

尚晶晶, 廖宏, 符瑜, 等. 夏季硫酸盐和黑碳气溶胶对中国云特性的影响[J]. 热带气象学报, 2017, 33(4): 451-466.

文章编号: 1004-4965(2017)04-0451-16

夏季硫酸盐和黑碳气溶胶对中国云特性的影响

尚晶晶^{1,3}, 廖宏^{1,2}, 符瑜², 杨青⁴

1. 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 (LAPC), 北京 100029;
2. 中国科学院大气物理研究所气候变化研究中心 (CCRC), 北京 100029;
3. 中国科学院大学, 北京 100049; 4. 西北太平洋实验室, Richland, WA, USA)

摘要: 利用 WRF-Chem (Weather Research and Forecasting model coupled with Chemistry) 模式研究 2006 年 8 月 1 日—9 月 1 日中国区域硫酸盐和黑碳气溶胶对云特性的影响。模式验证利用了卫星和地面观测的气象要素、化学物质浓度、气溶胶光学特性和云微物理特性。模式性能评估表明该模式能较好地抓住气象要素(温度、降水、相对湿度和风速)的量级和空间分布特征。通过与地面观测和 MODIS 卫星数据对比发现, 尽管模式模拟还存在偏差, 但还是能较好地模拟出气溶胶物种的地表浓度、气溶胶光学厚度(AOD)、云光学厚度(COD)、云量(CLDF)、云顶云滴有效半径(CER)和云水路径(LWP)。通过两个敏感性试验(分别增加二氧化硫和黑碳排放量至控制试验排放的 3 倍)与控制试验的对比发现硫酸盐比黑碳更易成为云凝结核, 在中国东部云顶云滴数浓度和其它云特性参数对二氧化硫排放增加的响应均从北向南呈递增, 这与地面湿度分布有关。云滴有效半径对硫酸盐气溶胶的响应符合气溶胶第一间接效应的定义, 即硫酸盐气溶胶增多, 云滴数浓度增加, 云滴有效半径减少, 但是对黑碳气溶胶的响应在各区域不尽相同。还发现黑碳对云量的影响远大于硫酸盐, 主要原因是由于黑碳气溶胶直接辐射效应(对太阳光的吸收)导致的云的“燃烧”作用。

关键词: 硫酸盐气溶胶; 黑碳气溶胶; 气溶胶光学厚度; 云光学厚度; 云量; 云水路径; 云滴有效半径

中图分类号: X513

文献标识码: A

Doi: 10.16032/j.issn.1004-4965.2017.04.003

1 引言

气溶胶通过直接和间接的气候效应影响地气系统的能量收支平衡, 从而导致相应的气候变化。气溶胶直接气候效应是指其对太阳辐射的反射或吸收^[1-3]。气溶胶间接气候效应是其作为云凝结核影响云的微物理过程, 进而影响云滴数浓度和有效半径(气溶胶第一间接气候效应)^[4-6]、云量和云寿命等(气溶胶第二间接气候效应)^[7]。到目前为止, 关于气溶胶直接气候效应的研究已有很多^[8-12], 但气溶胶间接气候效应的研究还非常少。IPCC^[13]表明气溶胶间接气候效应的研究还具有很大的不

确定性, 依赖于气溶胶的尺度分布、化学组成、混合状态及气象条件等^[14-15]。

目前对气溶胶气候效应的研究主要集中在气溶胶的直接和间接辐射强迫的估算^[9, 16], 或气溶胶对温度^[17-18]、降水^[19-20]及东亚季风的影响^[21-22], 但对云特性(包括云凝结核(Cloud Condensation Nuclei, CCN)、云滴数浓度(Cloud Droplet Number Concentration, CDNC)、云水路径(Liquid Water Path, LWP)、云滴有效半径(Cloud Effect Radius, CER))的研究很少。Tang 等^[23]利用 MODIS 卫星数据研究 2003—2012 年气溶胶光学厚度(Aerosol Optical Depth, AOD)和暖云 CER 之间的关系, 研究发现在东海(123~135 °E, 23~32 °N)和中国南

收稿日期: 2015-12-23; 修订日期: 2017-02-26

资助项目: 国家重点基础研究发展计划(973 计划)(2014CB441200)资助

通讯作者: 廖宏, 女, 四川省人, 研究员, 博士, 主要从事大气成分变化与气候变化之间的相互作用。E-mail: hongliao@mail.iap.ac.cn

方(108~117 °E, 21~28 °N), 当 AOD<0.3 时 AOD 与 CER 呈负相关(相关系数为-0.79~-0.94), 当 AOD>0.3 时 AOD 与 CER 呈正相关(相关系数为 0.01~0.91); 还发现在中国中部(110~120 °E, 28~40 °N)和北方地区(121~130 °E, 40~47 °N)及黄海地区(120~127 °E, 33~40 °N), AOD 与 CER 呈正相关(相关系数为 0.67~0.95), 这种现象主要与风速和水汽有关。石睿等^[24]利用 MODIS 气溶胶和云资料研究 2001—2011 年夏季(6—8 月)气溶胶和云的相互作用, 发现在相对湿度较低(30%~50%)情况下, 气溶胶光学厚度与云滴有效半径呈负相关, 与云水路径呈正相关(相关系数最大为 0.92), 与云光学厚度呈正相关(相关系数最大为 0.77)。这些基于观测的研究显示了气溶胶-云相互作用的重要性, 但观测研究不能区分每一种化学物质对云特性的影响。对云微物理特性的观测研究除了卫星的观测外, 还有一些飞机观测的案例。目前飞机观测的案例主要是针对中国北方地区的层云进行的。邓育鹏等^[25]利用河北省 2009 年 17 次飞机观测资料分析此地区降水性层状云的云微物理特征, 发现云滴数浓度平均为 54.6 cm⁻³, 平均直径为 8.64 μm, 液态水含量为 0.13 g/m³。李军霞等^[26]对山西太原 2011 年 1—12 月的云凝结核进行观测发现, 冬季云凝结核数浓度最高, 春、秋季次之, 夏季最低, 这主要与冬季供暖和夏季降水有关。封秋娟等^[27]对山西省 2010 年 5 月 27 日的一次层云降水过程的飞机探测, 得到在 2300~4200 m 高度处的云滴数浓度较大, 最大粒子数浓度为 165.20 cm⁻³, 云粒子数浓度与粒子直径呈负相关, 在 2300 m 以上粒子直径变化小。总体而言, 云微物理特性的空间分布差异较大。

在气溶胶影响云特性的模式研究方面, 目前已有关于硫酸盐气溶胶影响云微物理特性的研究^[28-31]。Qian 等^[29]利用 RegCM 模式研究 1995 年 7 月硫酸盐间接效应的影响, 发现在中国的北方、中部、南方和西南四个区域内硫酸盐气溶胶使云量分别改变 +0.1%、+5.8%、+3.0%、-1.9%, 使云滴有效半径分别减少 1.91 μm、2.00 μm、1.85 μm、2.21 μm。Giorgi 等^[30]利用 RegCM 模式研究中国东部区域 1993 年 1 月 1 日—1997 年 12 月 31 日 5 年间硫酸盐气溶胶对云滴有效半径的影响表明, 硫酸盐气溶胶对云滴有效半径有减小作用, 在中国东

部(105~130 °E, 20~45 °N) 夏季平均减少 2.02 μm。Chen 等^[31]利用 RegCM3 区域气候模式研究 2008 年 12 月—2009 年 11 月硫酸盐的第一间接效应, 发现中国区域硫酸盐在冬(夏)季使云量减少(增加)约 4%~8%(8%~12%)。

目前已有关于中国地区黑碳气溶胶对温度^[17-18, 32]、大尺度环流^[19, 32-33]和喜马拉雅冰川^[34-38]影响的研究, 而对于黑碳气溶胶-云相互作用的研究较少。Bauer 等^[39]利用 GISS 全球气候模式研究 1750—2000 年黑碳气溶胶对云特性的影响, 发现在中国地区云滴数浓度增加超过 140 cm⁻³, 云量增加小于 2%。Koch 等^[40]利用 GISS GCM 模拟研究二十世纪气候变化, 发现中国地区 1970—1990 年的 30 年间黑碳气溶胶导致云量减少 0.5%~1.0%。Zhuang 等^[33]利用 RegCCMS 研究 2005 年 11 月 1 日—2006 年 12 月 1 日中国地区黑碳气溶胶对云的影响, 发现黑碳气溶胶的综合效应(直接+间接效应)为减少云量 0.48%、增加液态水含量(12.03%)。在中国区域黑碳气溶胶直接和间接气候效应呈显著的季节变化特点方面, Giorgi 等^[30]研究发现气溶胶的直接气候效应在冬季和秋季占主导地位, 这是由于秋冬季排放最强, 而在云量大量出现的春、夏季, 气溶胶间接气候效应占主导作用。Zhuang 等^[33]在中国区域的研究也发现这一现象。因此本文主要研究气溶胶对夏季云微物理特性的影响。

本研究用 WRF-Chem (Weather Research and Forecasting model coupled with Chemistry)模式模拟 2006 年 8 月中国区域气溶胶的时空分布特性, 并研究中国地区硫酸盐和黑碳气溶胶对云特性的影响。本文第 2 部分介绍模式的设置及使用数据的来源。模式验证将在第 3 部分给出, 包括对模拟的气溶胶浓度、气溶胶光学厚度和云特性进行对比验证。第 4 部分定量分析硫酸盐、黑碳气溶胶对云特性的影响。第 5 部分讨论气溶胶光学厚度与云顶云滴有效半径的关系。第 6 部分概述主要结论。

2 模式及研究方法

2.1 模式及试验设置

2.1.1 模式介绍

WRF-Chem 模式是一个被广泛应用的区域模

式, 它可以在线模拟气溶胶的直接和间接气候效应^[41-46]。本研究模拟采用 Lambert 投影, 中心经纬度为 116.46 °E, 39.92 °N, 模式水平分辨率为 60 km×60 km, 垂直方向分为 30 层。研究模拟区域如图 1 所示。

模式所使用的物理化学模块的参数化方案如表 1 所示。其中气溶胶模块使用 MOSIC (Model for Simulating Aerosol Interactions and Chemistry), 方案中粒径分为 8 个档: 0.039~0.078、0.078~0.156、0.156~0.312 5、0.312 5~0.625、0.625~1.25、1.25~2.50、2.50~5.00 和 5.00~10.00 μm^[47]。模式采用的初始气象场和边界条件来自全球再分析资料 NCEP-FNL (National Centers for Environmental Prediction-Final Analysis), 此资料的时间间

