

全球人为硫酸盐和烟尘气溶胶资料 及其光学厚度的分布特征^{*}

张立盛 石广玉

(中国科学院大气物理研究所大气科学和地球流体力学数值模拟国家重点实验室, 北京 100029)

摘 要 简单介绍了两种不同化学输送模式及其输出的硫酸盐和/或烟尘气溶胶资料, 初步分析了它们之间的异同。同时, 在广泛搜集整理已有资料的基础上, 给出了硫酸盐和烟尘气溶胶在整个太阳光谱 $0.2 \sim 40 \mu\text{m}$ 波段内共 72 个间隔上的复折射指数资料; 计算并分析了其整层光学厚度的全球分布特征。结果表明, 无论是地理分布还是数值大小均基本合理。结合上述资料及计算结果, 初步建立了一个全球硫酸盐和烟尘气溶胶资料库, 该库对化学输送模式、辐射强迫和气候效应的研究都有参考意义。

关键词: 硫酸盐; 烟尘; 光学厚度; 资料库

1 引言

气溶胶粒子是重要的大气成分, 它们通过与太阳和地球辐射的相互作用而影响地气系统的能量平衡。因此, 有关气溶胶及其导致的辐射强迫一直是近些年该领域研究的热门课题^[1]。但是, 由于气溶胶粒子的浓度随地域和时间的变化取决于其局地源排放率、离源的距离、化学转化、大气中的对流、平流和湍流扩散输送的强度以及干、湿沉降过程的效率等诸多因素, 因此, 气溶胶浓度的时空分布还存在很大的不确定性。到目前为止, 科学家们对气溶胶本身的源汇、形成及发展的微物理和化学过程的了解还很不够, 直接对气溶胶各种特性的观测也存在相当大的困难。这样, 有关气溶胶的研究不得不采用一种折衷的方法, 即在观测研究的基础上再进行模拟研究, 而这也是以往大多数模拟研究普遍采用的方法^[2~4]。因此, 近些年来, 借助于数值方法对气溶胶粒子的源、汇、输送、微物理和化学转化等过程进行描述和模拟一直是这一领域的研究主题, 这就推动了硫循环等三维化学输送模式 (CTM) 的迅速发展。通过这些模式, 首先可得到区域或全球尺度上气溶胶的时空分布状况, 然后通过粒子的形状和尺度分布等一些假定及 Mie 散射算法, 就可得到模拟气溶胶辐射强迫和气候效应所需要的粒子的辐射特性。这一系列的方法在气溶胶气候效应的研究中已日趋成熟, 可以说是目前该研究领域中最行之有效的方法之一。

1999-09-20 收到, 1999-10-22 收到修改稿

^{*} 本研究得到国家“九五”重中之重项目 96-908-01-06、国家自然科学基金资助项目 49875012 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 两个 CTM 模式简介

自 Langner 和 Rodhe^[5]首先给出了全球硫循环模式的结果后,国际上已发展了不少 CTM。各 CTM 模拟的硫酸盐浓度的时空分布类型和大小不尽相同,体现了气溶胶不确定性的一个重要方面。在没有充分的观测资料来进行比较的前提下,究竟孰优孰劣尚难定论。本文收集了两个不同 CTM 模拟的硫酸盐资料,一是 LLNL (Lawrence Livermore National Laboratory) 的资料(下称 C97)^[6],一是 MPI (Max-Planck Institute for Meteorology) 的化学模式的结果(下称 F97)^[7]。

2.1 C97 的 CTM

C97 采用 LLNL 的对流层化学输送模式 GRANTOUR。该模式是一个 Lagrangian 气块模式。在模式中固定的 Eulerian 格点上,大气被处理为一组由气候模式风场所平流的常质量空气块,考虑了全球尺度大气中微量物种的输送、转化和清除过程,曾用于研究对流层硫循环^[8]、活性氮循环^[9]以及烟尘和有机碳气溶胶的分布^[10]等等。模式中的主要硫源包括:(1)由化石燃料燃烧和工业排放以及生物质燃烧的人为硫源(SO_2);(2)生物海洋硫(DMS)、大陆硫(DMS、 H_2S)、植被(H_2S)和火山(H_2S 、 SO_2)等自然硫源。全球硫排放达每年 106.0 Tg^[6],其中有 80%由人为因素造成。由 Chuang 等^[6]曾做过的比较可知,该模式模拟的硫酸盐浓度分布及大小与其他硫循环模式^[5,11]的结果基本一致。

