

구름방울 활성화 과정 모수화 방법에 따른 구름 형성의 민감도 실험

김아현¹⁾ · 염성수^{1)*} · 장동영^{1),2)}

¹⁾연세대학교 대기과학과, ²⁾Max-Planck Institute for Chemistry

(접수일: 2018년 1월 31일, 수정일: 2018년 3월 18일, 게재확정일: 2018년 3월 24일)

Sensitivity Test of the Parameterization Methods of Cloud Droplet Activation Process in Model Simulation of Cloud Formation

Ah-Hyun Kim¹⁾, Seong Soo Yum^{1)*}, and Dong Yeong Chang^{1),2)}

¹⁾Department of Atmospheric Sciences and Global Environment Laboratory, Yonsei University, Seoul, Korea

²⁾Max-Planck Institute for Chemistry, Mainz, Germany

(Manuscript received 31 January 2018; revised 18 March 2018; accepted 24 March 2018)

Abstract Cloud droplet activation process is well described by Köhler theory and several parameterizations based on Köhler theory are used in a wide range of models to represent this process. Here, we test the two different method of calculating the solute effect in the Köhler equation, i.e., osmotic coefficient method (OSM) and κ -Köhler method (KK). To do that, each method is implemented in the cloud droplet activation parameterization module of WRF-CHEM (Weather Research and Forecasting model coupled with Chemistry) model. It is assumed that aerosols are composed of five major components (i.e., sulfate, organic matter, black carbon, mineral dust, and sea salt). Both methods calculate similar representative hygroscopicity parameter values of 0.2~0.3 over the land, and 0.6~0.7 over the ocean, which are close to estimated values in previous studies. Simulated precipitation, and meteorological variables (i.e., specific heat and temperature) show good agreement with reanalysis. Spatial patterns of precipitation and liquid water path from model results and satellite data show similarity in general, but on regional scale spatial patterns and intensity show some discrepancy. However, meteorological variables, precipitation, and liquid water path do not show significant differences between OSM and KK simulations. So we suggest that the relatively simple KK method can be a good alternative to the OSM method that requires various information of density, molecular weight and dissociation number of each individual species in calculating the solute effect.

Key words: Cloud droplet activation parameterization, cloud condensation nuclei, aerosol hygroscopicity

1. 서 론

대기 중 에어로졸의 일부는 구름응결핵(Cloud Condensation Nuclei, CCN) 역할을 하여, 구름의 생성

과 발달에 영향을 미치고 광학 깊이를 변화시켜 전 지구 복사수지에도 영향을 준다. 이는 에어로졸-구름 상호작용에 의한 복사수지 효과로 알려져 있으며, 크게 구름 알베도 효과(Twomey Effects; Twomey, 1977)와 구름 수명 효과(Albecht Effects; Albrecht, 1989)로 이해된다. 구름 알베도 효과는 인위적인 에어로졸 증가가 작은 구름방울들의 생성을 유도하여 구름의 알베도를 증가시키는 효과를 말한다. 이는 지구에 입사하는 태양복사에너지를 보다 효율적으로 반사하여 지

*Corresponding Author: Seong Soo Yum, Department of Atmospheric Sciences, College of Sciences, Yonsei University, 50 Yonsei-ro, Seodaemun-gu, Seoul 03722, Korea.
Phone: +82-2-2123-7613, Fax: +82-2-365-5163
E-mail: ssyum@yonsei.ac.kr

표온도를 낮추는 효과를 가져다 준다. 구름 수명 효과는 에어로졸 수농도 증가에 의한 구름방울 크기 감소가 강수 효율을 감소시키고, 구름 수명을 증가시켜 구름의 알베도 효과가 지속되는 현상이다. 이와 같이 에어로졸-구름 간의 상호작용은 기후변화의 이해와 예측에 있어 중요한 역할을 한다. 지난 몇 세기동안 진행된 급진적 산업화는 에어로졸의 급격한 증가를 초래하였고, 이는 기후변화에 큰 영향인자로 작용하여 기후변화에 직간접적으로 영향을 주었다. 이와 관련된 연구는 정부간기후변화협의체(Intergovernmental Panel on Climate Change, IPCC) 제4차와 제 5차 평가보고서에도 잘 요약되어 있다(IPCC, 2007; IPCC, 2013).

