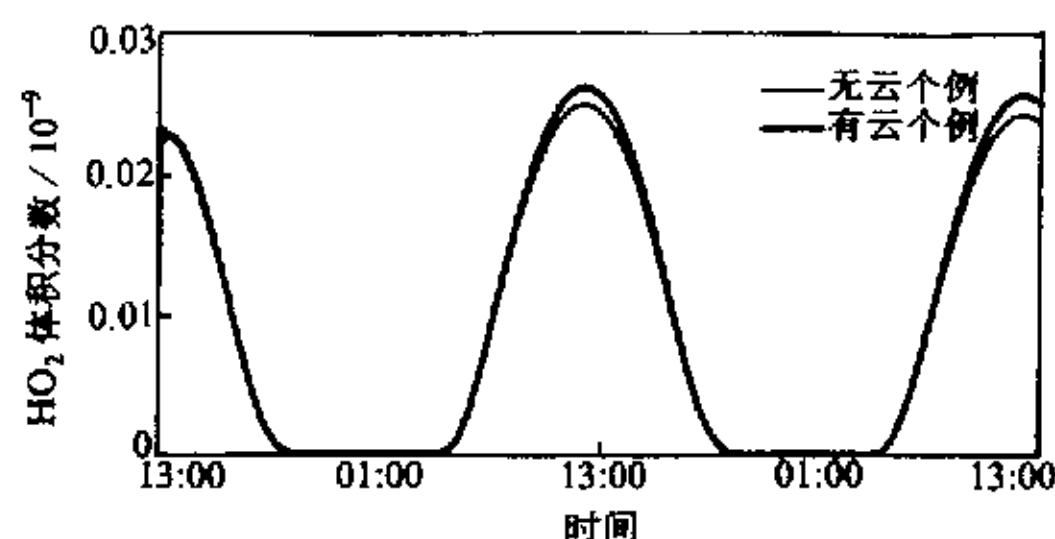
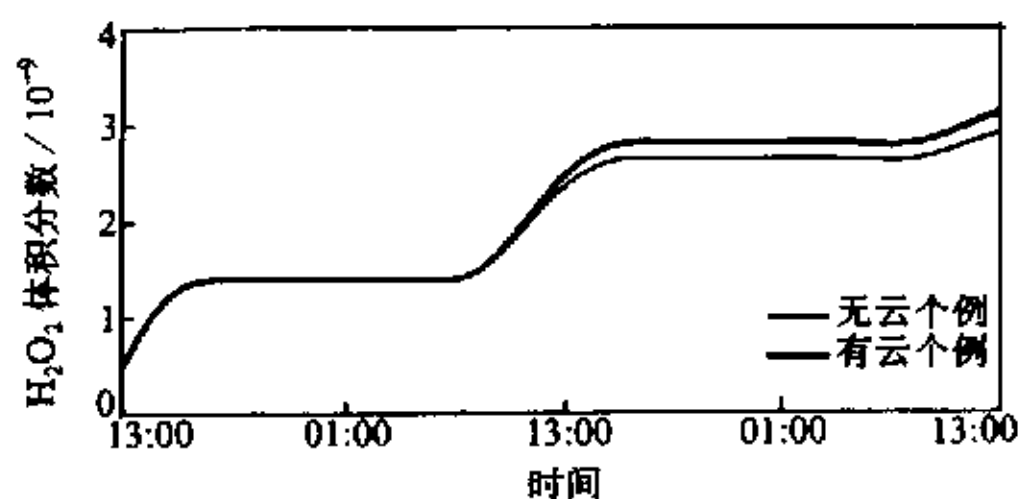


图 14 有云与无云个例 OH 体积分数的对比

3.3 OH 、 HO_2 、 H_2O_2

有云个例的 OH 和 HO_2 自由基体积分数比无云个例均有增加, OH 平均增加了 13%, HO_2 增加了 11%。它们的体积分数曲线具有明显的日变化 (见图 14、15), 中午出现峰值, 夜间接近零, 因为它们有关的化学反应都集中在白天。 HO 的主要来源是 O^1D 和 H_2O 的反应, 而 O^1D 由 O_3 光解产生, 由于输送增加了箱内 O_3 的平均体积分数, 生成更多的 O^1D , 从而使 OH 增加。 OH 的汇主要是它与 CO 及 O_3 的反应 (这也是产生 HO_2 最重要的源), 随着 H_2O_2 体积分数的增大 (见图 16), 它与 OH 的反应对 OH 的消耗也随之增大。