2.2 F97 的 CTM

F97 的 CTM 是 MPI 发展的硫循环模式^[12]。该模式将三种硫物种 DMS、 SO_2 和硫酸盐作为诊断变量,边界层中这些物种的平流输送及垂直交换同水汽输送的处理方式基本相同。干沉降通量和模式最低层的浓度及干沉降速度成比例。陆面、水面和冰面的干沉降速度分别采用不同的值,而降水清除则据模式的局地降水形成率显式地进行计算。模式中不但考虑了生物源和背景火山活动的自然排放,而且也考虑了生物质燃烧、化石燃料使用以及工业活动等人为排放的情况。化石燃料燃烧和工业活动引起的硫排放每年 66.8 Tg 取自 GEIA / IGAC (Global Emissions Inventory Activity) 的资料。全球硫排放总量达每年 96.3 Tg^[7],而其中的 72%是由人为因素所造成的。

这两种资料均包括月平均的硫酸盐和 / 或烟尘气溶胶的时空分布资料。它们均基本显示了全球几个人为硫排放中心,如北半球的西欧、东亚和北美以及南半球的非洲和南美,季节变化趋势也基本相同。但由于所用的硫源有一定差别,两个 CTM 对各种物理和化学过程的处理也不尽相同,因此二者也存在一些差别,如全球最大的中心和量值不一致(分别为西欧和东亚)等等。由于气溶胶的模拟本身就存在很大的不确定性,因此,存在这样的差别也是不难理解的。正如 Langner 和 Rodhe^[5]阐述一样,尽管某些模拟结果和观测值之间存在一定的 consistency,但这也并不意味着我们对硫循环的认识或硫循环模式就已经很完善了。因此,为了减小模式中的不确定性,在海洋 DMS 排放、DMS 的氧化路径、 SO_2 的液相氧化和硫酸盐的干湿沉降等过程方面尚需做大量的工作。

3 气溶胶的折射指数及谱分布

气溶胶的折射指数表征气溶胶粒子的光学特性，它是由粒子的化学成分所决定的。d'Almeida 等^[13]和 Koepke 等^[14]曾将 0.2~40 μm 光谱范围分成 40 或 60 个波长间隔，并给出了硫酸盐和烟尘两种气溶胶的折射指数随波长的变化。为了得到更为精确的气溶胶辐射特性，在广泛搜集整理其他资料^[15~17]的基础上，结合上述工作所用的资料，本文共给出了 72 个波长间隔上的折射指数。因为在气溶胶谱分布给定的前提下，气溶胶的辐射特性随波长的变化完全取决于其折射指数随波长的变化，因此，这种较密的波长间隔将会使辐射特性的计算结果更为精细和可靠。图 1 给出了硫酸盐和烟尘气溶胶干粒子（相对湿度 < 50%）折射指数的实部和虚部随波长的变化，其中，折射指数虚部是表示气溶胶粒子散射和吸收能力相对大小的量。虚部越小，散射越强，而吸收相对越弱。由图 1 可以看出，硫酸盐的折射指数虚部在紫外和可见光波段的数值很小，表示它们对短波的吸收很弱，主要作用是散射；当波长较大时，其折射指数虚部有几个数量级的增加，表示了其对长波具有较强的吸收作用。而烟尘粒子主要是由生物质燃烧后的黑碳成分组成，其折射指数虚部在整个波长范围内起伏相对较小，但数值均大于 0.3，说明其对太阳辐射的作用是以吸收为主。总之，硫酸盐气溶胶的散射效应比烟尘气溶胶的要大得多，而其吸收效应则正好相反。