구름방울은 대기 중 에어로졸의 일부인 구름응결핵의 비균질 핵화 과정을 통한 응결성장에 의해 생성된다(Mason, 1971; Twomey, 1977). 구름 생성은 에어로졸의 물리화학적 특성과 주변의 온도, 습도, 압력, 그리고 상승속도 등 다양한 기상변수의 영향을 받으며, 그 영향은 비선형적으로 나타난다. 선행연구에서는 CCN 관측자료 확보의 어려움과 컴퓨터 계산능력의 한계 때문에 에어로졸과 CCN의 상관관계를 이용하여 CCN 분포를 유추하고 이로부터 생성가능한 구름 입자 수농도(cloud droplet number concentration, CDNC)를 결정하는 방법을 주로 사용하였다(Squires, 1958; Twomey, 1959; Jones et al., 1994). 그러나 이러한 결과는 일정 기간과 일부 지역에 제한된 관측 자료를 기반으로 산출된 것으로서 구름응결핵 활성화 과정에 시·공간적인 에어로졸의 변화와 기상장의 변화를 고려하지 못하기 때문에 에어로졸-구름의 상관관계를 현실적으로 모의하기 어렵다. 최근에는 컴퓨터 계산능력의 급격한 향상으로 인해 지역적 특성 및 에어로졸의 물리적, 화학적 특성을 고려한 구름응결핵 활성화 과정을 계산하는 방법이 적용되고 있다. 그 중, 켈러 이론은 구름응결핵이 구름방울로 활성화되는 과정을, 에어로졸에 수증기가 응결하여 생성되는 용액입자의 표면장력 변화를 고려한 곡률 효과(켈빈 효과)와 화학적 영향을 고려한 용질효과(라울 효과)의 경쟁에 의해 결정된다는 것을 설명한다. 켈러 이론을 이용한 구름방울 활성화 과정을 모수화하는 방법은 여러 종류가 존재하지만, 에어로졸의 간접효과의 차이가 10% 이내로 나타나므로(Ghan et al., 2011), 본 연구에서는 그 중 하나인 Abdul-Razzak and Ghan (2000)의 연구에서 제시한 방법을 이용하였다(이하 ARG scheme). 이 방법은 여러 중규모 모형과 대기대순환 모형에 적용되고 있으며, ARG scheme을 사용하는 대표적인 수치모형을 Table 1에 정리하였다(Wang and Penner, 2009; Ghan et al., 2011; West et al., 2014).

Table 1. List of models that use Abdul-Razzak and Ghan (2000) activation scheme.

Model name	Type
MIRAGE	Global
CAM3	Global
SPRINTARS	Global
HadGEM-UKCA	Global
MM5	Regional
WRF	Regional
NASA Langley CRM	Cloud-resolving
MACM	Multiscale

켈러 이론에서의 용질효과는 에어로졸의 화학적 특성 중 흡습도(hygroscopicity)를 대표하여 나타낸다. 용질효과는 다양한 방법으로 계산 가능한데(Rose et al., 2008), 본 연구에서는 에어로졸의 삼투 계수(osmotic coefficient)를 사용하는 방법(이하 OSM 방법; Abdul-Razzak et al., 1998)과 유효 흡습도(effective hygroscopicity parameter, κ ; Petters and Kreidenweis, 2007)를 고려하는 κ -Köhler 방법(이하 KK 방법; Petters and Kreidenweis, 2007)을 이용하여 용질효과를 계산하였다. OSM 효과를 이용한 방법은 에어로졸의 물리화학적 특성을 반영하기 위해 이온 개수와 분자량 등의 다양한 에어로졸 정보를 이용하여 용질효과를 계산한다(Seinfeld and Pandis, 2006). 이 방법의 경우 에어로졸 정보를 충분히 알고 있을 때 신뢰도가 높은 용질효과 값을 얻을 수 있으나, 에어로졸 정보가 제한적인 경우 계산 시 요구되는 이온 개수나 삼투 계수를 구하는 것에 어려움이 있다. 반면, KK 방법은 에어로졸 구성 성분을 에어로졸의 흡습성으로 간단히 표시하기 위해 사용되었던 κ 값을 이용하여 에어로졸의 화학적 특성을 대표하는 용질효과를 간단하게 구할 수 있는 방법으로 여러 모형과 관측 연구에서 널리 활용되고 있다(e.g., Kim et al., 2008; Snider and Petters, 2008; Spracklen et al., 2008; Gunthe et al., 2009; Reutter et al., 2009; Rose et al., 2010; Kim et al., 2014; Chang et al., 2017; Kim et al., 2017).