最近有一些文献的观测和模式研究认为, 丙酮、 CH_3OOH 、 HCHO 等 HO_x 前体物的深对流输送造成对流层上部 HO_x 的大量增加。尤其是丙酮^[12,13]、Singh 等^[14]认为一个丙酮分子可以光解产生三个 HO_2 分子。在本章的计算中, 虽然云对流也造成了前体

图 15 有云与无云个例 HO_2 体积分数的对比图 16 有云与无云个例 H_2O_2 体积分数的对比

物丙酮、 CH_3OOH 、 HCHO 的向上输送, 增大了它们的体积分数, 但它们对 HO_x 产生的贡献不是很大。除了化学机制不同的原因外, 本章计算中 NO_2 体积分数较高, 它与丙酮的直接光解产物 ACO_3 化合生成较稳定的 PAN, 这一方面消耗了丙酮这个产生 HO_x 的源; 另一方面, PAN 的增加会增强它与 OH 反应, 使 OH 的消耗变多, 从而增加了 HO_x 的汇。另外, 高体积分数的 NO_2 还可反应消耗 OH 生成较为稳定的 HNO_3 , 使 OH 体积分数下降, 因此, 本文的研究表明对流输送这些 HO_x 的前体物对于对流层上部 HO_x 的增加并不明显。

4 小结

本文利用一个三维的冰雹云模式与化学组分输送模块耦合, 研究云输送引起大气光化学组分的再分布, 并用一个化学反应箱模式来比较云输送前后大气气相组成的变化及其对大气化学系统的影响。

化学箱模式模拟了云过程发生后 48 小时化学组分的体积分数演变, 并与没有发生云输送的情况进行了比较。结果表明, 对 O_3 来说, 云作用后有云个例的 O_3 初始体积分数大于无云个例, 但其后两者的化学变化趋势相差不大; 有云个例与无云个例的 O_3 体积分数曲线均呈下降趋势, 这是因为输送后的 O_3 的产生项虽有所增加, 但 O_3 的体积分数越高, 其消耗也就越多, 其汇项之和大于源项之和, 结果使 O_3 的体积分数降低。

有云个例中, HNO_3 、 NO_2 、 NO_3 、PAN 等的体积分数均明显高于无云个例, 分别增长了 87%、70%、62% 和 49%, 其中 NO_2 体积分数的增加主要由于云输送造成, 而 NO_3 、 HNO_3 、PAN 主要是输送对化学扰动的结果。有云个例的 OH 和 HO_2 自由基体积分数比无云个例平均增加了 11% 和 13%。

以上结果说明, 云的输送作用不但能直接改变污染物的垂直分布, 而且由于输送造成组分的变化, 打破了原先大气化学系统的平衡, 在新平衡建立的过程中, 化学组分体积分数会有新的变化, 这是云输送对污染物分布的间接作用。

参 考 文 献

- 1 Kley, D., Tropospheric chemistry and transport, *Science*, 1997, 276, 1043~ 1045.
- 2 Dickerson, R. R., Huffman, G. J., Luke, W. T., Nunnermacker, L. J., Pickering K. E., Leslie, A. C. D., Lindsey, C. G., Slinn, W. G. N., Kelly, T. J., Daum, P. H., Delany, A. C., Greenberg, J. P., Zimmerman, P. R., Boatman, J. F., Ray, J. D. And Stedman, D. H., Thunderstorms: an important mechanism in the transport of air