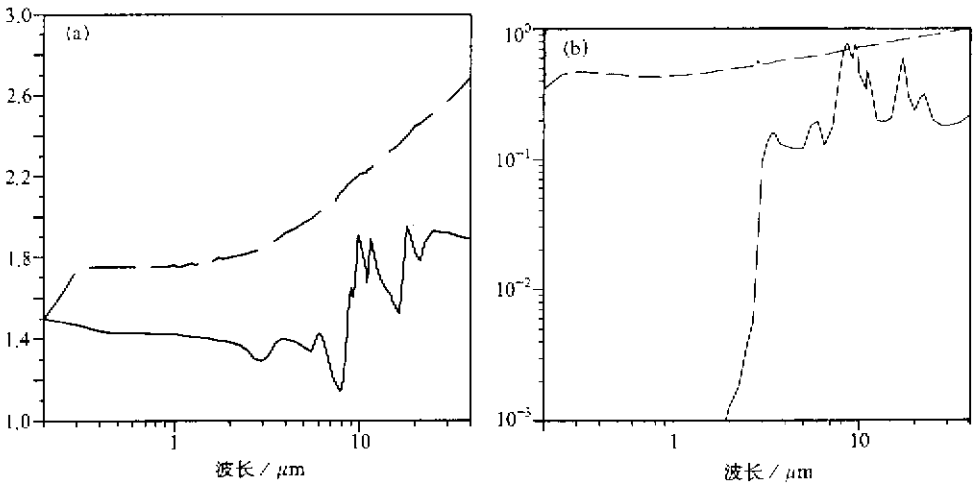


图 1 0.20~40 μm 波长内硫酸盐（实线）和烟尘（虚线）气溶胶折射指数的实部（a）和虚部（b）随波长的变化

实际大气中，气溶胶粒子的形状很不规则，谱分布也十分复杂。本文假定粒子的形状为球形，谱分布为对数正态分布。一般来说，在实际测量的离散资料的基础上，对气溶胶的尺度谱分布大致采用几种假定的连续分布函数，如 Junge 分布、Gamma 分布、对数正态分布以及对数二次曲线分布等等。Junge 分布对大粒子的处理存在较大的误差，适于积聚态质粒的分布特征；Gamma 分布主要用于较大的云滴谱的处理；对数正

态分布则主要针对产生机制相同的气溶胶粒子,它最适于对这类气溶胶的成分、类型和时空变化进行描述,而且由于气溶胶粒子中尺度较小的粒子相对集中,采用对数坐标较为方便,因此,该分布函数曾为气溶胶和其气候效应专家委员会所推荐^[17],其形式如下:

$$\frac{dN(r)}{d\log r} = \frac{N}{\sqrt{2\pi} \log \sigma} \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{\log r - \log r_m}{\log \sigma} \right)^2 \right], \quad (1)$$

其中, r_m 是粒子群的众数半径, σ 是标准偏差, N 是气溶胶粒子的数浓度 (个 / cm^3)。代表某种成分的单个粒子的体积可写为

$$V = \frac{4}{3} \pi r_m^3 \exp \left(\frac{9}{2} \ln \sigma \right), \quad (2)$$

这样, 单个粒子的质量则为

$$M = V \cdot \rho, \quad (3)$$

其中, ρ 是该粒子化学成分的密度。

在我们的计算中, 为了得到足够精确的有关气溶胶粒子谱分布的特征, 粒子的半径范围选为 $0.005 \sim 20 \mu\text{m}$ 。图 2 是将粒子总数 N 正规化到 $1 \text{ 个} / \text{cm}^3$ 时, 由 (1) 式计算得到的硫酸盐和烟尘粒子数浓度随半径的变化。因为烟尘粒子的众数半径要比硫酸盐粒子的小 ($r_{\text{su}} = 0.07 \mu\text{m}$, $r_{\text{so}} = 0.0118 \mu\text{m}$)^[14],

