

Diss. ETH No. 8843

**PRECIPITATION SCAVENGING OF AEROSOL
PARTICLES:
A WINTER TIME FIELD STUDY**

A dissertation submitted to the
SWISS FEDERAL INSTITUTE OF TECHNOLOGY

for the degree of
DOCTOR OF NATURAL SCIENCES

presented by
THOMAS SCHUMANN
dipl. phys. ETH
born 3 March 1958
citizen of Zürich (ZH), Switzerland

Accepted on the recommendation of
Prof. Dr. A. Waldvogel, examiner
Prof. Dr. H. R. Pruppacher, co-examiner

1989



Abstract

An extensive field campaign was undertaken aimed at observing interactions between aerosol particles and hydrometeors during frontal passages with precipitation in winter time. Observations were made at three ground-based measuring stations along the north-western slope of Mount Rigi, Central Switzerland, at 430 - 1620 m a.s.l.. The stations were operated simultaneously and were capable of measuring major parameters in and below the clouds. Detailed radar observations of the incoming precipitation completed the observations. Fifteen precipitation systems were observed, the majority of them induced by weak cold fronts. Sectorial investigations have already been carried out with parts of this data set and have been published recently (Schumann and Waldvogel [1987], Schumann et al. [1986], [1988], Zinder et al. [1988], McDow et al. [1989]). This thesis summarizes the past work, expands the investigations and generalizes the findings.

a) In-cloud scavenging:

Never reported before, size-dependent in-cloud scavenging efficiencies were determined. With the help of such efficiencies in-cloud scavenging could be explained as a combination of pure nucleation scavenging (for 0.2-2 μm particles) and impaction scavenging (under in-cloud conditions, for particles smaller than 0.2 μm and larger than 2 μm). The case-to-case variability of determined efficiencies was rather large, being the result of the influence of simultaneous precipitation, the solubility of the aerosols, the number concentration of fine particles ($d_a < 0.25 \mu\text{m}$), and the maximum supersaturation reached during cloud formation. The experimentally determined efficiencies agree, at least qualitatively, with current nucleation theories (e.g. Hänel [1987]). An exact comparison is not possible since supersaturation could not be measured in-situ. Field experiments reported by other authors reconfirm the mean total efficiency of 70 % (by aerosol volume) found in this study.

b) Below-cloud scavenging:

Below-cloud scavenging coefficients for particles in the diameter range $0.28 < d_a < 15 \mu\text{m}$ were determined as a function of the aerosol diameter d_a . The agreement with theoretical coefficients is best for particles of about 2 μm diameter. Particles below this size seem to be much more efficiently removed than current theory (summarized by Flossmann [1986]) predicts. In general the experimental values are 10 to 100 times larger for aerosols of $d_a=0.5 \mu\text{m}$. Reasons for this discrepancy are discussed in detail. Giant particles of more than 2 μm diameter seem to be less efficiently scavenged than predicted. For 5 μm particles the experimental scavenging coefficients are about 2 to 5 times lower than the theoretical values. Other field studies of comparable design generally support the results of this field experiment.

In addition, the dependence on rainfall rate was found to be less pronounced than expected from theory. It was possible to find evidence of the influence of raindrop size distributions upon the scavenging coefficient. However it was not possible to extract experimentally determined collection kernels from the field measurements.

c) Snow scavenging:

Below-cloud snow scavenging could be observed reliably in only one case. The observation clearly suggests an increase of the scavenging coefficient by a factor of 10 to 100, as compared to rain scavenging.

d) Precipitation chemistry:

The inorganic ion concentrations found in aerosols and precipitation show that the precipitation first falling contains overproportional amounts of coarse aerosol particles, that the submicron particles consisting of the major portions of NO_3^- , SO_4^{2-} , and NH_4^+ are quickly incorporated into cloud water, but much less efficiently transformed into precipitating water than super-micron particles, and that the below-cloud ion concentrations in precipitation are from pollution at both in-cloud and below-cloud levels with widely varying percentages.

e) The role of frontal dynamics

Aerosol concentration changes accompanied with air mass changes in mid-latitude cyclones often dominate over the effects caused by the interaction with hydrometeors. In particular this applies to frontal passages with pronounced dynamics. Moderate fronts with weak dynamics and rather uniform flow fields result in gradual changes of aerosol concentrations that can be compensated successfully with statistical methods. Scavenging parameters can be determined reliably in such cases. The vertical structure of the air mass ahead of the front is of prime importance for the pollution level of precipitation.

