

积云对二氧化硫和硫酸盐 气溶胶作用的研究^{*}

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 利用一个冰雹云模式与云化学模式耦合而成的二维积云化学模式, 研究对流云的输送、微物理转化、云内化学过程、湿清除对 SO_2 及硫酸盐气溶胶的作用。云化学模式的结果表明, 由于 SO_2 在向上输送的过程中可溶解于云水和雨水中, 从而阻止了 SO_2 向上部的转移, 因此对气相 SO_2 来说, 云的输送是一个相当无效的过程, 而液相清除起主要作用。硫酸盐气溶胶的收支分析表明, 降水清除了 1.67 mol 的 SO_4^{2-} , 占气溶胶总量的 64%, 其中液态降水清除了 0.72 mol, 固态降水清除了 0.95 mol, 说明了冰相过程在硫沉降中的重要性。

关键词: 硫酸盐; 气溶胶; 二氧化硫; 积云

1 引言

80年代初, 由于酸雨问题的严重性, 云和降水化学的研究焦点是酸沉降的形成^[1,2]。在研究中人们发现, 大气人为排放的 SO_2 溶解于云内, 发生液相氧化反应生成硫酸 (SO_4^{2-}) 是造成雨水酸化的重要原因。另外, 大气中存在大量的硫酸盐气溶胶也能够通过气溶胶的核化清除转化为云凝结核进入液相而使雨水酸化。据统计, 全球 50% 的 SO_2 转化为 SO_4^{2-} 气溶胶, 主要是通过云内氧化的方式, 剩余的被沉降清除(干沉降占 30%, 湿沉降占 20%), 而全球 85% 的 SO_4^{2-} 来源于 SO_2 的云内氧化。Wang 和 Cruzen^[3]用一个二维模式来研究一个中纬度的强暴雨过程对 SO_2 -S(IV)-S(VI) 输送及氧化过程的影响。他们认为云化学和降水从云区清除了将近 50% 的 SO_2 , 其中 2/3 来源于云内清除, 1/3 来源于云下清除。本文将利用一个积云化学模式研究深对流积云对对流层 SO_2 的影响。

2 模式特点

本文所用的云物理模式采用中国科学院大气物理研究所三维雹云模式的二维版本^[4,5]。详细模式介绍见参考文献[6]。下面介绍模式的主要特点。

1999-08-18 收到, 1999-10-11 收到修改稿

* 本研究得到中国科学院“百人计划”(大气化学)、中国科学院“九五”重大项目 KZ-951-A1-403 和中国科学院大气物理研究所所长重点基金项目 98-209 的资助

2.1 考虑了冰相微物理过程

本模式有详细的微物理参数化过程, 尤其是有 17 个包括冻结、凇附、冰晶繁生等的冰相微物理过程。

2.2 较为详尽的化学反应机制

模式耦合了详尽的化学反应机制, 包括 101 个化学物种 (62 个气相物种, 39 个液相物种) 的 224 个化学反应 (158 个气相反应, 66 个液相反应), 20 种易溶、较易溶气体的气、液相交换过程。对气、液间的气体交换, 没有使用溶解平衡的假设, 而是用扩散方程来求解, 更为准确。

2.3 加入了对气溶胶物理和化学过程的描述

由于云和气溶胶相互作用的密切性, 模式中考虑了硫酸盐气溶胶的气溶胶的源汇项, 如核化清除、碰并清除等过程, 使模式的物理机制更为完善。

3 初始条件

模拟的水平尺度为 36 km, 高度为 18 km, 水平格距为 1 km, 垂直格距为 0.5 km。模式的时间步长为 10 s。模拟时间总长度 160 min, 共 960 个时步。图 1 是温度、露点的初始廓线。化学物种的初始浓度分布是水平均一的。部分化学物种和气溶胶的初始体积分数廓线设为随高度呈负指数递减 (见图 2)。