- pollutants, *Science*, 1987, **235**, 460~465.
- 3 Prather, M. J., Jacob, D. J., A persistent imbalance in HO_x and NO_x photochemistry of the upper troposphere driven by deep tropical convection, *Geophys. Res. Lett.*, 1997, **24**(24), 3189~3192.
 - 4 Wang Chien and Chang, J. S., A three-dimensional numerical model of cloud dynamics, microphysics, and chemistry I. Concepts and formulation, *J. Geophys. Res.*, 1993, **98**(D8), 14827~14844.
 - 5 Wang Chien and Crutzen, P. J., Impact of a simulated severe local storm on the redistribution of sulfur dioxide, *J. Geophys. Res.*, 1995, **100**(D6), 11357~11367.
 - 6 Wang Chien, Crutzen, P. J. and Ramanathan, V. and Williams, S. F., The role of a deep convective storm over the tropical Pacific Ocean in the redistribution of atmospheric chemical species, *J. Geophys. Res.*, 1995, **100**(D6), 11509~11516.
 - 7 Kong, F. Y. and Qin Yu, The vertical transport of air pollutants by convective clouds. Part I: A non-reactive cloud transport model, *Adv. Atmos. Sci.*, 1993, **10**, 415~427.
 - 8 孔凡铀、黄美元、徐华英, 对流云中冰相过程的三维数值模拟, I: 模式建立及冷云参数化, *大气科学*, 1990, **14**(4), 441~453.
 - 9 Stockwell, W. R., Middleton, P., Chang, J. S. and Tang, X., The second generation regional acid deposition model chemical mechanism for regional air quality modeling, *J. Geophys. Res.*, 1990, **95**, 16343~16367.
 - 10 李冰、刘小红、洪钟祥、肖辉, 深对流云输送对于对流层 O_3 、 NO_x 再分布的作用, *气候与环境研究*, 1999, **4**(3), 291~296.
 - 11 Pickering, K. E., Thompson, A. M., Scala, J. R., Tao W. K. and Simpson J., Ozone production potential following convective redistribution of biomass burning emission, *J. Atmos. Chem.*, 1992, **14**, 297~313.
 - 12 Wennberg, P. O., Hanisco, F., Jaegle, L., Jacob, D. J., Hints, E. J., Lanzendorf, E. J., Anderson, J. G., Gao, R. S., Keim, E. R., Donnelly, S. G., DelNegro, L. A., Fahey, D. W., McKeen, S. A., Salawitch, R. J., Webster, C. R., May, R. D., Herman, R. L., Proffitt, M. H., Margitan, J. J., Atlas, E. L., Schauffler, S. M., Flocke, F., McElroy, C. T. and Bui T. P., Hydrogen radicals, nitrogen radicals, and the production of O_3 in the upper troposphere, *Science*, 1998, **279**, 49~53.
 - 13 McKeen, S. A., Wennberg, P., Gierczak, T., Burkholder, J. B., Keim, E., Ravishankara, A. R., Gao, R., Liu, S. C. and Fahey, D., The photochemistry of acetone in the upper troposphere: a source of odd-hydrogen radicals, *Geophys. Res. Lett.*, 1997, **24**, 3177~3180.
 - 14 Singh, H. B., Kanakidou, M., Crutzen, P. J. and Jacob, D. J., High concentrations and photochemical fate of oxygenated hydrocarbons in the global troposphere, *Nature*, 1995, **378**, 50~54.

The Role of 3-D Convective Cloud Transport in the Redistributions of the Tropospheric Photochemical Species and Chemistry Effects

Li Bing, Liu Xiaohong and Hong Zhongxiang

(State Key Laboratory of Atmospheric Boundary Physics and Atmospheric Chemistry,
Chinese Academy of Science, Institute of Atmospheric Physics, Beijing 100029)

Abstract A three-dimensional model of hailstorms coupled with chemistry transport module is used to simulate the redistribution of photochemical species due to cloud transport, then the cloud chemistry box model is used to study the disturbance of atmospheric chemistry system owing to the change of gas concentration caused by cloud transport. The results show that the O_3 concentrations following cloud transport are higher than those in cloudless cases, however, during 2-day period, their variable trends have no great difference. The concentrations of NO_2 , NO_3 , HNO_3 , PAN are much higher than in cloudless cases, increasing by 70%, 62%, 87% and 49% respectively, in which the increase of NO_2 is owing to cloud transport, the increases of NO_3 , HNO_3 , PAN result from the disturbance of transport to the chemistry system. The concentrations of OH, HO_2 increase by 13% and 11%, respectively, compared with cloudless cases in two days.

Key words: cloud transport; troposphere; ozone; chemistry box model