본 연구에서는 켈러 이론에서 용질효과를 계산하는 방법 중 KK 방법이 OSM 방법의 어려움을 보완함과 함께 OSM 방법과 유사한 성능을 보이는지 확인하였다. 수치실험을 위해 중규모 대기화학모형인 WRF-CHEM (Weather Research and Forecasting model coupled with Chemistry)을 이용하였고, 켈러 이론을 기본으로 한 ARG scheme에 OSM 방법과 KK 방법을 적용하여 다섯 가지 대표 에어로졸 성분군에 대한 용질효과를 산출하였다. 그리고 각각의 방법을 이용했을 때 모형을 통해 산출된 흡습도, 연직 구름방울 수농도, 그리고 기상장이 서로 얼마나 다른 지 비교

분석하였다.

이 논문의 2장에서는 ARG scheme과 용질효과 계산 방법을 소개하고, 3장에서는 실험 설계 및 자료를 설명한다. 4장에서는 두 가지 용질효과 계산방법을 이용하여 산출된 구름 형성 결과를 비교 분석하였다. 마지막으로 5장에서는 중규모 모형에서 용질효과 계산 방법의 활용에 대한 요약 및 결론을 제시한다.

2. ARG Scheme을 이용한 구름방울 활성화 과정 모수화 방법

필러 이론을 이용하여 구름방울 활성화 과정을 계산하는 방법은 Abdul-Razzak et al. (1998)과 Abdul-Razzak and Ghan (2000)에서 제시한 방법(ARG scheme)을 사용하며, 그 식은 아래와 같다(Pruppacher and Klett, 2010; Khvorostyanov and Curry, 2014):

$$S = \frac{A}{r} - \frac{Ba^3}{r^3} \quad (1)$$

여기서 S 는 과포화도, r 은 구름방울의 반지름, a 는 건조 에어로졸의 반지름, A 와 B 는 각각 입자의 곡률효과와 용질효과를 나타내는 계수로 아래와 같다(Abdul-Razzak et al., 1998):

$$A \equiv \frac{2\sigma M_w}{\rho_w RT} \quad (2)$$

$$B \equiv \frac{\nu\phi_s \varepsilon_m M_w \rho_{ap}}{M_{ap} \rho_w} \quad (3)$$

식 (2)에서 A 는 곡률효과(Kelvin effect)를 나타내며 에어로졸에 수증기가 응결하여 생성된 용액입자의 표면장력 변화가 구름방울 활성화 과정에 미치는 영향을 나타낸다. σ 는 구름방울의 표면장력, M_w 는 구름방울의 분자량, ρ_w 는 구름방울의 밀도, R 은 보편 기체상수 그리고 T 는 온도를 나타낸다. 식 (3)에서 B 는 삼투 계수(osmotic coefficient)를 고려한 용질효과를 나타내며, 변수 ν 는 삼투 현상에 의해 용액입자에서 이온화 된 분자의 이온 수(반트 호프 계수), ϕ_s 는 삼투 계수, ε_m 은 구름방울의 질량에 대한 건조 에어로졸의 질량비(= m_{ap}/m_w , m_{ap} 는 건조 에어로졸의 질량, m_w 는 구름방울의 질량), M_{ap} 는 에어로졸의 분자량, 그리고 ρ_{ap} 는 에어로졸의 밀도를 나타낸다(Hänel, 1976; Kreidenweis et al., 2005; Svenningsson et al., 2006).

식 (1)을 이용하여 임계 과포화도와 최대 과포화도를 다시 쓰면 아래와 같다(Seinfeld and Pandis, 2006; Pruppacher and Klett, 2010; Khvorostyanov and Curry, 2014):

$$S_m = \frac{2}{\sqrt{B}} \left(\frac{A}{3a_m} \right)^{3/2} \quad (4)$$

$$S_{max} = \frac{2}{\sqrt{B}} \left(\frac{A}{3a_c} \right)^{3/2} \quad (5)$$

여기서 S_m 은 a_m 의 반경을 가지는 에어로졸이 활성화되어 구름방울로 성장할 수 있는 임계 과포화도를 말한다. S_{max} 는 공기덩이가 등속단열상승 한다고 가정했을 때 가질 수 있는 최대 과포화도를 나타내며 이러한 조건하에서 활성화될 수 있는 에어로졸 입자의 최소 반지름은 a_c 이다.