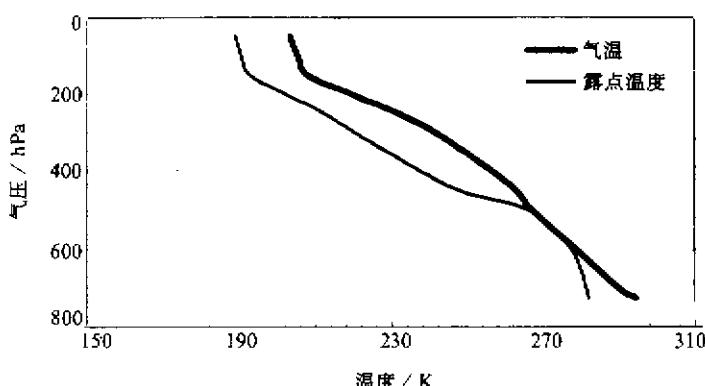


图 1 温度、露点温度的初始廓线

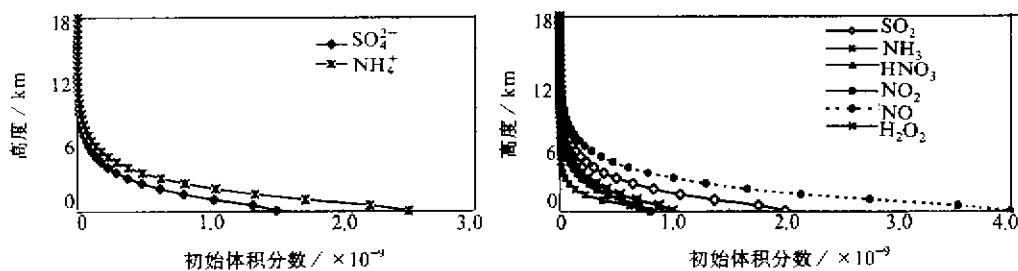


图 2 化学物种和气溶胶的初始体积分数廓线

4 模拟结果

由于没有加环境风场，所得的云的结构是轴对称的，因此，化学物种的体积分数分布也呈轴对称分布。图3是第80分钟 SO_2 在气相的分布，可以看出，云对 SO_2 输送的作用并不明显，图中 0.2×10^{-9} 的等值线在中段向下弯曲，与云水和雨水出现的位置吻合，在云水和雨水区内，气相 SO_2 的体积分数极低，这是由于 SO_2 在向上输送的过程中可溶解于液相的云水和雨水中，并发生液相的化学反应消耗，从而阻止了气相 SO_2 向上部的转移。因此，对气相 SO_2 来说，云对它的输送是一个相当无效的过程，液相的清除作用十分有效。

SO_4^{2-} 气溶胶可以通过核化清除与布朗扩散清除进入云滴，所以，云区内气相 SO_4^{2-}

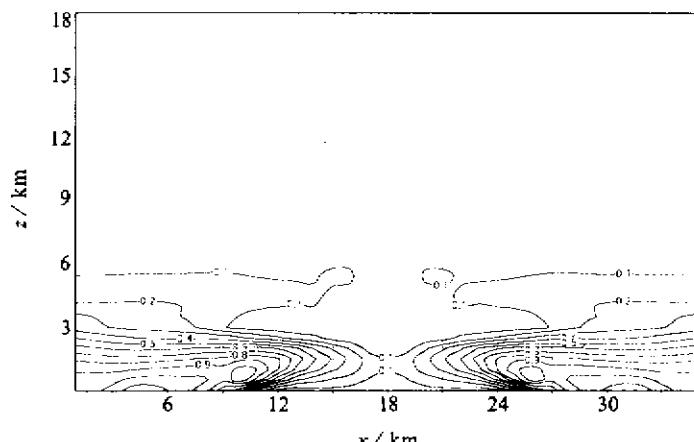


图3 气相 SO_2 的体积分数分布。单位： 10^{-9}

气溶胶粒子的体积分数很低（图4），而云水内 SO_4^{2-} 离子强度较高（图5），最大可达 $8 \times 10^{-9} \text{ mol/kg}$ ，主要分布在下部云体，尤其是云底附近的等值线非常密集，因为这里的云水含量和过饱和度较高，容易满足核化条件。