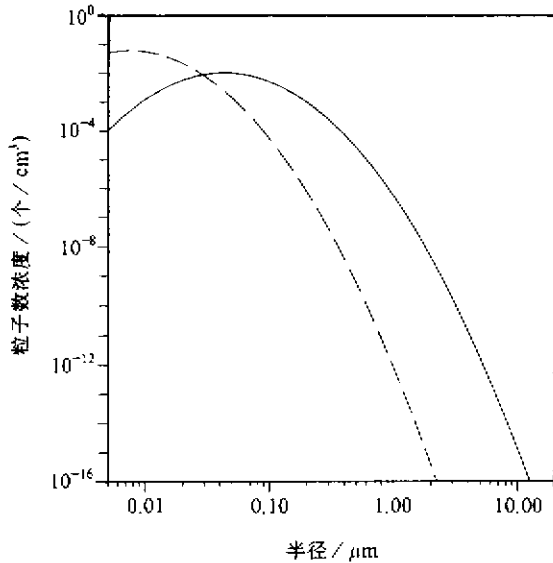


图 2 粒子数浓度正规化到 $1 \text{ 个} / \text{cm}^3$ 时硫酸盐 (实线) 和烟尘 (虚线) 粒子的尺度分布

由图可见, 烟尘粒子主要是以核模态的小粒子为主, 而硫酸盐粒子的尺度相对稍大。

4 光学厚度的全球分布

通过精确的 Mie 散射计算^[18], 硫酸盐和烟尘干粒子在 $0.55 \mu\text{m}$ 处的质量消光效率分别为 $3.12 \text{ m}^2 / \text{g}$ 和 $9.27 \text{ m}^2 / \text{g}$ 。这样, 利用上述浓度资料即可得到 $0.55 \mu\text{m}$ 处的光学厚度。

在 C97 资料中, 对自然硫酸盐来说 (图 3a), 其光学厚度主要分布在 $60^\circ\text{N} \sim 60^\circ\text{S}$ 之间的海洋地区, 最大值超过了 0.005; 遥远大陆清洁地区则基本在 0.003 以下。由于受人类活动的影响很大, 总硫酸盐 (图 3b) 则主要集中在全球中低纬大陆地区, 并出现了几个明显的区域中心, 如北半球的西欧、东亚和北美以及南半球的非洲和南美。全球最大中心位于西欧, 超过了 0.08, 东亚和北美次之, 南半球的极值中心相对较小, 但与北半球相比也并未出现量级上的差别。显然, 南半球大陆的人类活动不容忽视。烟尘气溶胶由于由生物质燃烧所产生, 因此, 其分布与硫酸盐有着明显的不同 (图 3c)。

虽然全球也出现了几个极值中心，但除东亚外，其余中心均分布在南半球大陆。全球最大值超过 0.08，清洁大陆及海洋地区则在 0.001 以下。

F97 资料与 C97 资料存在较大的差别（图 4）。对 F97 的自然硫酸盐来说（图 4a），尽管光学厚度也主要分布在全球的海洋上，但分布类型与 C97 不同，而且在数值