隔为 6 小时, 水平分辨率为 1 °×1 °。化学场的边界条件由 MOZART version4 提供^[48]。

污染源排放清单采用 INTEX-B 计划发布的 2006 亚洲区域污染物排放清单^[49], 此清单包括能源、工业、运输和民用四类排放源的七种污染物: 氮氧化物 (NO_x)、一氧化碳 (CO)、二氧化硫 (SO₂)、铵气 (NH₃)、黑碳 (BC)、有机碳 (OC) 和挥发性有机化合物 (VOCs)。该排放源的空间分辨率为 0.5 °×0.5 ° (http://www.cgrer.uiowa.edu/EMISSION_DATA_new/index_16.html)。2006 年气溶胶前体物和气溶胶在中国和中国东部的人为年排放总量见表 2。图 1 中也给出了 SO₂ 和 BC 排放的空间分布。

表 1 模式的主要物理和化学方案的设置

物理化学过程	参数化方案	参考文献
长波辐射方案(Long-wave radiation)	RRTM	Mlawer 等 ^[50]
短波辐射方案(Short-wave radiation)	Goddard	Chou 等 ^[51]
陆地模式(Land-surface model)	Noah	Chen 等 ^[52]
边界层方案(Boundary layer scheme)	YSU	Hong 等 ^[53]
积云参数(Cumulus parameterization)	New Grell scheme(G3)	Grell 等 ^[54]
云微物理过程(Cloud microphysics)	Morrison	Morrison 等 ^[55-56]
光化学方案(Photolysis scheme)	Fast-J	Wild 等 ^[57]
化学方案(Chemistry option)	CBM-Z	Zaveri 等 ^[58]
气溶胶方案(Aerosol option)	MOZAIC	Zaveri 等 ^[47]

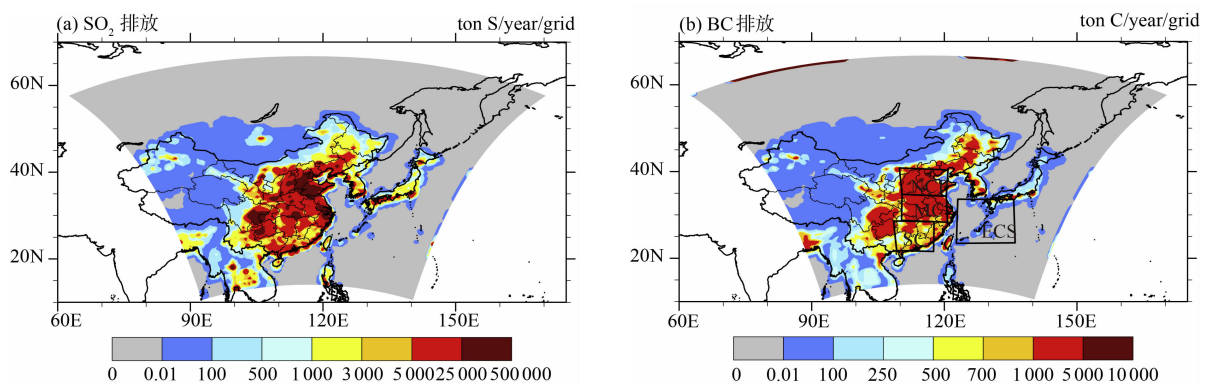


图 1 2006 年 SO₂(a, 单位: ton S/year/grid) 和 BC(b, 单位: ton C/year/grid) 排放的空间分布

灰色扇形区域为模式模拟研究区域。4 个黑框表示 4 个重点关注子区域: 华北平原(NCP, 110~120 °E, 34~40 °N)、中国中部(MC, 110~120 °E, 28~34 °N)、中国南方(SC, 108~115 °E, 21~28 °N)和中国东海(ECS, 127~130 °E, 23~33 °N)。

2.1.2 试验设计

为了分析中国硫酸盐和黑碳气溶胶对云微物理特性的影响, 利用区域气溶胶-气候耦合模式

WRF-Chem 进行以下几组数值试验。

(1) 控制试验 CTL: 采用 2006 年 8 月排放源, 模拟 2006 年 8 月 1 日—9 月 1 日中国区域气

溶胶浓度及云微物理特性。

(2) 3 倍二氧化硫试验 3SO₂: 仅将二氧化硫排放增加为 CTL 试验的 3 倍, 其余物质的人为排放与控制试验一致, 以评估硫酸盐直接和间接效应对云特性的影响。

表 2 2006 年气溶胶前体物和气溶胶的人为排放总量

污染物	中国(90~135 °E, 20~54 °N)	中国东部(110~120 °E, 20~45 °N)
NO _x (Tg N yr ⁻¹)	7.2	4.4
CO (Tg CO yr ⁻¹)	178.4	115.2
SO ₂ (Tg S yr ⁻¹)	16.3	10.4
NH ₃ (Tg N yr ⁻¹)	11.2	7.2
BC (Tg C yr ⁻¹)	1.9	1.2
OC (Tg C yr ⁻¹)	3.5	1.9

(3) 3 倍黑碳试验 3BC: 仅将黑碳排放增加为 CTL 试验的 3 倍, 其余物质的人为排放与控制试验一致, 以评估黑碳直接和间接效应对云特性的影响。

2.2 模式验证使用的观测数据

CMA_Data (<http://cdc.cma.gov.cn/>) 是中国气象局从 1951 年以来在中国地区 194 个国际交换站观测的地面日值数据集, 本研究采用其数据集中的日平均气温、相对湿度、风速和降水量。

地面观测的气溶胶浓度数据是 Zhang 等^[59]提供的中国地区 14 个观测站点 2006 年 8 月平均硫酸盐、硝酸盐、黑碳、有机碳浓度, 用于与模拟值进行对比分析。

MODIS (Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer) 仪器搭载在美国宇航局 Aqua 卫星上, 可获取陆地和海洋每日全球气溶胶光学厚度^[60]。本文利用 MODIS 的气溶胶光学厚度(AOD)、云光学厚度(COD)、云滴有效半径(CER)、云水路径(LWP)。由于 Aqua 卫星过境时间是每天北京时间 10:30, 所以当参数的模拟值与 MODIS 观测值对比时, 模式结果时间都为北京时间每日 10:30。

2.3 气溶胶-云敏感性因子

气溶胶-云相互作用可用敏感性因子来定量描述, 其定义是考虑敏感性试验和控制试验中某云特性 Y 变化和云凝结核数 (CCN) 变化的比值^[45, 61]:

$$\text{CLDSF}_{\text{CCN}}(Y) = \frac{\Delta \ln(Y)}{\Delta \ln(\text{CCN})} \quad (1)$$

其中云特性 Y 和 CCN 均是 975 hPa 高度值, “ Δ ” 是敏感性试验和控制试验某区域、某时间段平均值的差值。敏感性因子用于量化由硫酸盐或黑碳在不同区域造成的云特性变化的敏感性。例如在 3 倍黑碳试验 (3BC) 中, 如果 $Y=N_d$ (云滴数浓度), $\text{CLDSF}_{\text{CCN}}(N_d)$ 越大表明云滴数浓度对黑碳引起的 CCN 的变化响应越大。

2.4 统计分析方法

研究采用平均偏差 (Mean Bias, MB) 和归一化平均偏差 (Normalized Mean Bias, NMB) 评估模式的模拟能力^[62]:

$$\text{平均偏差 MB} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (M_i - O_i) \quad (2)$$

归一化平均偏差为:

$$\text{NMB} = \left[\sum_{i=1}^N (M_i - O_i) \right] / \sum_{i=1}^N O_i \quad (3)$$

式中 M_i 和 O_i 分别是模式模拟值与观测值, N 是样本个数, 样本数依赖于观测站点数及每个站点有观测数据的天数。

3 模式验证

3.1 模拟和观测的气象参数的对比验证

图 2 给出模拟的 2006 年 8 月平均地表温度、降雨、相对湿度, 并与中国气象局 (CMA_data) 观测数据进行对比。表 3 是上述 3 种气象要素在不同区域的月均值和标准偏差, 表 4 是中国区域内模式模拟性能的定量统计值。

从图 2a 可以看出, 月平均的最高温度出现在长江流域, 约为 27~30 °C, 而东部大部分地区的月平均温度为 24~27 °C。考虑整个中国区域有观测的站点, 地表温度观测和模拟的月均值分别为 23.7 °C 和 21.8 °C, MB 和 NMB 分别是 -1.9 °C 和 -8.4%, 说明观测和模拟的温度一致 (表 4)。对降水而言 (图 2b), 其空间分布的变化很大, 观测和模拟的月均值及其 NMB 分别是 3.6 mm/d、2.2 mm/d 和 -39.3% (表 4)。中国东部大部分地区 8 月的相对湿度为 40%~90%, 从南向北相对湿度递减, 模式能较好再现相对湿度的空间分布 (图 2c), 在中国区域的 MB 和 NMB 分别是 -8.9% 和 -13.0%。

表 3 不同区域 (NCP、MC 和 SC) 的观测和不同模拟试验 (CTL、3SO2 和 3BC) 获得的地表温度、降水、相对湿度及地表风速的月平均值和标准偏差

变量	观测/模拟	NCP		MC		SC	
		平均(mean)	标准偏差(std)	平均(mean)	标准偏差(std)	平均(mean)	标准偏差(std)
温度 / $^{\circ}\text{C}$	观测	25.6	1.4	28.9	1.1	28.4	0.7
	CTL	24.4	2.6	26.7	1.1	26.1	1.2
	3SO2	24.5	2.6	26.7	1.1	26.0	1.2
	3BC	24.7	2.6	26.9	1.0	26.2	1.1
降水 /(mm/d)	观测	5.9	2.9	4.0	1.6	7.0	4.1
	CTL	1.1	1.0	0.9	0.3	1.9	1.2
	3SO2	1.1	1.0	0.6	0.2	1.9	1.4
	3BC	1.0	0.7	0.8	0.4	2.2	1.9
相对湿度 /%	观测	78.1	4.8	73.5	4.7	76.4	4.7
	CTL	61.6	8.7	67.0	6.2	79.0	4.5
	3SO2	62.1	8.6	68.4	7.1	79.7	2.9
	3BC	59.6	8.6	67.4	7.0	81.1	5.0
地表风速 /(m/s)	观测	1.7	0.5	1.9	0.5	1.8	0.7
	CTL	5.0	0.4	4.8	0.3	4.2	0.4
	3SO2	5.2	0.5	4.7	0.4	4.0	0.4
	3BC	5.2	0.4	4.5	0.3	3.8	0.3