The Rigi project was found to be excellently suitable for the study of precipitation scavenging. It comprises some design features which are not realized in any other reported field study, and which were able to elucidate many of the complex factors of precipitation scavenging with experimental methods. The fact that many field-determined scavenging parameters are in clear disagreement with theoretical values is worrying. Neither the conclusion that the field experiment is doubtful, nor the assumption that theory contains misconceptions is acceptable. Rather it is postulated that the comparison itself may be improper: Some (unknown) processes not taken into account by theory may have important influences on the aerosol, or in the field some assumptions are not met that should be for the correct application of the theory. The fact remains that state-of-the-art models are not able to represent the observed overall effects of the interaction between precipitation and aerosol particles correctly.

The large and multifaceted data set is currently used for various fields of research. The major common objective of these efforts is to combine the present knowledge about cloud microphysics, aerosol physics, cloud dynamics and cloud chemistry, and to retrieve integral effects of these simultaneously acting mechanisms. It is believed that such an approach may reveal new features of the wet deposition phenomenon, and that it may stimulate numerical cloud modelers. The event-oriented view of this experiment complements monitoring-oriented studies in an ideal way.

Zusammenfassung

In einer multidisziplinären Felduntersuchung wurden die Wechselwirkungen zwischen Schwebeteilchen in der Luft (Aerosole) und Niederschlagsteilchen (Wolkentröpfchen, Regentropfen, Schneeflocken,...) untersucht, wie sie sich bei winterlichen Frontendurchgängen ergeben. Die Beobachtungen wurden an drei Bodenstationen entlang der nordwestlich ausgerichteten Flanke der Rigi (Zentralschweiz) während drei Wintern gemacht. Die Stationen lagen auf 430 bis 1620 m ü. M. und konnten eine grosse Zahl von relevanten Parametern in und unterhalb der Wolken erfassen. Die Niederschlagssysteme wurden zusätzlich mit zwei Radaranlagen verfolgt. Im ganzen wurden 15 Niederschlagsereignisse, in der Mehrheit schwache Kaltfronten, intensiv beobachtet.

Verschiedene Untersuchungen anhand dieses so erhobenen Datensatzes wurden schon erstellt und publiziert (Schumann und Waldvogel [1987], Schumann et al. [1986], [1988], Zinder et al. [1988], McDow et al. [1989]). Diese Dissertation soll die Untersuchungen zusammenfassen, erweitern und verallgemeinern. Folgende Erkenntnisse wurden erarbeitet:

a) In-cloud - Scavenging (Auswaschen innerhalb der Wolken):

Zum ersten Mal konnten Partikelgrössen-abhängige in-cloud - Effizienzen bestimmt werden. Es zeigt sich dabei, dass die Aerosolentfernung in Wolken als Kombination von Nukleations-Scavenging (für mittelgrosse Partikel im Durchmesserbereich 0.2 - 2 μm) und Einfang-Scavenging (für ganz kleine und ganz grosse Partikel) wirkt. Die Unterschiede in der Effizienz variieren von Fall zu Fall sehr stark, was auf die Löslichkeitseigenschaften der Aerosole, die Konzentration von kleinen Partikeln (unter 0.25 μm) und die maximal erreichte Uebersättigung zurückgeführt werden kann. Die experimentell bestimmten Werte von weniger als 50% bis nahezu 100% Effizienz bestätigen theoretische Berechnungen, etwa von Hänel [1987], wobei keine exakte Gegenüberstellung von Theorie und Experiment möglich ist, da im Feld keine Uebersättigungen gemessen werden konnten. Feldmessungen anderer Autoren stützen den hier erarbeiteten Befund, nämlich dass die mittlere volumengewichtete in-cloud - Effizienz bei etwa 70% liegt.

b) Below-cloud - Scavenging (Partikeleinfang unterhalb von Wolken):

Einfang-Scavenging - Koeffizienten konnten als Funktion des Partikeldurchmessers im Bereich 0.28-15 μm bestimmt werden. Dabei ist die Uebereinstimmung mit theoretischen Werten von Flossmann [1986] am besten für 2 μm -Teilchen. Kleinere Aerosolpartikel scheinen viel besser entfernt zu werden als die Theorie voraussagt. Für 0.5 μm -Teilchen zum Beispiel wurden 10 bis 100 mal höhere experimentelle Werte gefunden. Mögliche Ursachen dafür werden anhand des Datensatzes eingehend diskutiert.