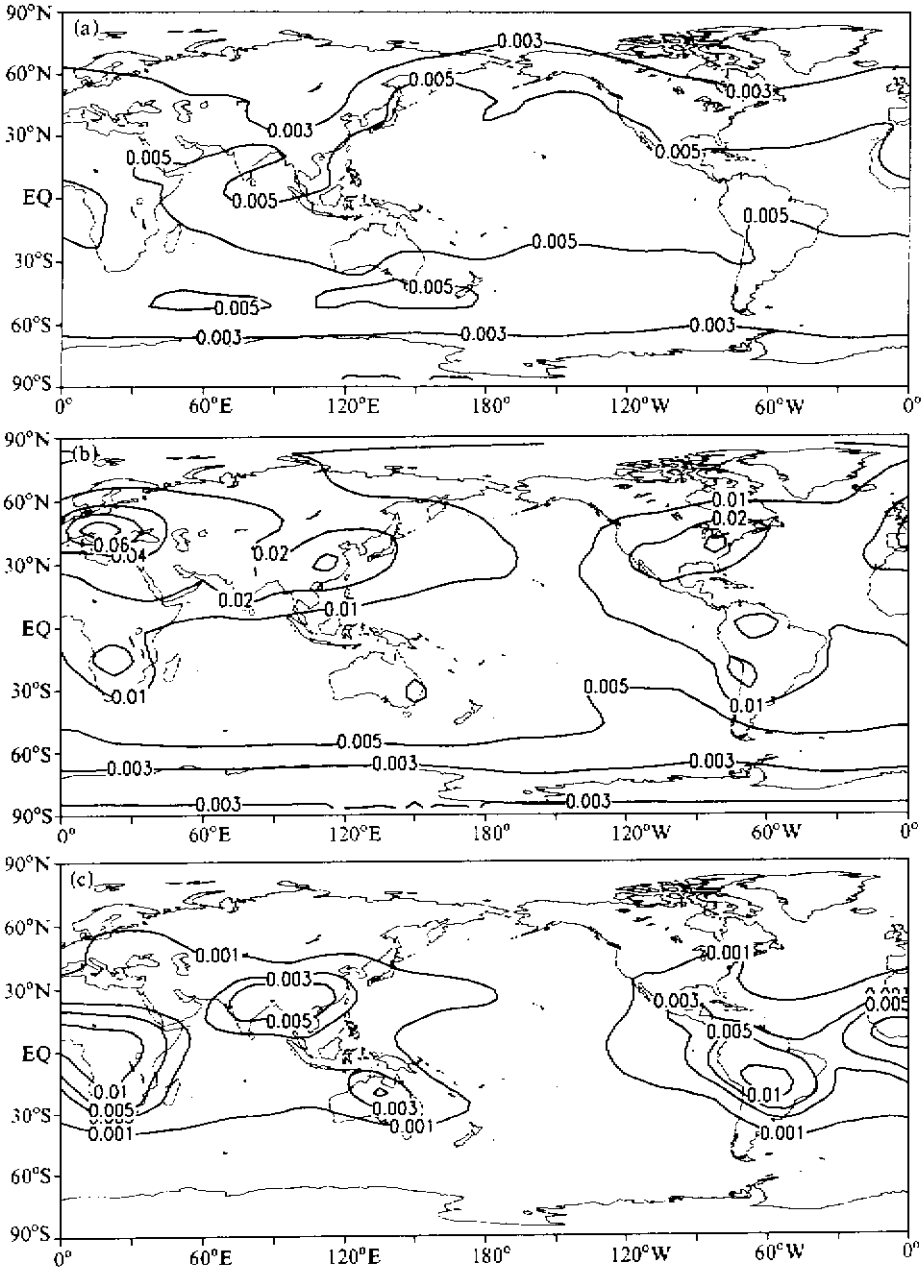


图3 C97 资料中年平均的 0.55 μm 处的光学厚度
(a) 自然硫酸盐; (b) 总硫酸盐; (c) 烟尘

上也存在一些差别, 最大值超过了 0.02。对总硫酸盐 (图 4b), 其地理分布类型与 C97 虽基本相同, 即主要集中在受人类活动影响较大的大陆地区, 但全球最大中心却位于东亚, 达 0.2。

从这两种资料光学厚度的逐月变化图 (图略) 中也可看出, 其变化趋势不尽相同。C97 资料为单峰结构, 峰值出现在夏季; F97 资料为双峰结构, 峰值分别出现在春末和夏末。为了更清楚地比较二者的差别, 表 1 列出它们各自光学厚度的全球年平均值。不难看出, F97 资料的光学厚度明显比 C97 相应的值要大, 相差 3~4 倍; F97 自然硫酸盐的光学厚度甚至还超过了 C97 总硫酸盐的光学厚度。可见, 气溶胶的浓度分布还存在很大的不确定性, 需要在观测和理论模拟方面同时进行深入而细致的研究。