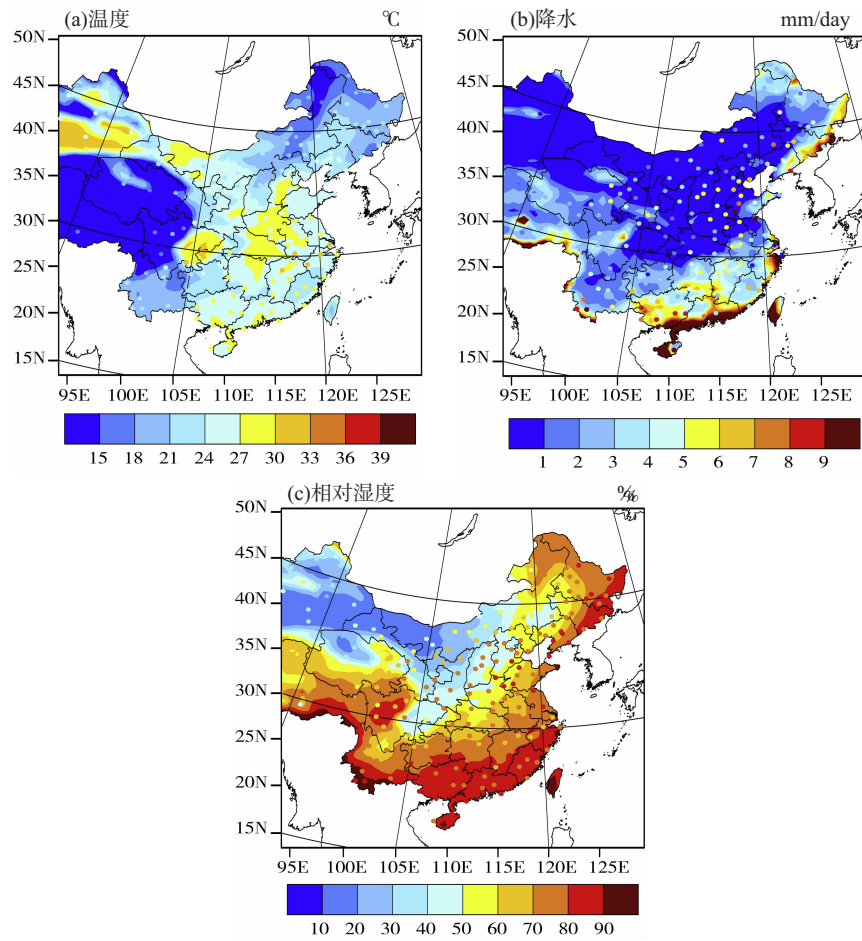


图 2 2006 年 8 月模拟和观测(重叠的彩色点)的平均地表温度(a,单位: $^{\circ}\text{C}$)、降水(b,单位:mm/d)和相对湿度(c,单位:%)

表4 控制试验(CTL)获得的气象要素、气溶胶浓度、气溶胶光学特性和云特性在中国区域(93~130 °E, 20~53 °N)内与观测值比较的统计量

变量	数据集	观测	模拟	平均偏差(MB)	归一化平均偏差(NMB)/%
温度 /°C	站点	23.7	21.8	-1.9	-8.1
降水 /(mm/d)	站点	3.6	2.2	-1.4	-39.3
相对湿度 /%	站点	67.9	59.0	-8.9	-13.0
地表风速 /(m/s)	FNL	1.1	2.3	1.2	107.4
硝酸盐浓度 /(μg/m ³)	站点	4.9	9.0	4.1	85.1
硫酸盐浓度 /(μg/m ³)	站点	16.2	8.4	-7.8	-48.5
黑碳浓度 /(μg/m ³)	站点	2.6	2.5	-0.1	-2.2
有机碳浓度 /(μg/m ³)	站点	9.3	4.5	-4.8	-54.0
气溶胶光学厚度	MODIS	0.29	0.27	-0.02	-8.5
云量 /%	MODIS	14.5	3.5	-11.0	-75.8
云光学厚度	MODIS	0.17	0.33	0.16	91.2
云水路径 /(g/m ²)	MODIS	127.3	77.6	-49.7	-39.1
云滴有效半径 /m	MODIS	14.1	11.8	-2.2	-16.2

图3是模拟2006年8月的地表和850 hPa平均风场与NCEP FNL再分析风场的空间分布。模式能很好地反映出东部沿海地区从海上吹向陆

地和华北地区风向从南向北的环流特征。模式模拟地面风速的MB和NMB分别为1.2 m/s和107.4%(表4)。以前研究也发现WRF-Chem模式倾向于高估风速的情况^[41, 63]。850 hPa高度的风场分布与地面类似,呈现南风范围变大,包含30 °N以南的部分地区(图3d),但850 hPa处的模拟风场与FNL再分析数据的对比较差。

3.2 观测和模拟的气溶胶浓度对比

图4给出模式模拟的中国区域地表气溶胶浓度2006年8月的月均值,包括细颗粒物(PM_{2.5})、硫酸盐(SO₄²⁻)、硝酸盐(NO₃⁻)、铵盐(NH₄⁺)、有机碳(OC)和黑碳(BC)。PM_{2.5}的高值区主要在中国东部地区(50~110 μg/m³),这主要是由东部地区快速发展的经济及其相关的工业活动的高排放导致的(图1);另一个高PM_{2.5}浓度的地区位于四川盆地(60~90 μg/m³),这是由于当地四面环山的地形不利于污染物扩散所致。硝酸盐和硫酸盐气溶胶是细颗粒物PM_{2.5}的最主要成分,硝酸盐的浓度

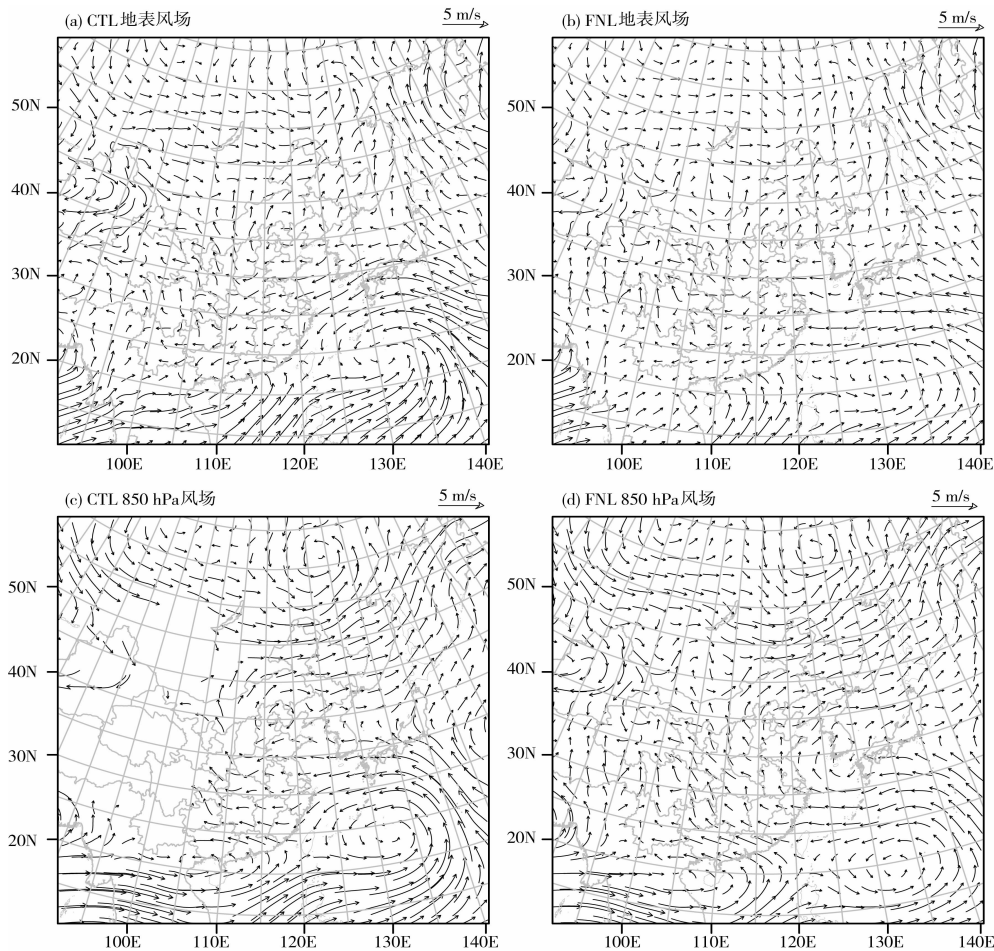


图3 CTL 试验模拟结果(a、c)、NCEP FNL 数据(b、d)的地面和850 hPa 高度月平均风场空间分布

(9~26 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) 大于硫酸盐 (5~15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)。这一现象可能是由中国地区氨气排放高估引起的^[64]。硫酸盐浓度的最高值出现在四川盆地, 与 Qian 等^[29]的结论一致。黑碳、铵盐和有机碳在 $\text{PM}_{2.5}$ 中所占比重较少, 东部铵盐和有机碳的最高浓度为 9~12 $\mu\text{g}/\text{m}^3$; 东部黑碳气溶胶的最高浓度为 5~9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 高值分布在山西、河北和河南省。

为验证模式模拟气溶胶浓度的能力, 本研究采用 Zhang 等^[59]提供的中国地区 14 个观测站点 2006 年 8 月平均硫酸盐、硝酸盐、黑碳、有机碳浓度观测值与模拟值进行对比分析(表 5)。根据观测值和模拟值的散点图对比(图 5)可以看出, 模式模拟结果存在高估硝酸盐浓度、低估硫酸盐、OC 和 BC 浓度的现象。在 14 个观测站得到的硝酸盐浓度平均值为 4.9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 模拟值为 9.0 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 模拟的 MB 和 NMB 分别是 4.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 和 85.1%(表 4)。而观测的硫酸盐浓度为 16.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 模拟值为 8.4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 其模拟的 MB 和 NMB 分别是 -7.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 和 -48.5%。对于黑碳气溶胶而言, 其观测的平均值为 2.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 模拟值为 2.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 其模拟的 MB 和 NMB 分别是 -0.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 和 -2.2%。有机碳的观测平均值是 9.3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 模拟值为 4.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 其模拟的 MB 和 NMB 分别是 -4.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 和 -54.0%。模式对硝酸盐气溶胶浓度的高估在 Gao 等^[16]论文中也有报道。对硫酸盐气溶胶低估这可能是由人为 SO_2 排放清单的低估造成的^[16, 65]。对 OC 气溶胶的低估可能是由 WRF-Chem 模式中的二次有机气溶胶的化学机制不完善造成的^[16, 66-67]。