중규모 대기화학모형인 WRF-Chem 모형의 에어로졸 모듈 Modal Aerosol Dynamics model for Europe/Secondary organic aerosol model (MADE/SORGAM; Ackermann et al., 1998; Schell et al., 2001)은 에어로졸의 크기별로 핵형성과 에이킨 모드(Nucleation and Aitken mode), 누적모드(accumulation mode), 그리고 거대 모드(coarse mode) 등 세 가지 모드로 분류하여 계산한다. 이와 같은 다중모드 에어로졸은 대수정규 분포(multimode lognormal distribution)를 가정하며 (Von der Emde and Wacker, 1993), 구름방울로 활성화되는 에어로졸의 비율은 아래와 같이 나타낸다 (Abdul-Razzak et al., 1998).

$$\frac{N}{N_{ap}} = \frac{1}{2} [1 - \text{erf}(u)] \quad (6)$$

$$u = \frac{2 \ln \left(\frac{S_m}{S_{max}} \right)}{3 \sqrt{2 \ln \sigma_{ap}}} \quad (7)$$

여기서 N 은 구름방울로 활성화된 에어로졸의 수농도를 나타내며, N_{ap} 는 에어로졸의 수농도, σ_{ap} 는 다중모드 분포를 가지는 에어로졸 반지름의 모드별 표준편차를 나타낸다.

2.1 OSM 방법

단일한 화학적 조성의 에어로졸에 대한 용질효과는 식 (3)과 같이 나타내지만, 크기와 종류가 다양한 다중모드 에어로졸을 고려할 경우 크기별(모드, i) 용질효과 B_{iOSM} 은 다음과 같이 나타낼 수 있다(Abdul-Razzak and Ghan, 2000):

$$B_{iOSM} \equiv \frac{M_w \sum_{j=1}^J r_{ij} \nu_{ij} \phi_{ij} \varepsilon_{ij} / M_{ap}}{\rho_w \sum_{j=1}^J r_{ij} / \rho_{ap}} \quad (8)$$

여기서 사용되는 변수는 식 (3)과 동일하며, 아래 첨자 i 는 각 크기별 모드에 해당하는 변수, 그리고 j 는 에어로졸 화학성분 번호를 의미한다. r_{ij} 는 에어로졸 크기모드 i 와 화학성분 j 의 질량비를 나타낸다.

Table 2. List of aerosol hygroscopicity used in κ -Köhler experiment.

Chemical	Hygroscopicity	Reference
SO ₄	0.50	Petters and Kreidenweis (2007)
NO ₃	0.67	Petters and Kreidenweis (2007)
OC	0.10	Pringle et al. (2010)
Dust	0.03	Koehler et al. (2009)
NaCl	1.10	Zieger et al. (2017)

OSM 방법은 B_j 를 직접 계산하므로 에어로졸의 화학구성에 대한 정확한 정보가 제공되어야 계산 가능하다. 따라서 에어로졸 구성성분의 농도에 따라 변하는 반트 호프 계수와 분자화학모형을 통해 얻은 삼투 계수 등 에어로졸의 물리화학적 특성을 나타내는 변수에 대한 값을 확보하는 어려움이 있으며, 복잡한 계산과정을 거쳐야 하는 어려움도 존재한다(Lyubartsev and Laaksonen, 1997; Chýlék and Wong, 1998).

2.2 KK 방법

KK 방법은 OSM 방법에 비해 켈러 방정식의 용질 효과 계산이 용이하며, 에어로졸의 화학적 특성을 나타내는 값을 확보하는 것에 대한 수고로움이 적다. 즉, 용질효과 계산과정을 단순화하고자 에어로졸의 화학적 특성에 따른 유효흡습도 κ 값으로 이용하는 방법이다(Petters and Kreidenweis, 2007). κ 는 에어로졸의 입자 크기별(모드별) 화학성분 혼합 비율을 이용하여 에어로졸의 흡습도를 간단히 표현하는 방법으로, 관측을 통해서도 그 값을 얻을 수 있다. 본 연구에서는 관측을 통해 얻은 κ_j 를 이용하였으며, 주요 에어로졸의 화학성분별 κ_j 값은 Table 2에 정리하였다. κ_j 를 이용하여 모드별 대표 흡습도 B_{iKK} 를 나타내면 다음과 같다:

$$B_{iKK} \equiv \sum_{j=1}^J \varepsilon_{ij} \kappa_j \quad (9)$$

여기서 아래 첨자는 식 (8)에서 사용한 것과 동일하며, ε_{ij} 는 모드별 에어로졸 구성성분의 부피비율을 나타낸다. κ_j 는 에어로졸 종류별 흡습도를 나타내며, 주로 각 에어로졸의 구성성분에 대한 관측 값이나 실험을 통해 측정된 값을 이용하게 된다. 입자의 크기가 동일할 경우, κ_j 가 높을수록 CCN 으로 활성화되기 쉽다(Petters and Kreidenweis, 2007).