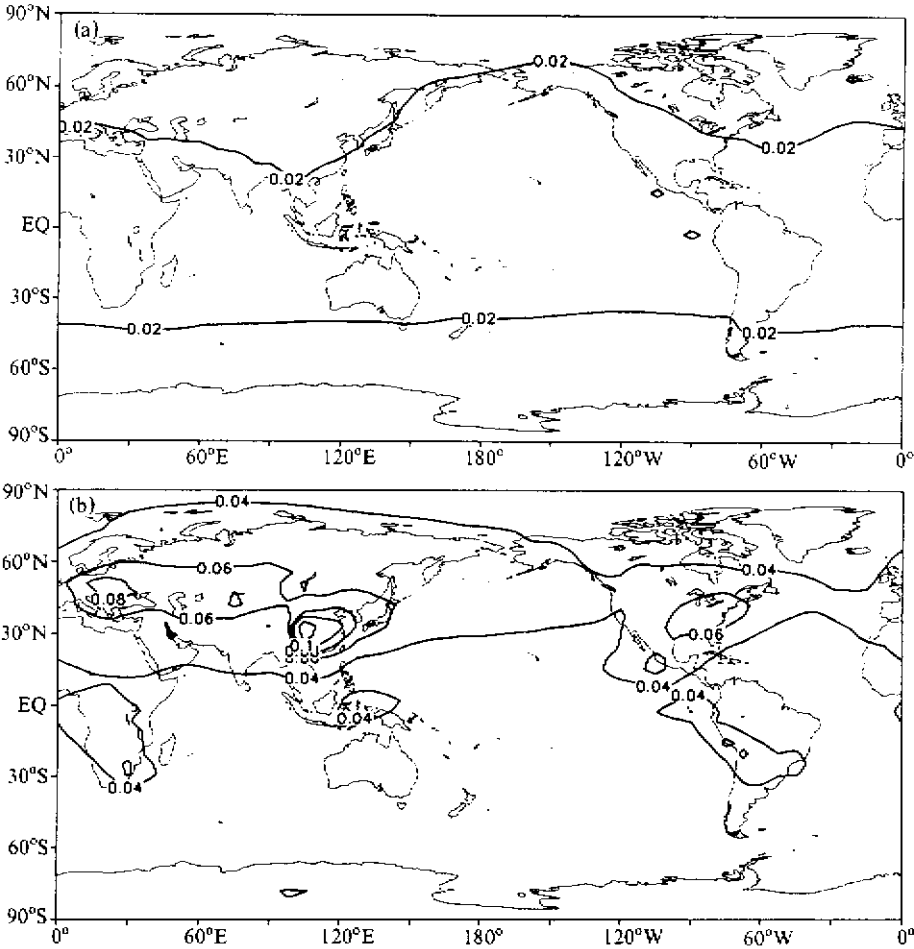


图 4 F97 资料中年平均的 0.55 μm 处的光学厚度
(a) 自然硫酸盐; (b) 总硫酸盐;

表 1 C97 和 F97 资料全球年平均的 0.55 μm 处的光学厚度

种类	C97			F97	
	自然硫酸盐	总硫酸盐	烟尘	自然硫酸盐	总硫酸盐
光学厚度	0.0048	0.0120	0.0019	0.0212	0.0378

5 全球人为硫酸盐和烟尘气溶胶资料库的建立

由于国内区域尺度 CTM 的发展也是在近几年才开始的, 全球尺度的 CTM 尚未见到。因此, 为了用 GCM 来进行气溶胶辐射强迫乃至气候效应方面的研究, 就必须要建立全球尺度上的气溶胶资料库。

气溶胶浓度的时空分布是研究气溶胶辐射强迫及气候效应的基础, 因此, 本文首先介绍了两个不同 CTM 模拟的硫酸盐和烟尘气溶胶浓度的结果。同时, 在已有的这两种气溶胶折射指数资料的基础上, 用 Mie 散射算法计算了它们的辐射特性随波长的变化, 并考虑了相对湿度的影响^[18]。综合这些浓度资料及辐射特性的计算结果, 已初步建立了一个全球人为硫酸盐和烟尘气溶胶资料库, 将气溶胶浓度和其气候效应有机地联系起来。

6 结果和讨论

本文收集了两种 CTM 模拟的硫酸盐和烟尘气溶胶时空分布资料。在此基础上, 给出了硫酸盐和烟尘在整个太阳谱段的折射指数, 将相关研究的 40 (或 60) 个间隔扩展至 72 个。从计算得到的 $0.55 \mu\text{m}$ 处光学厚度的全球分布可见, 两种资料均基本模拟出了全球几个主要的人类活动中心。特别需强调指出的是, 除北半球的几个中心外, 南半球人类活动的影响也不容忽视。结合上述资料, 建立了一个全球硫酸盐和烟尘气溶胶资料库。该库的建立不仅可为 CTM 模式的研究者提供参考以改进模式的模拟能力, 因为类似大气模式比较计划 (AMIP) 这样的 CTM 模式间的比较仍在进行之中, 而且可用于不同气候模式估算和模拟气溶胶的辐射强迫和气候效应。随着理论研究的不断深入及 CTM 的不断发展, 相信更为准确的模拟资料会越来越多, 这样的资料库在气候模式的完善及气候预测方面将会发挥重要的作用。