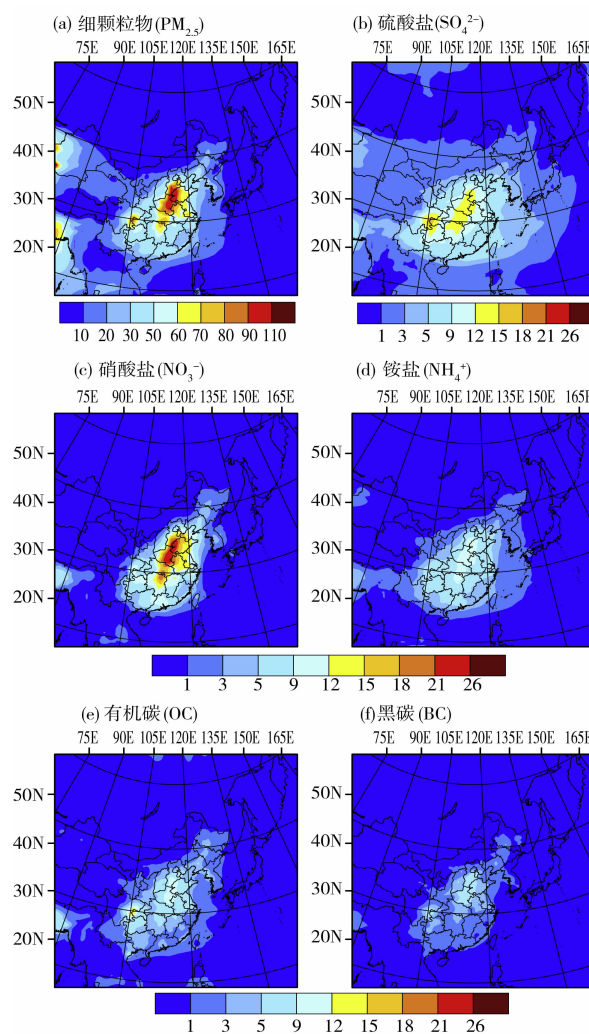


图 4 CTL 试验模拟的 2006 年 8 月地表气溶胶浓度的月均值 单位: $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 。a. 细颗粒物; b. 硫酸盐; c. 硝酸盐; d. 铵盐; e. 有机碳; g. 黑碳。

表 5 观测和模拟的中国地区 14 个观测站点 2006 年 8 月平均的硫酸盐、硝酸盐、有机碳和黑碳的地面浓度 单位: $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 。观测值来源于 Zhang 等^[59], 模拟值是 CTL 试验结果。

站点	硫酸盐		硫酸盐		有机碳		黑碳	
	观测	模拟	观测	模拟	观测	模拟	观测	模拟
太阳山	19.7	14.0	3.3	16.6	8.4	6.9	1.6	3.8
成都	25.2	12.4	7.8	6.8	21.9	8.4	6.3	3.8
大连	13.4	6.9	7.3	8.2	8.8	3.7	2.6	2.2
拉萨	1.3	1.7	1.1	0.1	11.3	0.3	2.0	0.1
南宁	12.3	7.6	2.0	6.8	9.4	3.7	2.3	1.5
番禺	11.3	8.2	4.0	12.0	9.3	3.3	3.3	1.4
西安	34.5	8.6	9.7	3.6	3.0	4.4	1.0	2.9
郑州	22.7	12.3	9.1	18.5	9.6	8.5	3.1	5.8
古城	17.8	4.9	7.3	7.4	9.7	3.2	4.2	2.1
金沙	14.3	12.3	2.0	14.2	7.3	6.2	1.4	3.5
临安	12.3	9.5	3.6	12.0	8.2	4.0	2.4	2.4
龙凤山	10.4	2.0	1.5	2.1	5.3	1.7	0.9	0.8

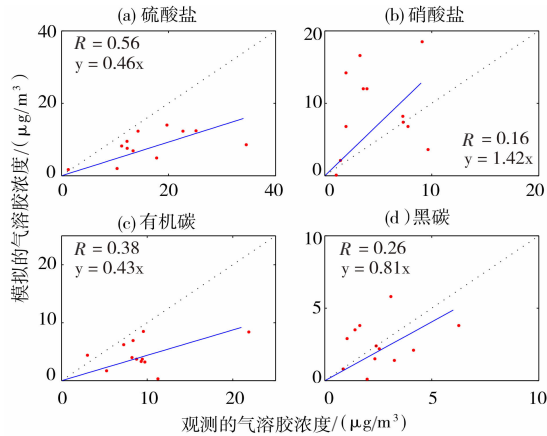


图5 模拟和观测的气溶胶(硫酸盐、硝酸盐、有机碳、黑碳)浓度(单位: $\mu\text{g}/\text{m}^3$)2006年8月月均值的散点分布
 点线是1:1线;实线是线性拟合线。 R 是模拟值与观测值的相关系数。

3.3 观测和模拟的气溶胶光学厚度的对比

由于在 WRF-Chem 中气溶胶光学特性分别在 300、400、600 和 999 nm 处有输出值,而 AERONET 和 MODIS 卫星观测 AOD 分别在 500 和 550 nm 处有输出值。因此,我们先利用 Angstrom 幂律^[68]将模拟的 AOD 值换算为与观测对应的 500 和 550 nm 的 AOD 值。图 6 给出从 CTL 试验和 MODIS 观测得到的 2006 年 8 月气溶胶 AOD。CTL 试验和 MODIS AOD 的值在空间分布上有较好的一致性,尤其是模式模拟出华北平原和四川盆地 AOD 的高值,但模式没能模拟出珠江三角洲地区 MODIS 观测到的高 AOD 值,这可能是由于模式排放清单的问题。根据表 4,在中国地区模式模拟的 AOD 的平均值为 0.27,MODIS 数据的平均值为 0.29,模拟值的 MB 和 NMB 分别是 -0.02 和 -8.5%。模式在华北和华中地区对 AOD 的模拟效果好于华南区域。

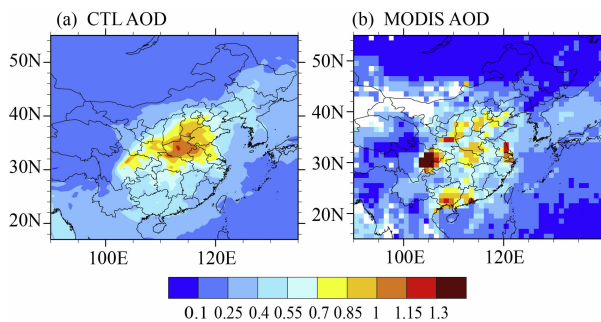


图6 CTL 试验模拟值(a)和 MODIS 观测值(b)的 2006 年 8 月平均 AOD 的空间分布

3.4 观测和模拟的云特性的对比

为了验证模式对云特性的模拟能力,选取 MODIS 卫星观测数据与模拟值进行对比分析。这里研究的云特性参数包括:云光学厚度(COD)、云量(CLDF)、云水路径(LWP)和云顶云滴有效半径(CER)(图 7)。在 WRF-Chem 模式中云光学厚度是由云滴有效半径和云水含量计算得到的,这使得模式模拟的 COD 有很大的不确定性。表 4 给出中国区域内模式模拟 COD 的月平均值为 0.33,MODIS 观测的平均值仅为 0.17,模式模拟值的 MB 和 NMB 分别为 0.16 和 91.2%。这些模拟误差比 Zhang 等^[69]报道的值略高。Zhang 等^[69]利用 WRF-CAM5 模式给出 2005 年中国区域模拟值与 MODIS 反演 COD 对比的 MB 和 NMB 分别是 -8.1 和 -48.4%。这可能由样本数不同引起的(本研究是月平均值,而 Zhang 等^[69]是年平均值),但整体上模式是低估 COD 的。

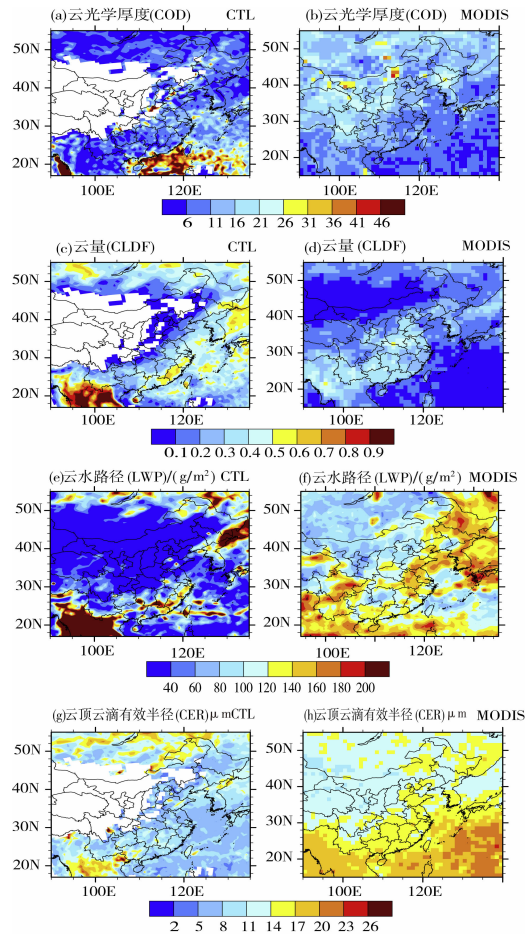


图7 2006 年 8 月平均的 CTL 试验模拟(左)和 MODIS 观测(右)的云光学厚度(COD)(a、b)、云量(CLDF)(c、d)、云水路径(LWP,单位: g/m^2)(e、f)和云顶云滴有效半径(CER,单位: μm)(g、h)的空间分布

低云云量出现的诊断标准为气压大于 700 hPa,且云水混合比大于 0.01 g/kg。观测和模拟中国区域平均的云水路径分别是 77.6 g/m² 和 127.3 g/m², 其模拟的 MB 和 NMB 分别是 -49.7 g/m² 和 -39.1%(表 4)。本模式模拟 LWP 的 NMB 比 Zhang 等^[69]报道的量级低。MODIS 给出暖云云顶的云滴有效半径, 本文定义暖云云顶的高度参考 Yang 等^[45]的定义方法, 即气压大于 700 hPa, 且云水混合比大于 0.01 g/kg 的云顶。模拟的中国区域平均的云顶云滴有效半径为 11.8 μm。与观测相

比, 模式模拟云滴有效半径的 MB 和 NMB 分别为 -2.2 μm 和 -16.2%。Zhang 等^[69]的模拟也低估云滴有效半径, 其解释主要原因可能是由模式模拟的分辨率太大和 MODIS 反演云滴有效半径误差所造成。表 6 给出前人利用 WRF-Chem 模拟的中国、美国地区的云参数(云量、云水路径和云光学厚度)与 MODIS 观测的对比结果。对比表 4 中本研究的结果与表 6 的结果可知, 本研究结果在前人研究结果的误差范围之内。

