NILU
Teknisk notat nr 54/73
Referanse: EO 21871
Dato: Mai 1973

LITT OM UTVASKING AV SULFAT-PARTIKLER I LUFT VED REGNVÆR

av

Anton Eliassen

NORSK INSTITUTT FOR LUFTFORSKNING
POSTBOKS 15, 2007 KJELLER
NORGE

INNHOLDSFORTEGNELSE

LITT OM UTVASKING AV SULFATPARTIKLER I LUFTEN VED REGNVÆR

1 GENERELT OM UTVASKING AV PARTIKLER VED REGN

Regndråper med radius r faller gjennom luft som inneholder aerosolpartikler med radius a. La N(r)dr være antall regndråper pr volumenhet med radius mellom r og r + dr, og tilsvarende n(a)da antall aerosolpartikler pr volumenhet luft med radius mellom a og a + da. Regndråpenes fallhastighet er u(r). Regnets intensitet I blir

$$I = \int_0^\infty \frac{4}{3} \pi r^3 N(r) u(r) dr \qquad (1)$$

En fallende regndråpe med radius r vil avgrense en vertikal sylinder med tverrsnitt πr^2. Man kan dessuten definere en annen vertikal sylinder med samme akse, som har den egenskap at alle aerosolpartikler av en bestemt radius a som befinner seg inne i sylinderen, vil bli truffet av regndråpen, mens alle som befinner seg utenfor, vil unnslippe. Tverrsnittsradien d i sistnevnte sylinder vil være en funksjon av r og a. Den såkalte "collision efficiency", E(a,r), defineres ved

$$E(a,r) = \frac{d^2}{r^2} \qquad (2)$$

Antar man nå at alle partiklene som treffes av en regndråpe også fanges opp av denne, og dessuten at partiklenes fallhastighet er neglisjerbar i forhold til regndråpenes fallhastighet, vil antall partikler som blir "vasket ut" pr tidsenhet og volumenhet luft, J, være

$$J = \int_0^\infty \int_0^\infty \pi r^2 E(r,a) u(r) N(r) n(a) da\, dr \qquad (3)$$

Betraktes spesielt et "uendelig smalt" partikkelspektrum, med partikler bare av en bestemt radius a, og m(a) partikler pr volumenhet luft, er

$$J = m(a) \int_0^\infty \pi r^2 \; E(r,a) \; u(r) \; N(r) \; dr \qquad (4)$$

Hvis partiklene fjernes fra luften bare ved denne prosessen:

$$\frac{dm\ (a)}{dt} = - \; m(a) \int_0^\infty \pi r^2 \; E(r,a) \; u(r) \; N(r) \; dr \qquad (5)$$

dvs

$$\left. \begin{aligned} & m(a,t) = m(a,o)e^{-kt} \quad , \quad \text{hvor} \\ & k = \int_0^\infty \pi r^2 \; E(r,a) \; u(r) \; N(r) \; dr \end{aligned} \right\} \qquad (6)$$

Størrelsen k kalles utvaskingskoeffisienten. I dette tilfelle vil altså antall partikler pr volumenhet luft avta eksponentielt med tiden. Generelt vil dette ikke være tilfelle for brede partikkelspektra.

For å bestemme k må man kjenne N(r), u(r) og E(r,a). Når det gjelder regndråpespektret N(r) viser det seg at man ofte har nær samme fordeling av dråpestørrelsene omkring en "typisk dråpe-radius". Den typiske dråperadien vil variere en del fra én observasjon til en annen. Det er ingen god sammenheng mellom den typiske dråperadien og regnets intensitet. Fallhastigheten u(r) er godt bestemt. Den største usikkerheten i bestemmelsen av k ligger i funksjonen E(a,r). Tidligere mente man at E(a,r) ikke var målbart forskjellig fra null når a < 18 μm. Senere beregninger og målinger har vist at E(a,r) har et minimum ved omkring a = 0,1 μm, og vokser raskt på begge sider av denne a-verdi: Partikler med a << 0,1 μm er så små at de følger med i luftens turbulente bevegelser i grensesjiktet rundt en fallende regndråpe. Når partiklene nærmest dråpen fanges opp av denne, vil nye partikler transporteres inn mot dråpen ved turbulent diffusjon. Den turbulente diffusjonen vil være mer effektiv jo mindre partikkelen er, for desto lettere følger partikkelen luftens bevegelser. Partikler med a >> 1 µm har så stor masse at de ikke vil følge med i luftens turbulente bevegelser rundt dråpen, men snarere følge luftstrømmens middelbevegelse. De minste av disse partiklene vil som luften smette tilside når dråpen kommer fallende, men de større vil ikke rekke å smette unna, slik at de blir truffet av dråpen, hvis de bare befinner seg nær nok inntil dråpens bane. For partikler med a ≈ 0,1 µm vil verken turbulent diffusjon inn mot regndråpen, eller treghetsoppfanging være særlig effektive mekanismer.