KK 방법의 경우 에어로졸의 물리화학적 특성과 관련한 변수(e.g., 반트 호프 계수, 삼투 계수, 분자량, 밀도)에 대한 정보 없이도 에어로졸의 화학성분별 흡습도와 부피비를 이용하여 모드별 대표 흡습도를 계산할 수 있다는 장점이 있다. 한 예로, 유기화합물의 경우 여러 화학종(예, fulvic acid $\kappa=0.067$, malonic acid $\kappa=0.2\sim0.6$ 등; Petters and Kreidenweis, 2007)의 대표

성을 띄는 물리화학적 특성을 포함해야 하는데, KK 방법을 이용하게 되면 유기화합물을 대표할 수 있는 κ 를 실험이나 관측을 통해 찾아냄으로써 유기화합물의 일반적인 흡습성 특성을 표현할 수 있다. 모형으로 구현해야 하는 범위가 넓어질수록 모형에 포함되는 지역의 에어로졸 화학구성에 대한 각 화학종의 물리화학적 특성 정보를 얻기 힘들다. KK 방법은 해당 지역의 관측이나 실험을 통해 얻은 κ 값을 직접 이용할 수 있기 때문에 해당 지역에만 존재하는 특정 에어로졸의 물리화학적 특성 정보가 존재하지 않는 경우에도 용질효과를 고려할 수 있어 중규모 모형이나 전 지구 모형과 같이 여러 규모의 모형에서 활용이 용이하다. 최근에는 에어로졸이 구름방울로 활성화되는 과정의 계산을 위해 에어로졸 화학적 특성의 영향을 간단하게 고려하는 KK 방법을 이용하는 추세이며, 이를 관측 및 모형 연구 등 많은 연구에도 활용하는 중이다(Kim et al., 2008; Snider and Petters, 2008; Spracklen et al., 2008; Gunthe et al., 2009; Reutter et al., 2009; Rose et al., 2010; Chang et al., 2017).

3. 실험 설계 및 자료

본 연구에서는 구름방울 활성화 과정 모수화 방법의 차이에 따른 모형 결과의 민감도 실험을 진행하기 위해 WRF-Chem 대기화학모형(Weather Research and Forecasting model coupled with Chemistry version 3.8.1)을 이용하였다(Grell et al., 2005; Fast et al., 2006; Peckham et al., 2011). 구름방울 활성화 과정 모수화는 ARG scheme을 사용하며, CDNC 계산 시 에어로졸의 특성정보, 연직속도, 온도, 압력의 함수를 이용하기 때문에 에어로졸의 수농도, 화학성분, 크기분포에 대한 정보가 포함되어 에어로졸-구름 상호작용에 의한 효과(예, 복사수지 변화, 강수 특성, 구름 발달 특성 등)를 연구할 경우 사용하기 적합하다(Chapman et al., 2009). 구름형성과정에서 중요한 인자인 상승속도는, 아격자 규모에서의 상승속도를 나타내기 위해 정규분포를 가정한 확률밀도함수를 사용한다(Chuang et al., 1997; Ghan et al., 1997).

ARG scheme 내에서 용질효과를 계산하는 방법의

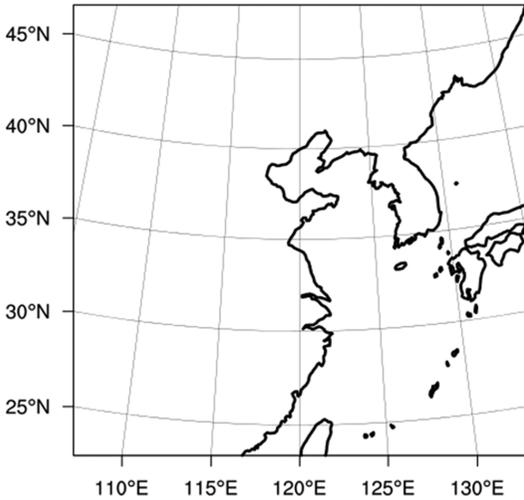


Fig. 1. WRF model domain.

차이가 모형의 성능에 영향을 주는지 확인하기 위하여 삼투 계수를 이용한 OSM 실험(osmotic coefficient method experiment, OSM)과 κ 를 이용하는 KK 실험(κ -Köhler method experiment, KK)을 진행하였다.