表 6 以前文献中给出的 WRF-Chem 模式和 MODIS 卫星云特性数据对比

云参数	区域	时间 / 年	模式参数方案	平均偏差 (MB)	归一化平均偏差 (NMB, %)	相关系数	参考文献
云光学厚度 (COD)	中国	2005	AR-G00	-8.1	-48.4	0.8	Zhang 等 ^[69]
		2005	FN Series	-6.6	-39.6	0.8	
		2010	AR-G00	-6.4	-40.1	0.1	
		2010	FN Series	-4.6	-29.3	0.8	
云量 (CLDF)/%	美国	2001	AR-G00	-11.9	-74.7		Zhang 等 ^[70]
		2005	AR-G00	-0.1	10.4	0.8	Zhang 等 ^[69]
		2005	FN Series	-0.1	-9.7	0.8	
		2010	AR-G00	-0.1	-8.5	0.8	
2010	FN Series	-0.1	-7.8	0.8			
云水含量 (LWP)/(g/m ²)	中国	2005	AR-G00	-61.9	-54.4	0.9	Zhang 等 ^[69]
		2005	FN Series	-49.6	-43.7	0.8	
		2010	AR-G00	-49.5	-47.3	0.9	
		2010	FN Series	-34.8	-33.3	0.8	
	美国	2001	AR-G00	-23.5	-67.7		Zhang 等 ^[70]

4 硫酸盐和黑碳对气溶胶微物理特性和云特性的影响

4.1 敏感性试验中地表气溶胶浓度对排放变化的响应

由于模式是气溶胶-气候双向耦合的, 理解敏感性试验中气溶胶浓度的变化有助于解释模拟的云特性变化。同时模式没有区分气溶胶的直接和间接效应, 因此以下所有的响应都代表气溶胶直接和间接效应的综合效应。3SO₂ 和 3BC 敏感性试验中的气溶胶各物种的空间分布特征与在 CTL 试验中的空间分布特征类似。从图 8 可看出, SO₂ 排放增加使 PM_{2.5} 浓度在华北、华中、华南和中国东海 4 个区域内分别增加 15.5 μg/m³ (45.2%)、

20.3 μg/m³ (49.1%)、12.5 μg/m³ (46.7%) 和 4.3 μg/m³ (74.7%)。3SO₂ 试验增加了硫酸铵的形成, 硫酸盐和铵盐浓度均增加, 使硝酸盐浓度减少。相对于 CTL 试验, 3SO₂ 试验中 SO₂ 增加 200%, 硫酸盐气溶胶在华北、华中和华南增加 148.0%~155.8%, 硫酸盐浓度的非线性响应是由于硫酸盐气溶胶涉及的核化、凝结、气态化学反应和湿清除等过程都是非线性的。3BC 试验使 PM_{2.5} 浓度在选定的 4 个研究区域内分别增加 6.8 μg/m³ (19.9%)、5.5 μg/m³ (13.3%)、2.1 μg/m³ (7.9%) 和 0.4 μg/m³ (7.6%)(图 8)。黑碳排放增加对其它物种的影响较小(1%~2%), 但黑碳气溶胶浓度的响应基本是线性的, 黑碳在选定的 4 个研究区域内的增加分别为 7.1 μg/m³ (191.9%)、6.3 μg/m³ (190.1%)、2.9 μg/m³ (187.1%) 和 0.5 μg/m³ (166.7%)。

4.2 硫酸盐和黑碳气溶胶对气溶胶的数浓度、云凝结核数浓度和 AOD 的影响

图 9 为模拟 975 hPa 高度的积聚模态气溶胶数浓度和云凝结核数浓度（在过饱和度 $s=0.1\%$ 处）、气溶胶光学厚度对增强的 SO_2 排放和黑碳排放的响应。本研究中的积聚模态是指干半径为 $0.078\sim 2.500\ \mu\text{m}$ 的颗粒物。相对于 CTL 试验,在选定的 4 个研究区域内,3SO2 试验中积聚模态气溶胶数浓度分别增加 $798\ \text{cm}^{-3}$ (17.4%)、 $790\ \text{cm}^{-3}$ (16.5%)、 $391\ \text{cm}^{-3}$ (14.0%)和 $305\ \text{cm}^{-3}$ (30.1%) (图 9a),云凝结核数浓度分别增加 $398\ \text{cm}^{-3}$ (28.4%)、 $462\ \text{cm}^{-3}$ (28.6%)、 $297\ \text{cm}^{-3}$ (29.0%) 和 $122\ \text{cm}^{-3}$ (35.5%) (图 9b)。在华北、华中、华南和中国东海 4 个区域内,3BC 试验积聚模态气溶胶数浓度分别增加 $532\ \text{cm}^{-3}$ (11.6%)、 $476\ \text{cm}^{-3}$ (9.9%)、 $209\ \text{cm}^{-3}$ (7.5%)和 $34\ \text{cm}^{-3}$ (3.4%) (图 9a),云凝结核数浓度分别减少 $25\ \text{cm}^{-3}$ (1.8%)、 $44\ \text{cm}^{-3}$ (2.7%)、 $25\ \text{cm}^{-3}$ (2.4%)和 $13\ \text{cm}^{-3}$ (12.9%) (图 9b)。在对 CCN 数浓度的影响方面,黑碳的影响比硫酸盐的影响小很多,这主要是因为核化速率随着硫酸的增多而增加^[71],而高 BC 混合比例的气溶胶颗粒对 CCN 影响非常小^[72]。在选定的 4 个研究区域内,3SO2 试验中 $\Delta\text{Nccn}/\Delta\text{Nacc}$ 在陆地上为 0.25、在海洋上为 0.3,在 3BC 试验中 $\Delta\text{Nccn}/\Delta\text{Nacc}$ 在陆地上为 $-0.02\sim -0.03$ 、在海洋上为 -0.04 ,体现了硫酸盐气溶胶具有较高的吸湿性,比 BC 更易成为云凝结核。

气溶胶光学厚度 (AOD) 对不同排放的响应见图 9c。相对于 CTL 试验,在选定的 4 个研究区域内,3SO2 试验中气溶胶光学厚度分别增加 0.15 (48.4%)、0.23 (53.5%)、0.30 (65.2%) 和 0.17 (89.5%)。对硫酸盐而言 AOD 的绝对变化是华南 > 华中 > 中国东海 > 华北,这是由于 AOD 对硫酸盐的响应跟硫酸盐地表浓度和相对湿度有关。3BC 试验在 4 个区域内对 AOD 的影响比 3SO2 对 AOD 的影响弱。

4.3 硫酸盐和黑碳气溶胶对云顶云滴数浓度、云顶云滴有效半径的影响

图 10a 显示在选定的 4 个研究区域中增加的硫酸盐可导致云顶云滴数浓度分别增加 $19.6\ \text{cm}^{-3}$ (4.4%)、 $29.8\ \text{cm}^{-3}$ (7.1%)、 $43.5\ \text{cm}^{-3}$ (16.3%)和 $39.3\ \text{cm}^{-3}$ (13.5%),且硫酸盐引起的云顶云滴数浓度的

敏感性参数 ($\text{CLDSF}_{\text{CCN}}(\text{N}_d)$) 的值分别是 0.17、0.28、0.60 和 0.42。由于硫酸盐气溶胶的吸湿性,易于形成云滴、增加云滴数浓度。在陆地上,云顶云滴数浓度和敏感性参数对 SO_2 排放增加的响应均从北向南呈递增,这跟地面湿度分布有关。

相对于 CTL 试验,3BC 试验中增加的黑碳排放对华北和华中区域中的云顶云滴数浓度的贡献分别是 $-17.8\ \text{cm}^{-3}$ (-4.0%)和 $-7.0\ \text{cm}^{-3}$ (-1.7%),在华南和中国东海区域内黑碳对云顶云滴数浓度的影响分别仅有 0.15%和 0.10%,并且云顶云滴数浓度的敏感性值 ($\text{CLDSF}_{\text{CCN}}(\text{N}_d)$) 分别是 2.36、0.61、 -0.15 和 -0.0 。Dusek 等^[73]指出新排放的 BC 颗粒物的粒径尺度较小,且具有厌水性,所以要求很高的临界过饱和度,对 CCN 激活的贡献也较小。对于排放后老化的黑碳气溶胶由于能与可溶性相融合,会降低临界过饱和度,黑碳气溶胶占总气溶胶的质量比重越高,临界过饱和度的值越高^[73]。所以本研究中当黑碳气溶胶排放增加时,不仅不利于 CCN 的形成,还抑制 CCN 激活,尤其在华北和华中地区。

云滴有效半径与云水含量和云滴数浓度有关。在选定的 4 个研究区域中增加的硫酸盐导致的云顶云滴有效半径分别变化 $-0.16\ \mu\text{m}$ (-2.2%)、 $-0.27\ \mu\text{m}$ (-3.7%)、 $-0.43\ \mu\text{m}$ (-5.2%)和 $-0.23\ \mu\text{m}$ (-3.2%) (图 10b),且云顶云滴有效半径的敏感性值 ($\text{CLDSF}_{\text{CCN}}(\text{CER})$) 分别是 -0.09 、 -0.15 、 -0.21 和 -0.11 。硫酸盐气溶胶对云滴有效半径的影响符合气溶胶第一间接效应的定义,即硫酸盐气溶胶增多,云滴数浓度增加,云滴有效半径减少。

黑碳气溶胶在华北区域增加云顶云滴有效半径 $0.02\ \mu\text{m}$ (0.28%),在华中、华南和中国东海区域内分别减少云滴有效半径 $0.04\ \mu\text{m}$ (0.55%)、 $0.11\ \mu\text{m}$ (1.34%)和 $0.05\ \mu\text{m}$ (-0.7%)。相应云顶云滴有效半径的敏感性值 ($\text{CLDSF}_{\text{CCN}}(\text{CER})$) 分别是 -0.16 、0.2、0.55 和 0.18,显示在相对干净的华南区域黑碳气溶胶对云顶云滴有效半径的影响比污染较重的区域 (华北、华中) 的大,而且黑碳气溶胶引起的云滴有效半径对 CCN 的敏感程度大于硫酸盐气溶胶引起的敏感度。Yang 等^[45]在研究东南太平洋海边气溶胶在污染区和干净区对云微物理特性的影响也发现,在干净区域云特性的敏感性比污染区的大,与本文结论一致。

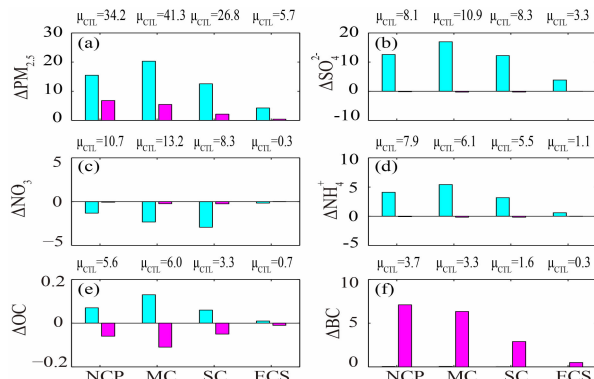


图 8 各种气溶胶的地表浓度对增强的 SO₂ 排放(3SO₂, 绿色)和黑碳排放(3BC, 紫色)的响应 单位: μg/m³。
 Δ 表示 3SO₂ 或 3BC 试验与控制试验之差。
 a-f 分别是 PM_{2.5}、硫酸盐、硝酸盐、铵盐、有机碳和黑碳的响应。
 图上方的 μ_{CTL} 是 CTL 试验中各种气溶胶浓度在此区域的平均值。