Zimin [1] har beregnet k for forskjellige verdier av a og r. Han antar at regndråpespektret har formen

$$N(r) = Ar^2 \exp\left(-\frac{2r}{r_m}\right) \tag{7}$$

og at regndråpenes fallhastighet er gitt ved

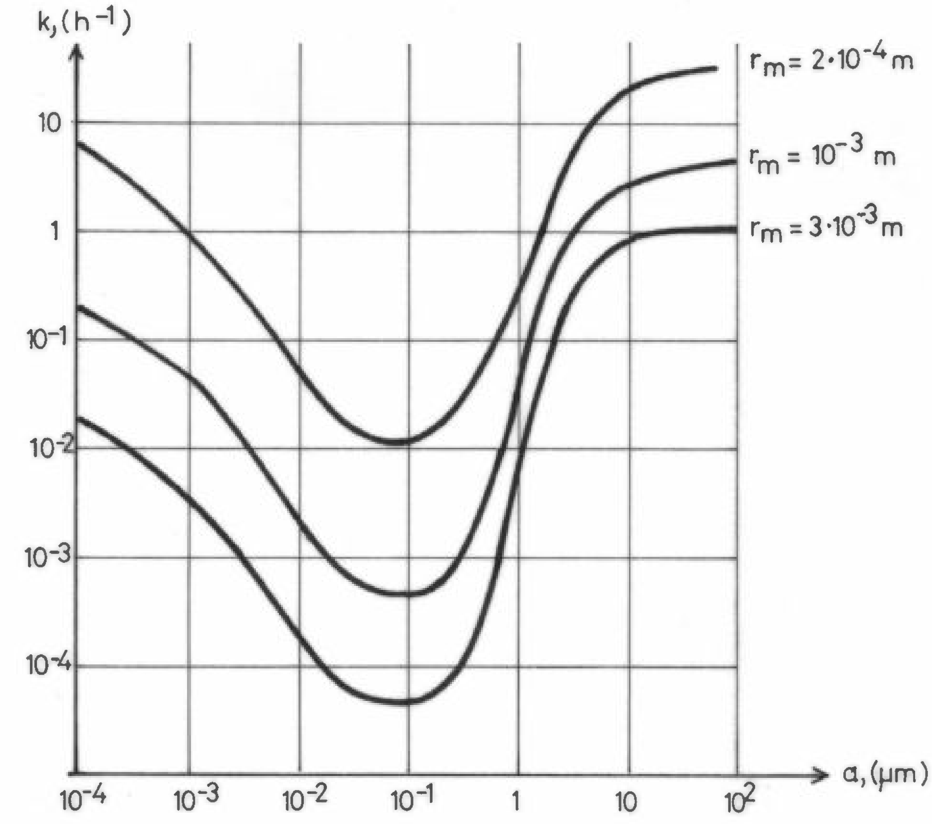
$$u(r) = Br, \qquad B = 8 \cdot 10^3\ s^{-1} \tag{8}$$

Ved å sette (7) og (8) inn i (1) og regne ut integralet ser man at A er bestemt ved I, B og r_m:

$$A = \frac{3}{4\pi} \cdot \frac{2^7}{6!}\, r_m^{-7}\, \frac{I}{B} \tag{9}$$

Zimin's resultater går frem av figur 1. Figuren gjelder for I = 10 mmh^{-1}, men kan lett brukes til å bestemme k for andre verdier av I, siden k er proporsjonal med I (ved fast r_m).

Utvaskingskoeffisienten k er også beregnet av Chamberlain [2]. Resultatene gjelder for a mellom 2 µm og 20 µm, og stemmer godt overens med Zimin's verdier for k i dette området hvis man legger kurven for $r_m = 10^{-3}$ m på figur 1 til grunn. Forskjellen mellom k-verdiene er størst nær a = 20 µm. Her er Zimin's verdier 3 - 4 ganger så store som Chamberlain's verdier.