수치실험의 모의 영역은 남북으로는 20°~50°N, 동서로는 105°~135°E으로 동아시아 지역을 포함하며 (2,700 km × 2,700 km), 18 km의 수평격자를 가진다(Fig. 1). 연직으로는 지상에서부터 100 hPa까지 50개의 층으로 구성하며, 지형추적-정역학기압 연직좌표를 이용하기 때문에 연직 격자간격은 에타 연직층(eta levels)을 사용하고, m 단위로 환산했을 때에는 50 m부터 시작하여 최대 400 m 사이의 간격을 가진다.

초기와 경계 조건을 생성하기 위해 사용한 자료는 National Center for Environment Prediction-Climate Forecast System Reanalysis (NCEP-CFSR) 자료로 해상도는 수평으로 0.5° × 0.5°, 연직으로 40개의 층, 6 시간 간격을 가진다. 적분 수행 기간은 CCN 및 에어로졸 흡습도 관측 값이 존재하는 2015년 5월부터 6월(Kim et al., 2017) 중 하층운이 도메인 영역에서 많았던 기간인 2015년 6월 24일부터 27일까지 총 3일이다. 적분 수행 기간 동안 6시간 간격으로 재분석장을 이용한 4DDA (4 Dimensional Data Assimilation) 분석 넛징(analysis nudging) 기법을 적용하였다. 적운 모수화는 Grell 3-dimensional Ensemble Scheme (Grell and Devenyi, 2002), 미세물리 모수화는 Morrison 2-moment 방법(Morrison et al., 2009) 단파와 장파 복사 전달 과정은 Rapid and accurate Radiative Transfer Model for GCM (RRTMG; Iacono et al., 2008), 대기 경계층 모수화는 Yonsei University방법(YSU scheme; Hong et al., 2006), 지면 모수화는 Unified NOAH (NCEP Oregon State University, Air Force, and Hydrologic Research Lab's) Land Surface Model (Tewari et al., 2004)를 사용하였다(Table 3). 본 연구에서는 적운 모수화 내에서 아격자 규모 상승류에 의한 구름방울 수농도의 변화를 반영하지 않았기 때문에, 적운발생 지역에서 구름방울 수농도를 상대적으로 적게 모의할 가능성이 있어 관측 자료와 비교 시 주의가 필요하다.

기체상 및 에어로졸 화학 변환 과정 계산은 에어로졸의 액상 반응을 포함하는 Regional Atmospheric Chemistry Mechanism 2 (RACM2; Goliff et al., 2013) 와 MADE/SORGAM (Ackermann et al., 1998; Schell

Table 3. Summary of the numerical model setup.

Physical/Chemical processes	Options
Model/Initial Data	WRF-Chem V3.8.1/NCEP CFSR (0.5° × 0.5°, 6-hourly)
Run time	From 0000 UTC 24 to 0000 UTC 27 June 2015 (72 hr)
Horizontal grid spacing/time step	18 km (150 × 150, 2,700 km × 2,700 km)/90 s
Vertical level	50 layers (~100 hPa)
Assimilation technique	Four-Dimensional Data Assimilation
Cumulus parameterization	Grell 3-dimensional Ensemble Scheme
Microphysics parameterization	Morrison 2-moment scheme
Longwave and shortwave radiation	Rapid and accurate Radiative Transfer Model for GCM
Land surface model	Unified NOAH LSM
Gas chemistry	Regional Atmospheric Chemistry Mechanism 2
Aerosol mechanism	MADE/SORGAM
Anthropogenic emission data	EDGAR-HTAP
Natural emission data	MEGAN