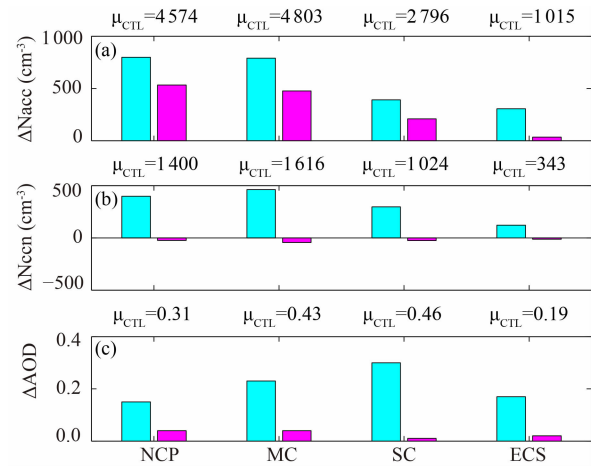


图 9 975 hPa 处的积聚模态气溶胶数浓度(N_{acc}, 单位: cm⁻³) (a) 和过饱和度为 0.1% 的云凝结核数浓度(N_{ccn}, 单位: cm⁻³) (b) 及气溶胶光学厚度(AOD)对增强的 SO₂ 排放(3SO₂, 绿色)和黑碳排放(3BC, 紫色)的响应(c)

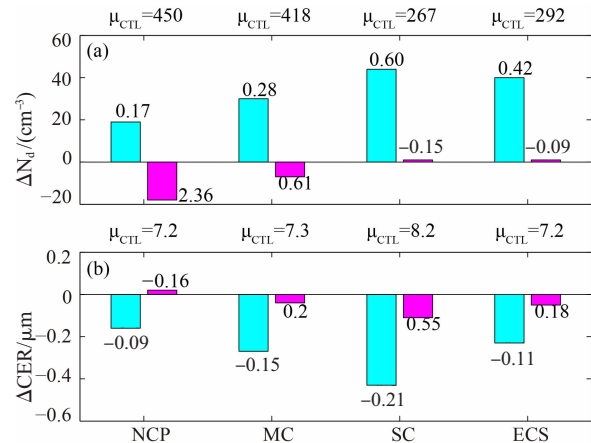


图 10 云顶云滴的数浓度(N_d, 单位: cm⁻³) (a) 和有效半径(CER, 单位: μm) (b) 对增强的 SO₂ 排放(3SO₂, 绿色)和黑碳排放(3BC, 紫色)的响应
 μ_{CTL} 是指 N_d(或 CER) 在 CTL 试验中选定的 4 个研究区域(NCP、MC、SC 和 ECS) 的平均值。标在柱上的数值是气溶胶-云敏感因子, ΔY/(Yln(N_{ccn})), 其中 Y 是指云特性(N_d 或 CER)。

4.4 硫酸盐和黑碳气溶胶对云水路径、云光学厚度和云量的影响

图 11 给出在不同区域云水路径(LWP)、云光学厚度(COD)和云量(CLDF)对增强的 SO₂ 排放和黑碳排放的响应。在选定的 4 个研究区域内硫酸盐气溶胶使 LWP 减少 0.4 g/m²(2.2%)、2.4 g/m²(5.3%)、0.06 g/m²(0.07%) 和 0.4 g/m²(0.8%), 并且 LWP 的敏感性值(CLDSF_{CCN}(LWP)) 分别是 -0.09、-0.21、0 和 -0.03。因此硫酸盐气溶胶在各个区域内对 LWP 的影响都非常小。

云的宏观特性对黑碳气溶胶的响应不同。黑碳气溶胶在华北、华中区域内使 LWP 分别减少 0.5 g/m²(2.8%) 和 1.0 g/m²(2.2%), 在华南和中国东海区域内使 LWP 分别增加 5.5 g/m²(6.5%) 和 2.5 g/m²(4.5%), 并且 LWP 的敏感性值(CLDSF_{CCN}(LWP)) 分别是 1.63、0.87、-2.53 和 -1.13。黑碳气溶胶导致这些区域 LWP 的增加(减少)对应着其导致的降雨的增加(减少)(图略)。对比图 7e 和图 2b 也可以看出, LWP 的空间分布与降水的空间分布相似。

模式中云光学厚度(COD)是根据云滴有效半径和云水含量得到的(COD ∝ 云水含量 / 云滴有效半径)。对比图 11a、11b 中的 μ_{CTL} 可看出, 在华北、华中和华南区域内 LWP 和 COD 的区域平均值都是从北向南依次增加, 因此 COD 的变化主要与 LWP 的变化相关。Schwartz 等^[74] 利用卫星资料观测到云光学厚度与云水路径有很强的相关关系。硫酸盐气溶胶在华北区域内对 COD 几乎没有影响, 而在其他 3 个区域内使 COD 分别减少 1.1 (2.8%)、0.48 (0.45%) 和 0.73 (0.46%)。在华北、华中和华南区域内黑碳导致 COD 分别增加 0.19 (1.34%)、0.39 (0.97%) 和 0.75 (0.7%), 且从南到北黑碳气溶胶使云顶云滴有效半径依次减少(图 10b)。云滴越小对太阳辐射的散射越强, 因此黑碳气溶胶使 COD 在这 3 个区域内依次增加。由此可见硫酸盐和黑碳气溶胶对 COD 的影响都非常小, 变化范围为 0.3%~3.0%。

图 11c 给出云量(CLDF)对硫酸盐、黑碳气溶胶的响应。从云量的绝对变化以及云量的敏感性值(CLDSF_{CCN}(CLDF)) 来看, 黑碳的影响都比硫酸盐的影响大很多, 这主要是由于黑碳气溶胶的直

接辐射效应(对太阳光的吸收)导致的云的“燃烧”作用。

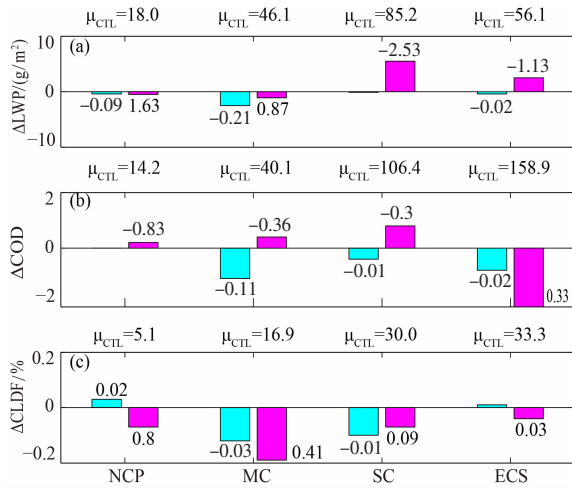


图 11 云宏观物理特性的云水路径(LWP,单位:g/m³)(a)、云光学厚度(COD)(b)和云量(CLDF,单位:%)(c)对增强的 SO₂ 排放(3SO₂,绿色)和黑碳排放(3BC,紫色)的响应

5 气溶胶光学厚度与云顶云滴有效半径的关系

为了更加准确地看到散射型和吸收性气溶胶对云滴有效半径的影响,图 12 给出选定的 4 个研究区域内暖云云顶云滴有效半径随气溶胶 AOD 的变化,图 12 中数据是对各区域逐格点每小时计算的云滴有效半径和气溶胶 AOD 的统计。在华北和华中区域,当模拟的气溶胶 AOD 增加时,云滴有效半径减少;在华南地区,当光学厚度较小时(约小于 0.5)云滴有效半径随 AOD 增加而增加,而当光学厚度较大时(约大于 0.5)云滴有效半径随 AOD 增加而减少。气溶胶 AOD 受化学组分和相对湿度的影响,在气溶胶光学厚度增加时,数浓度不一定随之线性增加;另外云滴有效半径所受的影响较复杂,水汽、云底高度等差异较大,故气溶胶 AOD 与云滴有效半径的相关性在不同区域差异较大,这与石睿等^[24]的结论一致。通过图 12 还可以看出,相比于 3BC 试验(蓝色点),3SO₂ 试验中硫酸盐气溶胶(绿色点)使 AOD 增大程度较大,这与图 9c 中 AOD 区域平均值的变化一致。

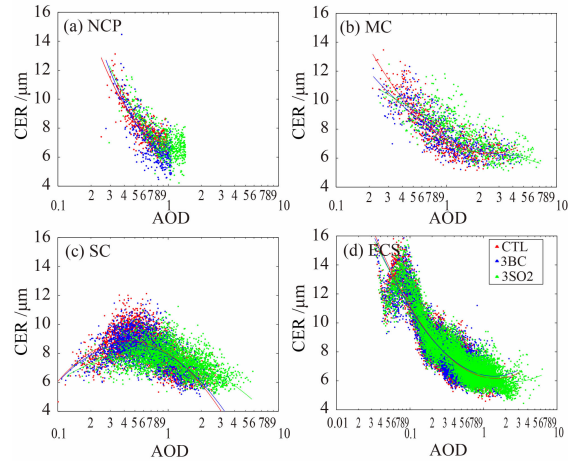


图 12 CTL,3SO₂,3BC 试验中获得的 4 个区域气溶胶光学厚度(AOD)与云滴有效半径(CER,单位:μm)的关系 a. NCP;b.MC;c. SC;d. ECS(横坐标与其它图的坐标不同)。

6 讨论与总结

本文应用 WRF-Chem (Weather Research and Forecasting model coupled with Chemistry)模式研究 2006 年 8 月 1 日—9 月 1 日中国区域散射性气溶胶-硫酸盐和吸收性气溶胶-黑碳对云微观和宏观物理特性的影响。研究设计了三个模拟试验:控制试验 CTL (采用 2006 年排放清单和 2006 年 8 月 1 日—9 月 1 日的气象场)、SO₂ 排放 3 倍试验(3SO₂)和黑碳排放 3 倍试验(3BC)。

根据 CTL 试验模拟的气象参数与地面观测站点的温度、降水、湿度和风场数据的对比发现,模式能非常好地再现温度的空间分布,也能反映出相对湿度从南向北递减的分布特征,但模拟的风速值大于观测值,而且 850 hPa 处风场的模拟值偏差较大。对比 CTL 模拟的气溶胶浓度值与地面观测值发现,模式高估硝酸盐浓度,同时低估硫酸盐、有机碳和黑碳浓度,与前人用 WRF-Chem 模拟中国气溶胶的偏差一致。对硫酸盐气溶胶低估可能是由人为 SO₂ 排放清单的低估造成的,而对有机碳气溶胶的低估可能与模式中二次有机气溶胶的化学机制不完善有关。研究还选取 MODIS 卫星观测的云特性参数数据与模拟值进行对比分析,结果表明模式高估云量,低估云光学厚度、云水路径和云滴有效半径,这些模拟误差与前人研