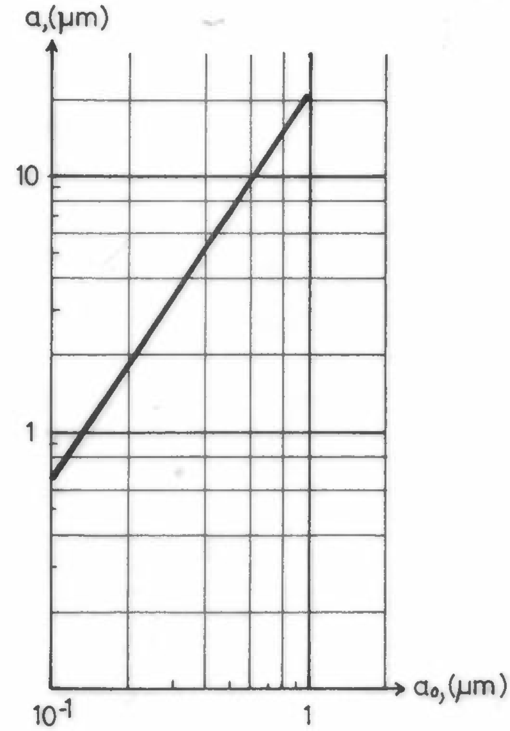


Figur 1: Utvaskingskoeffisienten k som funksjon av partikkelradius a for tre forskjellige verdier av r_m.
Ved I = 10 mm/h (Fra Zimin [1])

2 UTVASKING AV SULFATPARTIKLER VED REGN

Sulfatpartiklene i atmosfæren er sjelden større enn 1 µm i radius. Sulfatmassen på partiklene later til å være ganske jevnt fordelt omkring en massemedianradius på ca 0,3 µm. (Georgii, Jost, Vitze [3]). Etter Zimin's beregninger vil slike partikler vaskes ut svært langsomt ved regn. Avlesning på figur 1 gir $k \simeq 10^{-4}\ h^{-1}$ ved a = 0,3 µm, $r_m = 10^{-3}$m og $I = 1\ mmh^{-1}$, idet man tar hensyn til at k er proporsjonal med I (ved fast r_m). Dette svarer til en halveringstid på $7 \cdot 10^3$h.

Ved regnvær vil imidlertid den relative fuktighet i luften, F, ligge nær 1. Sulfatpartiklene vil virke som kondensasjonskjerner for vanndampen, og vokse til små vanndråper. Disse vanndråpene vil ofte være så mye større enn de opprinnelige sulfatpartiklene at regnutvaskingen av sulfat blir mye mer effektiv enn anslaget ovenfor tyder på (se figur 1). Når F > 1 vil dråpeveksten arte seg forskjellig for de dråpene som startet sin vekst på henholdsvis små og store kondensasjonskjerner. Dråpene som startet veksten på de små kjernene vil vokse til de når en stabil radius, som avhenger av F og av kondensasjonskjernens størrelse. Dråpene som startet veksten på de store kjernene ville ved fast F > 1 aldri slutte å vokse. Deres vekst begrenser seg selv ved at de tapper luften for vanndamp, slik at F minker. Hvis F $\leq$ 1 vil alle dråpene vokse til en stabil størrelse.



Figur 2: Stabil dråperadius a som funksjon av kjerneradien a_o for ammoniumsulfatkjerner ved relativ fuktighet F = 1.

Figur 2 viser hvordan den stabile dråperadien a varierer som funksjon av a_o, radien av sulfatpartikkelen før kondensasjonen av vanndamp tok til. Ved beregningen av figuren er det antatt at F = 1.