参 考 文 献

- 1 IPCC, Climate Change 1995, The Science of Climate Change, ed.: J. T. Houghton et al., New York: Cambridge University Press, 1996, 572pp.
- 2 Charlson, R. J., J. Langner, H. Rodhe, C. B. Leovy and S.G. Warren, Perturbation of the northern hemisphere radiative balance by backscattering from anthropogenic sulfate aerosols, *Tellus*, 1991, **43AB**, 152~163.
- 3 Kiehl, J. T. and B. P. Briegleb, The relative roles of sulfate aerosol and greenhouse gases in climate forcing, *Science*, 1993, **260**, 314.
- 4 Boucher, O. and T. L. Anderson, General circulation model assessment of the sensitivity of direct climate forcing by anthropogenic sulfate aerosols to aerosol size and chemistry, *J. Geophys. Res.*, 1995, **100**, 26117~26134.
- 5 Langner, J. and H. Rodhe, A global three-dimensional of tropospheric sulfur cycle, *J. Atmos. Chem.*, 1991, **13**, 22~263.
- 6 Chuang, C.C., J. E. Penner, K. E. Taylor and J. J. Walton, An assessment of the radiative effects of anthropogenic sulfate, *J. Geophys. Res.*, 1997, **102**, 3761~3778.
- 7 Feichter, J., U. Lohmann and I. Schult, The atmospheric sulfur cycle and its impact on the shortwave radiation, *Clim. Dyn.*, 1997, **13**, 235~246.

- 8 Penner, J. E., C.S. Atherton, J. Dignon, S. J. Ghan, J. J. Walton and S. Hameed, Tropospheric nitrogen: a three-dimensional study of sources, distributions, and deposition, *J. Geophys. Res.*, 1991, **96**, 959~990.
- 9 Penner, J. E., R. J. Charlson, J. M. Hales, N. S. Laulainen, R. Leifer, T. Novakov, J. Ogren, L. F. Radke, S. E. Schwartz and L. Travis, Quantifying and minimizing uncertainty of climate forcing by anthropogenic aerosols, *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, 1994, **75**(3), 376~400.
- 10 Penner, J. E., H. Eddleman and T. Novakov, Towards the development of a global inventory for black carbon emission, *Atmos. Environ.*, 1993, **27A**, 1277~1295.
- 11 Chin, M. and D. J. Jacob, Anthropogenic and natural contribution to tropospheric sulfate: a global model analysis, *J. Geophys. Res.*, 1996, **101**(D13), 18691~18699.
- 12 Feichter, J., E. Kjellstrom, H. Rodhe, F. Dentener, J. Lelieveld and G-J. Roelofs, Simulation of the tropospheric sulfur cycle in a global model, *Atmos. Environ.*, 1996, **30**, 1693~1707.
- 13 d'Almeida, G. A., P. Koepke and E. P. Schettle, Atmospheric Aerosols: Global climatology and radiation characteristics, A Deepak Publ., Hampton, VA, USA, 1991, pp.561.
- 14 Koepke, P., M. Hess, I. Schult and E. P. Schettle, Global Aerosol Data Set (GADS), Max-Planck Institute for Meteorology, Report No.243, 1997, pp.44.
- 15 尹宏, 大气辐射学基础, 北京: 气象出版社, 1993, pp.268.
- 16 World Climate Programme, WCP-112, A preliminary cloudless standard atmosphere for radiation computation, WMO/TD-No.24, WMO, Geneva, 1986.
- 17 World Climate Programme, WCP-55, Report of the experts meeting on aerosols and their climatic effects, Deepak A. and H.E. Gerber (eds.), WMO, Geneva, 1983, 107pp.
- 18 张立盛, 硫酸盐和烟尘气溶胶辐射强迫的模拟和估算, 中国科学院大气物理研究所博士论文, 1999, pp.140.

The Global Anthropogenic Sulfate and Soot Data and Distribution Characteristics of the Optical Depth

Zhang Lisheng and Shi Guangyu

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

Abstract The spatial and temporal distribution data of sulfate and soot output from two different Chemical Transport Models (CTM) are given firstly. In order to determine radiative properties of sulfate and soot aerosols accurately, the complex refractive index of the aerosols at 72 spectral intervals from 0.2~40 μm wavelength are also got and analyzed. The calculated results of the optical depth show that the geographical distribution and value are reasonable. Based on above data, a data set of the global anthropogenic sulfate and soot aerosols has been established fundamentally. The data set can be used, not only by the CTM researchers as a reference, but also by researchers who simulate the radiative forcing and climate effects of aerosols.

Key words: sulfate; soot; optical depth; data set