究结果一致,且在其误差范围之内。

研究表明 3SO₂ 试验导致的 PM_{2.5} 的浓度改变是华中 > 华北 > 华南 > 中国东海。3BC 试验导致的 PM_{2.5} 的浓度改变是华北 > 华中 > 华南 > 中国东海。这主要与 SO₂(BC)在这些区域的排放量有关。相应硫酸盐和黑碳对积聚模态气溶胶数浓度在华北和华中远高于华南和中国东海。由于硫酸盐气溶胶是吸湿性物质,受相对湿度影响,因此其对 AOD、云滴数浓度和云滴有效半径绝对值的影响都在华南最大。黑碳气溶胶对 CCN 产生抑制作用,相较于陆地上 BC 对 CCN 的作用,海洋(ECS)上空的 BC 尽管含量不高,仍会对海上 CCN 产生很强的抑制作用。

对比 3SO₂ 和 3BC 试验研究了硫酸盐和黑碳气溶胶对云特性的不同影响,主要获得如下结果。

(1) 在对 CCN 数浓度的影响方面,黑碳的影响比硫酸盐的影响小很多, $\Delta N_{ccn}/\Delta N_{acc}$ 比值表

明硫酸盐气溶胶具有较高的吸湿性,比 BC 更易成为云凝结核。

(2) 在陆地上,云顶云滴数浓度和敏感性参数对 SO₂ 排放增加的响应均从北向南呈递增,这跟地面湿度分布有关。而云顶云滴数浓度和其它云特性参数对黑碳排放增加的响应均从北向南呈递减,这说明黑碳气溶胶不利于 CCN 的形成,还会抑制 CCN 激活。

(3) 云滴有效半径对硫酸盐气溶胶的响应符合气溶胶第一间接效应的定义,即硫酸盐气溶胶增多,云滴数浓度增加,云滴有效半径减少,但是对黑碳气溶胶的响应不符合。根据敏感性因子看出,黑碳气溶胶引起的云滴有效半径对 CCN 的敏感程度大于硫酸盐气溶胶引起的敏感度。

(4) 对于云量而言,黑碳气溶胶的影响比硫酸盐的影响大很多,主要原因是黑碳气溶胶直接辐射效应(对太阳光的吸收)导致的云的“燃烧”作用。

参 考 文 献:

- [1] CHARLSON R J, SCHWARTZ S E, HALES J M, et al. Climate forcing by anthropogenic aerosols[J]. *Sci*, 1992, 255(5 043): 423-430.
- [2] HAYWOOD J, BOUCHER O. Estimates of the direct and indirect radiative forcing due to tropospheric aerosols: A review[J]. *Rev Geophys*, 2000, 38(4): 513-543.
- [3] MYHRE G, BERGLEN T F, HOYLE C R, et al. Modelled radiative forcing of the direct aerosol effect with multi-observation evaluation [J]. *Atmos Chem Phys*, 2009, 9(4): 1 365-1 392.
- [4] TWOMEY S. Pollution and the planetary albedo[J]. *Atmos Environ*, 2007, 8(12): 1 251-1 256.
- [5] TWOMEY S. Aerosols, clouds and radiation[J]. *Atmos Environ Part a-General Top*, 1991, 25(11): 2 435-2 442.
- [6] JONES A, ROBERTS D L, SLINGO A. A climate model study of indirect radiative forcing by anthropogenic sulphate aerosols[J]. *Nature*, 1994, 370(6 489): 450-453.
- [7] ALBRECHT B A. Aerosols, cloud microphysics, and fractional cloudiness[J]. *Sci*, 1989, 245(4 923): 1 227-1 230.
- [8] TIAN H, MA J, LI W J, et al. Simulation of forcing of sulfate aerosol on direct radiation and its climate effect over middle and eastern China[J]. *J Appl Meteorol Sci*, 2005, 16(1): 322-333.
- [9] WU J, FU C, XU Y, XU Y et al. simulation of direct effects of black carbon aerosol on temperature and hydrological cycle in asia by a regional climate model[J]. *Meteorol Atmos Phy*, 2008, 100(1): 179-193.
- [10] ZHUANG B L, JIANG F, WANG T J, et al. Investigation on the direct radiative effect of fossil fuel black-carbon aerosol over China[J]. *Theor Appl Climatol*, 2010, 104(3): 301-312.
- [11] HAN Z W, XIONG Z, LI J W. Direct climatic effect of aerosols and interdecadal variations over East Asia investigated by a regional climate/chemistry model[J]. *Atmos Oceanic Sci Lett*, 2011, 4(6): 299-303.
- [12] XIA X G. A critical assessment of direct radiative effects of different aerosol types on surface global radiation and its components[J]. *J Quantit SpectroscRad Transf*, 2014, 149(1): 72-80.
- [13] IPCC. Climate change 2013: The physical science basis[M]. Cambridge: Cambridge Univ Press, 2013.
- [14] LOHMANN U, FEICHTER J. Global indirect aerosol effects: A review[J]. *Atmos Chem Phy*, 2005, 5(3): 715-737.
- [15] MAUGER G S, NORRIS J R. Meteorological bias in satellite estimates of aerosol-cloud relationships[J]. *Geophys Res Lett*, 2007, 34(16): L07815.
- [16] GAO Y, ZHAO C, LIU X H, et al. WRF-Chem simulations of aerosols and anthropogenic aerosol radiative forcing in East Asia[J]. *Atmos Environ*, 2014, 92(1): 250-266.

- [17] CHANG W Y, LIAO H, WANG H J. Climate responses to direct radiative forcing of anthropogenic aerosols, tropospheric ozone, and long-lived greenhouse gases in eastern China over 1951—2000[J]. *Adv Atmos Sci*, 2009, 26(4): 748-762.
- [18] GUO L, HIGHWOOD E J, SHAFFREY L C, et al. The effect of regional changes in anthropogenic aerosols on rainfall of the East Asian Summer Monsoon[J]. *Atmos Chem Phys*, 2013, 13(3): 1 521-1 534.
- [19] MENON S, HANSEN J, NAZARENKO L, et al. Climate effects of black carbon aerosols in China and India[J]. *Sci*, 2002, 297(5 590): 2 250-2 253.
- [20] WU L T, SU H, JIANG H. Regional simulation of aerosol impacts on precipitation during the East Asian summer monsoon[J]. *J Geophys Res-Atmos*, 2013, 118(12): 6 454-6 467.
- [21] 沈新勇, 黄文彦, 陈宏波. 气溶胶对东亚夏季风指数和爆发的影响及其机理分析[J]. *热带气象学报*, 2015, 31(6): 733-743.
- [22] 邓洁淳, 徐海明, 马红云, 等. 中国东部地区人为气溶胶影响东亚夏季风爆发和推进过程的数值模拟[J]. *热带气象学报*, 2014, 30(5): 952-962.
- [23] TANG J, WANG P C, MICKLEY J, et al. Positive relationship between liquid cloud droplet effective radius and aerosol optical depth over Eastern China from satellite data[J]. *Atmos Environ*, 2014, 84(1): 244-253.
- [24] 石睿, 王体健, 李树, 等. 东亚夏季气溶胶-云-降水分布特征及其相互影响的资料分析[J]. *大气科学*, 2015, 39(1): 12-22.
- [25] 邓育鹏, 董晓波, 吕峰, 等. 河北省降水性层状云宏微观物理特征[J]. *气象与环境学报*, 2013, 29(3): 29-34.
- [26] 李军霞, 银燕, 任刚, 等. 山西云凝结核时空分布特征观测[J]. *中国环境科学*, 2015, 35(8): 2 261-2 271.
- [27] 封秋娟, 李培仁, 丁建芳, 等. 山西地区一次层状云降水过程的微观特征观测分析[J]. 2013, 36(5): 537-545.
- [28] CHUANG C C, PENNER J E. Effects of anthropogenic sulfate on cloud drop nucleation and optical properties[J]. *Tellus B*, 1995, 47(5): 566-577.
- [29] QIAN Y, GIORGI F. Interactive coupling of regional climate and sulfate aerosol models over eastern Asia[J]. *J Geophys Res-Atmos*, 1999, 104(D6): 6 477-6 499.
- [30] GIORGI F, BI X, QIAN Y. Indirect vs direct effects of anthropogenic sulfate on the climate of East Asia as simulated with a regional coupled climate-chemistry/aerosol model[J]. *Clim Change*, 2003, 58(3): 345-376.
- [31] CHEN Y, YIN Y, XIAO H, et al. A numerical investigation of the impacts of anthropogenic sulfate aerosol on regional climate in East Asia[J]. *Asia-Pacific J Atmos Sci*, 2014, 50(3): 391-403.
- [32] JIANG Y Q, LIU X H, YANF X Q, et al. A numerical study of the effect of different aerosol types on East Asian summer clouds and precipitation[J]. *Atmos Environ*, 2013, 70(1): 51-63.
- [33] ZHUANG B L, LIU Q, WANG T J, et al. Investigation on semi-direct and indirect climate effects of fossil fuel black carbon aerosol over China[J]. *Theoret Appl Climatol*, 2013, 114(3): 651-672.
- [34] MING J, CACHIER H, XIAO C, et al. Black carbon record based on a shallow Himalayan ice core and its climatic implications[J]. *Atmos Chem Phys*, 2008, 8(5): 1 343-1 352.
- [35] XU B Q, CAO J J, HANSEN J, et al. Black soot and the survival of Tibetan glaciers[J]. *Proceed Nat Acad Sci United States of Amer*, 2009, 106(52): 22 114-22 118.
- [36] MENON S, KOCH D, BEIG G, et al. Black carbon aerosols and the third polar ice cap[J]. *Atmos Chem Phys*, 2010, 10(10): 4 559-4 571.
- [37] KOPACZ M, MAUZERALL D L, WANG J, et al. Origin and radiative forcing of black carbon transported to the Himalayas and Tibetan Plateau[J]. *Atmos Chem Phys*, 2010, 11(6): 158-166.
- [38] WANG Z L, ZHANG H, SHEN X S. Radiative forcing and climate response due to black carbon in snow and ice[J]. *Adv Atmos Sci*, 2011, 28(6): 1 336-1 344.
- [39] BAUER S E, MENNON S, KOCH T C, et al. A global modeling study on carbonaceous aerosol microphysical characteristics and radiative forcing[J]. *Atmos Chem Phys*, 2010, 10(15): 4 543-4 592.
- [40] KOCH D, BAUER S E, DEL GENIO A, et al. Coupled aerosol-chemistry-climate twentieth-century transient model investigation: Trends in short-lived species and climate responses[J]. *J Clim*, 2011, 24(11): 2 693-2 714.
- [41] FAST J D, GUSTAFSON W I, EASTER C, et al. Evolution of ozone, particulates, and aerosol direct radiative forcing in the vicinity of Houston using a fully coupled meteorology-chemistry-aerosol model[J]. *J Geophys Res*, 2006, 111, D21305, doi: 10.1029 /2005JD006721.
- [42] GUSTAFSON W I, CHAPMAN E G, GHAN S J, et al. Impact on modeled cloud characteristics due to simplified treatment of uniform cloud condensation nuclei during NEAQS 2004[J]. *Geophys Res Lett*, 2007, 34(19): 255-268.
- [43] CHAPMAN E D, GUSTAFSON W I, EASTEE R C, et al. Coupling aerosol-cloud-radiative processes in the WRF-Chem model: Investigating the radiative impact of elevated point sources[J]. *Atmos Chem Phys*, 2009, 9(3): 945-964.
- [44] YANG Q, GUSTAFSON W I, FAST J D, et al. Assessing regional scale predictions of aerosols, marine stratocumulus, and their interactions during VOCALS-REx using WRF-Chem[J]. *Atmos Chem Phys*, 2011, 11(23): 11 951-11 975.
- [45] YANG Q, GUSTAFSON W I, FAST J D, et al. Impact of natural and anthropogenic aerosols on stratocumulus and precipitation in the