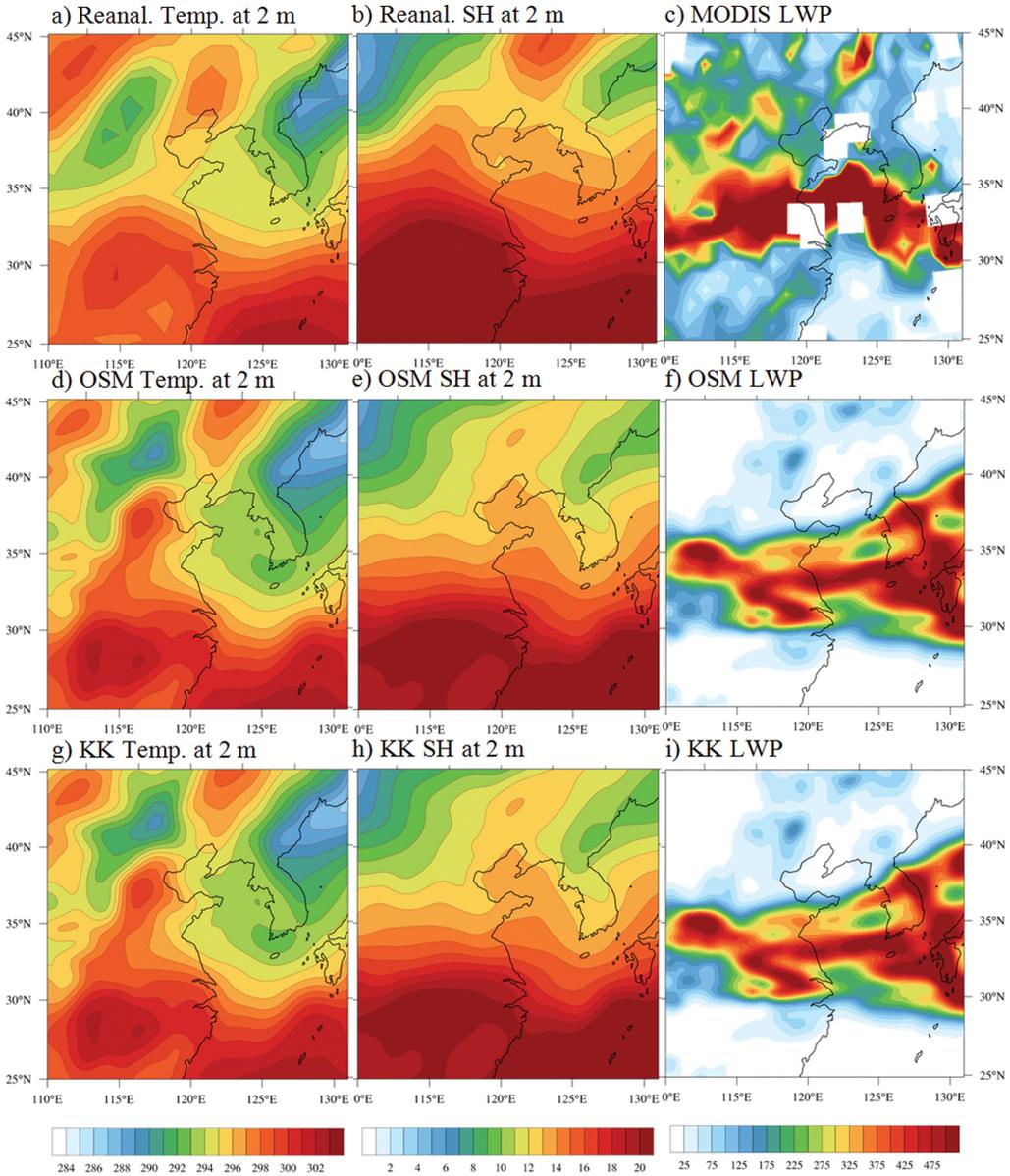


Fig. 2. Reanalysis and satellite (first row), OSM (osmotic equation) experiment (second row), and KK (κ -Kohler equation) experiment (third row) data for 3-day (0000 UTC 24~0000 UTC 27 June 2015) average temperature at 2 m altitude (first column, K), specific humidity at 2 m altitude (second column, $g\ kg^{-1}$), and liquid water path (LWP) (third column, $g\ m^{-2}$).

et al., 2001)을 이용하였다. MADE/SORGAM은 에어로졸의 크기분포가 세 개의(핵형성 모드, 누적 모드, 그리고 거대 모드) 다중모드 대수정규분포를 가진다고 가정한다. 인위적 배출량은 Emissions Database for Global Atmospheric Research - Hemispheric Transport of Air Pollution (EDGAR-HTAP; Janssens-Maenhout et al., 2015) 자료를 이용하였으며, 자연적 배출량은

Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature (MEGAN; Guenther et al., 2006) 자료를 이용하였다.