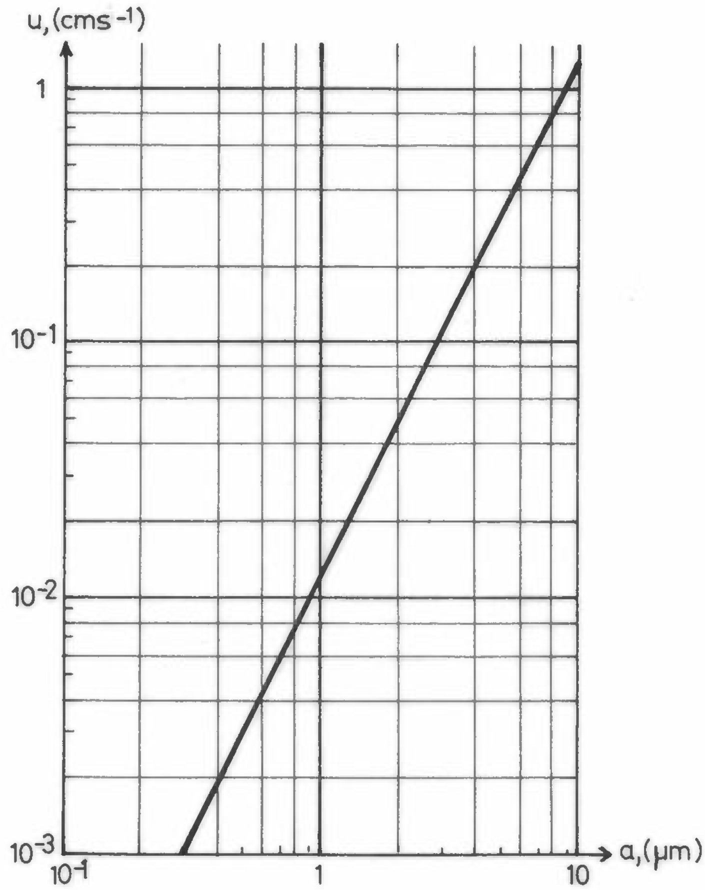
Ved å benytte figurene 1 og 2, kan man anslå virkningen av denne dråpeveksten på utvaskingskoeffisientens størrelse. Figur 2 viser at en "typisk" sulfatpartikkel med radien 0,3 µm vil være opphav til en liten vanndråpe med radius 3,3 µm under forutsetningene nevnt ovenfor. Med a = 3,3 µm, $r_m = 10^{-3}$m og I = 1 mmh^{-1} får man nå k = $10^{-1}h^{-1}$ fra figur 1. Dette svarer til en halveringstid på 7h, mot $7 \cdot 10^3$h med sulfatpartikkelen i "tørr" tilstand.

Det understrekes at figur 2 bare er ment å gi et grovt estimat av dråpeveksten på sulfatkjernene i fuktig luft.

3 FALLHASTIGHET

Når sulfatpartikkelen vokser til en liten vanndråpe vil dens fallhastighet øke vesentlig. Figur 3 gir fallhastigheten i luft (gyldig i troposfærens nedre del) til kuleformede partikler med tetthet 1 g cm^{-3}. Partikkelen som øker sin radius fra f eks 0,3 µm i "tørr" til 3,3 µm i våt tilstand (F = 1) øker sin fallhastighet fra 10^{-3} cms^{-1} til 0,13 cms^{-1} eller 4,7 mh^{-1}.

Ved regnvær vil en nedbørmåler motta både regndråper og slike små vanndråper med svært høye sulfatkonsentrasjoner. Nedfallet av slike smådråper som skyldes gravitasjonen (fallhastigheten) kalles i det følgende for gravitasjonsnedfall).



Figur 3: Fallhastigheten u til kuleformede partikler med tetthet 1 g/cm^{-3}, som funksjon av deres radius a. (Nedre del av troposfæren).

4 OVERSLAG OVER BETYDNINGEN AV UTVASKING AV SULFATPARTIKLER FOR SULFATINNHOLDET I REGNVANN

Det gjelder å beregne hvor store konsentrasjoner av sulfat i regnvannet en utvaskingsprosess kan tenkes å gi, og sammenligne dette med de målte konsentrasjoner av sulfat i regnvann.

Når partikkelspektret er tilstrekkelig smalt, kan utvaskingsprosessen beskrives ved (6). Konsentrasjonen C av sulfat i regnvannet, som skyldes regndråpenes oppfanging av sulfatpartikler under sitt fall, er da bestemt av

$$C = M \frac{k_o}{I_o} \qquad (10)$$

hvis man antar at r_m ikke varierer med I. Her er M massen av sulfat på partikler (i smådråper) i det luftlaget regnet faller igjennom, pr horisontal flate-enhet og k_o er utvaskingskoeffisienten som gjelder ved regnintensiteten I_o. Hvis regnet faller gjennom et 10^3 m tykt luftlag med en sulfatkonsentrasjon på partikler på 10 μgm^{-3}, blir $M = 10^4\ \mu gm^{-2}$. Med $k_o = 10^{-1}h^{-1}$ ved $I_o = mmh^{-1}$ ($a = 3{,}3\ \mu m$, $r_m = 10^{-3}m$), bilr konsentrasjonen C = 1 mg ℓ^{-1}. Denne konsentrasjonen er av samme størrelsesorden som den man måler i regnvann. Selv om $10^4\ \mu gm^{-2}$ er en temmelig høy verdi for M, tyder dette anslaget på at en del av sulfatet som måles i nedbør kan skrive seg fra en utvaskingsprosess.