图6是各时刻 SO_4^{2-} 气溶胶水平平均体积分数廓线，可以看到由于云液相和冰相有效的清除作用，各时

刻的 SO_4^{2-} 气溶胶体积分数都大大低于初始体积分数，且时间越往后，被清除、沉降的越多，体积分数越低。在3 km的云底附近，气溶胶被清除得最多，这是核化清除的作用。到云模拟结束时的第160分钟，由于水成物的蒸发作用使得6 km高度附近气溶胶的体积分数略大于初始体积分数。

降水对气溶胶的清除也是很有效的。图7给出了各

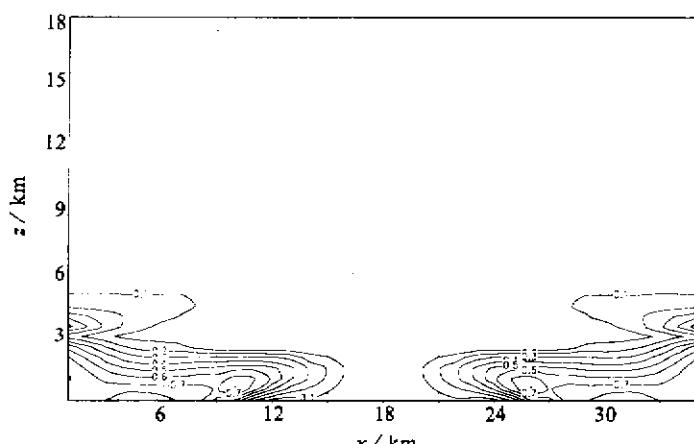


图4 气相 SO_4^{2-} 气溶胶的体积分数分布。单位： 10^{-9}

时刻降水(雨、霰)所沉降的 SO_4^{2-} 的量和云水、雨水、冰晶、霰中 SO_4^{2-} 的量。降水共带走了 1.67 mol 的 SO_4^{2-} , 占初始气溶胶总量的 63.5%, 其中液态降水 0.72 mol, 固态降水 0.95 mol。由此可以看出冰相过程在硫沉降中的重要性。

5 小结

本文利用一个积云化学模式研究了深对流积云对对

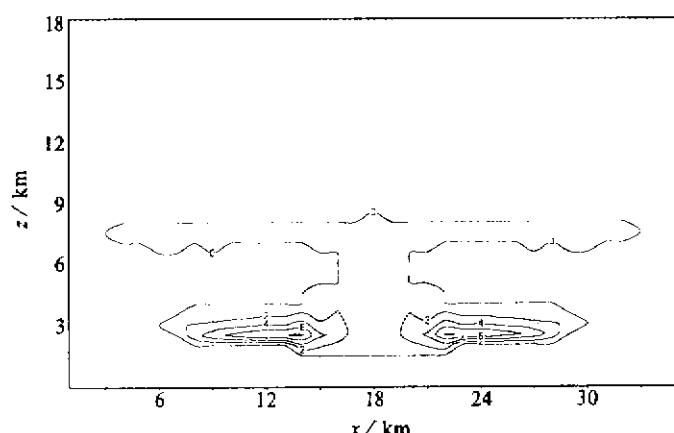


图 5 云水内 SO_4^{2-} 的离子强度分布。单位: 10^{-9} mol/kg

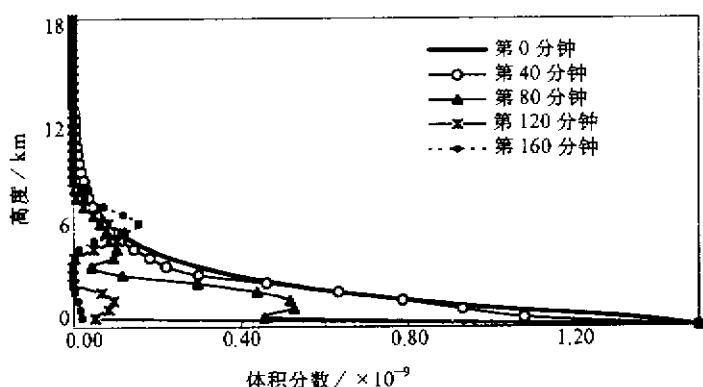


图 6 各时刻 SO_4^{2-} 气溶胶水平平均体积分数廓线

流层硫化学的影响。模拟结果表明, 由于 SO_2 在向上输送的过程中可溶解于液相的云水和雨水中, 并发生液相的化学反应消耗, 从而阻止了气相 SO_2 向上部的转移。因此, 对气相 SO_2 来说, 云对它的输送是一个相当无效的过程, 液相的清除作用十分有效。 SO_4^{2-} 气溶胶在其向上输送过程中可通过与云的微物理作用进入云