- Southeast Pacific: a regional modelling study using WRF-Chem[J]. *Atmos Chem Phys*, 2012, 12(18): 8 777-8 796.
- [46] SAIDE P E, SPAK S N, CARMICHAEL G R, et al. Evaluating WRF-Chem aerosol indirect effects in Southeast Pacific marine stratocumulus during VOCALS-Rex[J]. *Atmos Chem Phys*, 2012, 12(6): 3 045-3 064.
- [47] ZAVERI R A, EASTER R C, FAST J D, et al. Model for simulating aerosol interactions and chemistry (MOSAIC)[J]. *J Geophys Res: Atmos*(1984—2012), 2008, 113(D13): 1 395-1 400.
- [48] EMMONS L, WALTERS S, HESS P, et al. Description and evaluation of the Model for Ozone and Related chemical Tracers, version 4 (MOZART-4)[J]. *Geoscient Mod Developm*, 2010, 3(1): 43-67.
- [49] ZHANG Q, STREETS D, CARMICHAELG, et al. Asian emission in 2006 for the NASA INTEX-B mission[J]. *Atmos Chem Phys*, 2009, 9(3): 5 131-5 153.
- [50] MLAWER E J, TAUBMAN S J, BROWN P D, et al. Radiative transfer for inhomogeneous atmospheres: RRTM, a validated correlated-k model for the longwave[J]. *J Geophys Res: Atmos*(1984—2012), 1997, 102(D14): 16 663-16 682.
- [51] CHOU M D, SUAREZ M J. An efficient thermal infrared radiation parameterization for use in general circulation models[R]/NASA Technical Memorandum 104606, Vol3. 1994.
- [52] CHEN F, DUDHIA J. Coupling an advanced land surface-hydrology model with the Penn State-NCAR MM5 modeling system, Part I: Model implementation and sensitivity[J]. *Mon Wea Rev*, 2001, 129(4): 569-585.
- [53] HONG S Y, PAN H L. Nonlocal boundary layer vertical diffusion in a medium-range forecast model[J]. *Mon Wea Rev*, 1996, 124(10): 2 322-2 339.
- [54] GRELL G A, DEVENYI D. A generalized approach to parameterizing convection combining ensemble and data assimilation techniques [J]. *Geophys Res Lett*, 2002, 29(14): 1-4.
- [55] MORRISON H, CURRY J A, KHVOROSTYANOV V I. A new double-moment microphysics parameterization for application in cloud and climate models, Part I: Description[J]. *J Atmos Sci*, 2005, 62(6): 1 665-1 677.
- [56] MORRISON H, THOMPSON G, TATARSKII V. Impact of cloud microphysics on the development of trailing stratiform precipitation in a simulated squall line: Comparison of one-and two-moment schemes[J]. *Mon Wea Rev*, 2009, 137(3): 991-1 007.
- [57] WILD O, ZHU X, PRATHER M J. Fast-J: Accurate simulation of in-and below-cloud photolysis in tropospheric chemical models[J]. *J Atmos Chem*, 2000, 37(3): 245-282.
- [58] ZAVERI R A, PETERS L K. A new lumped structure photochemical mechanism for large-scale applications[J]. *J Geophys Res: Atmos* (1984—2012), 1999, 104(D23): 30 387-30 415.
- [59] ZHANG X Y, WANG Y Q, ZHANG X C, et al. Carbonaceous aerosol composition over various regions of China during 2006[J]. *J Geophys Res*, 2008, 113(D14).
- [60] KAUFMAN Y J, TANRE D, GORDON H R, et al. Passive remote sensing of tropospheric aerosol and atmospheric correction for the aerosol effect[J]. *J Geophys Res-Atmos*, 1997, 102(D14): 16 815-16 830.
- [61] FEINGOLD G, REMER L A, RAMAPRASAD J et al. Analysis of smoke impact on clouds in Brazilian biomass burning regions: An extension of Twomey's approach[J]. *J Geophys Res*, 2001, 106(19): 22 907-22 922.
- [62] ZHANG Y, LIU P, PUN B, et al. A comprehensive performance evaluation of MM5-CMAQ for the Summer 1999 Southern Oxidants Study episode, Part I: Evaluation protocols, databases and meteorological predictions[J]. *Atmos Environm*, 2006, 40(26): 4 825-4 838.
- [63] TUCCELLA P, CURCI G, VISCONTI G, et al. Modeling of gas and aerosol with WRF-Chem over Europe: Evaluation and sensitivity study[J]. *J Geophys Res*, 2012, 117(D3): 812-819.
- [64] WANG Y X, ZHANG Q Q, HE K B, et al. Sulfate nitrate-ammonium aerosols over China: Response to 2000—2015 emission changes of sulfur dioxide, nitrogen oxides, and ammonia[J]. *Atmos Chem Phys*, 2012, 12(9): 24 243-24 285.
- [65] GAO Y, LIU X, ZHAO C, et al. Emission controls versus meteorological conditions in determining aerosol concentrations in Beijing during the 2008 Olympic Games[J]. *Atmos Chem Phys*, 2011, 11(23): 12 437-12 451.
- [66] SHRIVASTAVA M, FAST J, EASTER R, et al. Modeling organic aerosols in a megacity: Comparison of simple and complex representations of the volatility basis set approach[J]. *Atmos Chem Phys*, 2011, 10(12): 6 639-6 662.
- [67] LI G, ZAVALA M, LEI W, et al. Simulations of organic aerosol concentrations in Mexico City using the WRF-CHEM model during the MCMA-2006/MILAGRO campaign[J]. *Atmos Chem Phys*, 2011, 11(8): 3 789-3 809.
- [68] KUMAR R, BARTH M C, PFISTER G G, et al. WRF-Chem simulations of a typical pre-monsoon dust storm in northern India: influences on aerosol optical properties and radiation budget[J]. *Atmos Chem Phys*, 2014, 14(5): 2 431-2 446.
- [69] ZHANG Y, ZHANG X, WANG K, et al. Incorporating an advanced aerosol activation parameterization into WRF-CAM5: Model evaluation and parameterization intercomparison[J]. *J Geophys Res: Atmos*, 2015, 120(14): 6 952-6 979.
- [70] ZHANG Y, MCMURRY P H, YU F, et al. A comparative study of nucleation parameterizations: 1: Examination and evaluation of the formulations[J]. *J Geophys Res: Atmos*(1984—2012), 2010, 115(D20): 898-907.

- [71] DUSEK U, REISCHL G P, HITZENBERGER R. CCN activation of pure and coated carbon black particles[J]. Environml Sci Technol, 2006, 40(4): 1 223-1 230.
- [72] ROSE D, GUNTHER S S, SU H, et al. Cloud condensation nuclei in polluted air and biomass burning smoke near the mega-city Guangzhou, China, Part 2: Size-resolved aerosol chemical composition, diurnal cycles, and externally mixed weakly CCN-active soot particles[J]. Atmos Chem Phys, 2011, 11(6): 2 817-2 836.
- [73] SCHWARTZ S E, HARSHVARDHAN, BENKOVITZ C M. Influence of anthropogenic aerosol on cloud optical depth and albedo shown by satellite measurements and chemical transport modeling[J]. Proceed Nati Acad Sci, 2002, 99(4): 1 784-1 789.
- [74] ZHANG Y, CHEM Y, SARWAR G, et al. Impact of gas-phase mechanisms on weather research forecasting model with chemistry (WRF/Chem) predictions: Mechanism implementation and comparative evaluation[J]. J Geophys Res: Atmos(1984—2012), 2012, 117(D1): 1 301.

THE IMPACT OF SULFATE AND BLACK CARBON AEROSOLS ON SUMMERTIME CLOUD PROPERTIES IN CHINA

SHANG Jing-jing^{1,3}, LIAO Hong^{1,2}, FU Yu^{2,3}, YANG Qing⁴

(1. State key Laboratory of Atmospheric Boundary Layer and Atmospheric Chemistry (LAPC),

Institute of Atmospheric Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029, China;

2. Climate Change Research Center (CCRC), Chinese Academy of Sciences, Beijing 100029, China;

3. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China;

4. Pacific Northwest National Laboratory, Richland, WA, USA)

Abstract: We investigate the impacts of sulfate and black carbon aerosols on cloud microphysical properties over China during 1 August-1 September, 2006, by using the WRF-Chem model (Weather Research and Forecasting model coupled with Chemistry). A comprehensive model evaluation is performed for simulated meteorology, aerosol concentrations, aerosol optical properties, as well as cloud variables by using the ground-based and satellite observations across China. The model simulates well the meteorological variables such as surface air temperature, precipitation, relative humidity, and wind speed, in terms of both magnitudes and spatial distributions. Simulated concentrations of sulfate, nitrate, organic carbon, black carbon, aerosol optical depth(AOD), aerosol single scattering albedo(SSA), cloud top effective radius (CER), cloud optical thickness(COD), and liquid water path(LWP) have relatively large biases. The impacts of sulfate and black carbon on cloud properties are quantified by two sensitive simulations with tripled emissions of sulfur dioxide and black carbon, respectively. Sulfate is found to be more important than black carbon as they serve as cloud condensation nuclei. The sensitivity of cloud-top cloud droplet number concentrations over eastern China to sulfate aerosol is found to increase from the North to South China, as a result of the higher relative humidity in South China. The simulated changes in effective radius of cloud droplets follow the Twomey Effect when concentrations of sulfate increase, but those in effective radius of cloud droplets differ as concentrations of black carbon increase. Compared to sulfate, black carbon aerosol is found to have a much more important effect on cloud fraction in eastern China as a result of the cloud "burning" effect caused by the absorption of sunlight.

Key words: sulfate; black carbon; aerosol optical depth; cloud optical depth; cloud fraction; liquid water depth; cloud effective radius