5 VIRKNINGEN AV NEDFALL AV SMÅDRÅPER MED HØY SULFAT-KONSENTRASJON PÅ SULFATKONSENTRASJONEN I VANNET I EN NEDBØRMÅLER

En vanndråpe med radius 3,3 µm som har startet sin vekst på en sulfatpartikkel med radius 0,3 µm i "tørr" tilstand, vil få en sulfatkonsentrasjon på omtrent 1 g ℓ^{-1}. I stille vær vil deposisjonshastigheten av slike dråper nærme seg deres fallhastighet, som i dette tilfelle er ca 5 mh^{-1}. Hvis det blåser er deposisjonshastigheten større på grunn av turbulent diffusjon av dråpene mot bakken. Chamberlain's forsøk i vindtunnel [4] tyder på at for rimelige verdier av friksjonshastigheten ($u = 70\ cms^{-1}$) vil deposisjonshastigheten mot gress til partikler av denne størrelse være ca 1 cms^{-1} eller 35 mh^{-1}. Anta nå forsøksvis at de sulfatholdige smådråpene gir luften i Prandtl-laget en såpass høy sulfat-konsentrasjon som 10 μgm^{-3}. Et regnvær med en sulfat-konsentrasjon på 5 mg ℓ^{-1} i regnvannet og intensitet 1 mmh^{-1} vil gi et nedfall av sulfat på $5 \cdot 10^3\ \mu gm^{-2}h^{-1}$. Hvis små-dråpenes deposisjonshastighet er lik deres fallhastighet vil dette gi et sulfatnedfall på 50 $\mu gm^{-2}h^{-1}$, altså en hundredel så stort nedfall som fra regnværet. Når regnværet og gravitasjonsnedfallet foregår samtidig, vil virkningen av gravitasjonsnedfallet på sulfatkonsentrasjonen i vannet i en nedbørmåler komme i tredje siffer.

Antar man en deposisjonshastighet på 2 cms^{-1} (70 mh^{-1}) vil virkningen av deposisjonen av smådråpene på sulfatkonsentrasjonen av vannet i nedbørmåleren komme i annet siffer. Nedbøren fra deposisjonen vil bli omtrent $7 \cdot 10^{-4}$ mmh^{-1} med de antagelser som er gjort. Dette tyder på at deposisjonen av de sulfatholdige smådråpene ikke har vesentlig innvirkning på sulfatkonsentrasjonen i vannet i en nedbørmåler, såfremt ikke den fuktige deposisjonen varer mye lenger enn regnværet.

Av Chamberlain's undersøkelse [4] fremgår det at deposisjonshastigheten avtar med mer enn en størrelsesorden når partikkelradien avtar fra 3 μm til 0,3 μm. Dette betyr at den relative fuktighet har en kritisk innvirkning på deposisjonen av sulfatpartikler; dråpeveksten øker deposisjonen ved at partiklene "vokser", dessuten henger de bedre fast i objektene de treffer når de er "våte".

6 REFERANSER

[1] Zimin, A.G. "Mechanisms of Capture and Precipitation of Atmospheric Contaminants by Clouds and Precipitation", i "Problems of Nuclear Meteorology", redaktører Karol, I.L. og Malakhow, S.G., Translation series, U.S. Atomic Energy Commission no AEC-tr-6128, side 139 (1962).

[2] Chamberlain, A.C. "Aspects of Travel and Deposition of Aerosols and vapour Clouds", A.E.R.E., HR/R 1261, H.M.S.O., (sitert i Pasquill, F "Atmospheric Diffusion" section 6,2, side 237) (1953).

[3] Georgii, H.W., Jost, D., Vitze, W. "Konzentration und Grössenverteilung des Sulfataerosols in der unteren und mittleren troposphäre", Berichte des Institutes für Meteorologie und Geophysik der Universität Frankfurt/Main Nr 23 (Mai 1970).

[4] Chamberlain, A.C. "Transport of Lycopodium spores and other small particles to rough surfaces". Proc. Roy. Soc. A. 296, 45 - 70.