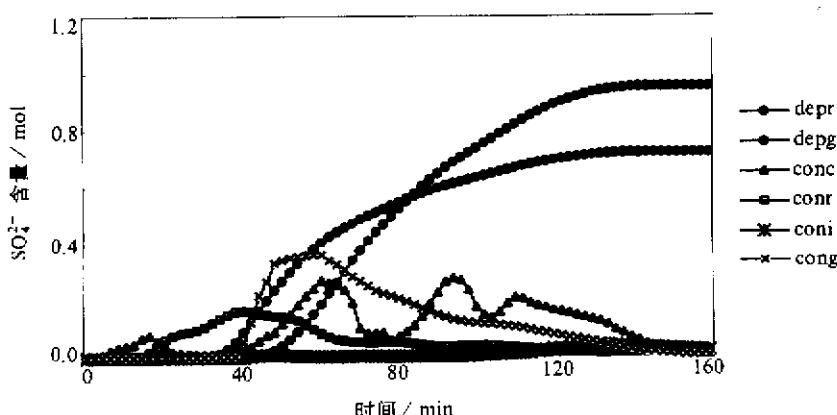


图 7 各时刻云水、雨水、冰晶、霰中 SO_4^{2-} 的量(分别为 conc, conr, coni, cong)和降水(雨、霰)所沉降的 SO_4^{2-} 的量(分别为 depr, depg)

水或雨水中而被清除掉。降水对 SO_4^{2-} 气溶胶的清除十分显著，占初始气溶胶总量的 64%，其中固态降水 0.95 mol，占总清除量的 57%，说明了冰相过程在硫沉降中的重要性。

参 考 文 献

- 1 Taylor, G. R., Sulfate production and deposition in midlatitude continental cumulus clouds, Part I: Cloud model formulation and base run analysis, *J. Atmos. Sci.*, 1989, **46**(13), 1971~1990.
- 2 Taylor, G. R., Sulfate production and deposition in midlatitude continental cumulus clouds, Part II: Chemistry model formulation and sensitivity analysis, *J. Atmos. Sci.*, 1989, **46**(13), 1991~2007.
- 3 Wang Chien and Crutzen, P. J., Impact of a simulated severe local storm on the redistribution of sulfur dioxide, *J. Geophys. Res.*, 1995, **100D**(D6), 11357~11367.
- 4 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.
- 5 孔凡铀、黄美元、徐华英, 1991, 对流云中冰相过程的三维数值模拟. II: 繁生过程作用, 大气科学, **15**(6), 78~87.
- 6 李冰, 云对对流层大气化学作用的模式研究, 中国科学院大气物理研究所博士论文, 1999, 142p.

The Study of the Impact of Cumulus Cloud upon Sulfur Dioxide and Sulfate Aerosols

Li Bing, Liu Xiaohong and Hong Zhongxiang

(State Key Laboratory of Numerical Modeling for Atmospheric Geophysical Fluid Dynamics,
Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029)

Abstract A two-dimensional cumulus cloud chemistry model which coupled a hailstorms model with cloud chemistry module was used to study the role of deep-convective transport, microphysics conversion, chemistry process in the cloud and wet scavenging on SO_2 and sulfate aerosols. The results of cloud chemistry model show that the uptake of SO_2 in cloud water and rain water hinders the transfer of SO_2 to the upper level. Therefore the transport of SO_2 was a rather inefficient process, but the scavenging by liquid phase plays an important role. The budget of sulfate aerosols shows 1.67 mol SO_4^{2-} , about 64% total sulfate is scavenged by precipitation in which 0.72 mol SO_4^{2-} by rain, 0.95 mol SO_4^{2-} by graupel, it shows the importance of ics phase process in acid deposition.

Key words: sulfate; aerosol; sulfur dioxide; cumulus clouds.