Riesen-Partikel von mehr als 2 μm Durchmesser scheinen weniger effizient entfernt zu werden als von der Theorie erwartet. Hier liegen die experimentellen Werte, etwa für 5 μm -Teilchen, 2-5 mal unter dem theoretischen. Eine von 1 auf 0.2 reduzierte Haftwahrscheinlichkeit könnte den Unterschied am plausibelsten erklären. Andere ähnlich konzipierte Feldstudien bestätigen die hier gemachten Befunde.

Im weiteren ist die Abhängigkeit des Scavenging-Koeffizienten von der Niederschlagsintensität weniger ausgeprägt als theoretisch erwartet. Die Regentropfengrößenverteilung spielt dabei sicher eine Rolle, wofür die Daten Hinweise geben. Anhand der vorhandenen experimentellen Daten konnte aber keine Beziehung quantifiziert werden.

c) Auswaschen durch Schnee:

Auswaschen durch Schnee unterhalb von Wolken konnte nur in einem Fall genau untersucht werden. Die Beobachtungen deuten auf ein 10 bis 100 mal besseres Auswaschen hin als durch Regen, wenn man als vergleichendes Mass gleiche (geschmolzene) Niederschlagsmengen heranzieht.

d) Zusammensetzung des Niederschlags

Anorganische Analysen der Hauptionen von grössenfraktionierten Aerosolen und sequentiellen Niederschlagsproben ergeben wichtige Hinweise darauf, wie das als Niederschlag ausfallende Wasser formiert wird. Die oben erwähnten physikalischen Untersuchungen werden gestützt. Es zeigt sich, dass der zuerst fallende Niederschlag überproportional viele Bestandteile von Grobstaub enthält, dass die Submikron-Partikel mit den Hauptkomponenten Nitrat, Sulfat und Ammonium zwar rasch ins Wolkenwasser gelangen, aber nur allmählich in Niederschlagswasser transferiert werden, und dass die Niederschlagsverunreinigungen am Fusse der Rigi mit stark variierenden Prozentsätzen von innerhalb und unterhalb der Wolken stammen, je nach der Stabilität der planetaren Grenzschicht.

e) Die Rolle der Dynamik in Fronten

Änderungen der Aerosolkonzentration werden oft durch Luftmassenwechsel aufgrund der Strömungsverhältnisse in einer Zyklone verursacht und dominieren dann über die Konzentrationsabnahmen, die durch Auswaschen zustandekommen. Dies gilt vor allem für kräftige Fronten mit ausgeprägter Dynamik. Mässige Fronten mit schwach ausgebildeter frontaler Dynamik und recht uniformen Strömungsfeldern ergeben demgegenüber nur langsame Konzentrationsänderungen. Diese können erfolgreich mit statistischen Methoden kompensiert werden. In solchen Fällen sind Scavenging-Koeffizienten gut zu bestimmen. Die meisten ähnlich angelegten Felduntersuchungen legen viel zu wenig Gewicht auf durch die Dynamik verursachte Luftverschmutzungsveränderungen.

Das Rigi-Projekt kann als sehr geeignet für das Studium von Wechselwirkungen zwischen Luftschadstoffen und Niederschlag bezeichnet werden. Es beinhaltet einige wichtige Eigenschaften, die in keinem anderen Projekt vorhanden waren. Die Tatsache, dass experimentell bestimmte Auswaschparameter so schlecht mit der Theorie in Einklang zu bringen sind, beunruhigt. Diese Unstimmigkeit bedeutet weder, dass das Feldexperiment schlecht ist, noch dass die Theorie falsch ist, sondern eher, dass der Vergleich nicht ganz zulässig ist. Entweder berücksichtigt die Theorie einige wichtige Vorgänge nicht oder falsch, oder es werden in der Natur einige Annahmen nicht erfüllt, von der die Theorie ausgeht. Die Tatsache bleibt bestehen, dass die an sich anerkannte Theorie die beobachteten Effekte der Wechselwirkungen zwischen Aerosolen und Niederschlag nicht korrekt beschreiben kann.

Die erhobenen Daten werden momentan für verschiedene weitere Auswertungen verwendet. Ziel dieses und weiterer Rigi-Experimente ist es, ein umfassenderes und abgerundeteres Bild der komplexen Vorgänge bei Niederschlag zu gewinnen, indem möglichst vielfältige Datensätze mit aerosolphysikalischen, wolkenphysikalischen, dynamischen und chemischen Mitteln und Ansätzen erhoben und in interdisziplinärer Zusammenarbeit analysiert werden. Wir sind der Ansicht, dass eine solche fallorientierte Untersuchung überwachungsorientierte Arbeiten in idealer Weise ergänzen kann.