4. 모형 결과 검증 및 토의

NCEP과 NCAR (National Center for Atmospheric Research)에서 공동제작한 재분석장(NCEP/NCAR

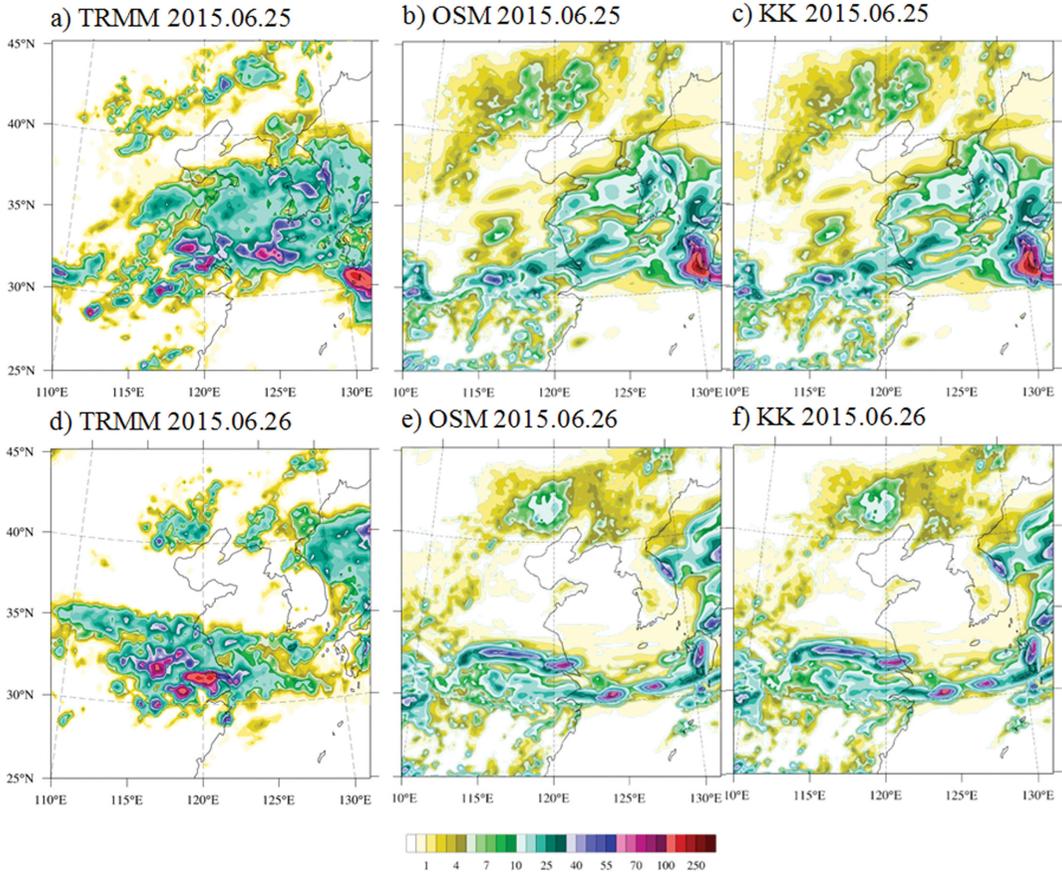


Fig. 3. 1-Day average precipitation (mm day^{-1}) from TRMM satellite (first column), OSM experiment (second column), and KK experiment (third column).

Reanalysis 1; Kalnay et al., 1996)을 이용하여 모형에서 산출한 기상장과 비교하였다. 또한, Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS/aqua) 자료를 이용하여 모형에서 산출한 액체수경로와 비교하였다. 본 연구에서 모형 결과와의 비료를 위해 사용한 일평균 재분석장 자료는 수평적으로 $\text{N}96(1.25^\circ \times 1.875^\circ)$ 간격, 192×145 격자의 분해능을 가진다. Figure 2는 재분석장 및 OSM과 KK 실험에서 산출된 2 m 고도에서의 온도와 비습, 그리고 MODIS 위성자료와 OSM, KK 실험에서 산출된 액체수경로의 3일(2015년 6월 24일~27일) 평균 자료를 보여준다. 전반적으로, 두 실험 모두 재분석장과 유사한 기상장을 모의하였다. 온도 분포의 경우 대부분의 지역에서 재분석장과 모형에서 산출된 값이 유사하나, 중국 산둥 지방의 경우는 두 실험 모두 재분석장에 비해 2~3 K 정도 높은 값을 모의하는 경향을 보였다. 액체수경로의 경우, 위성자료와 모형에서 산출된 자료 모두 300 g m^{-2} 이상을 보이는 지역이 동아시아지역의 동서 방향으로

분포하는 형태는 유사하지만, 위성자료에 비해 모형 결과에서 일본 및 동해지역($30^\circ\sim 40^\circ\text{N}$, 130°E)의 액체수경로를 과다모의함을 보였다. 하지만, OSM 실험과 KK 실험간의 차이는 미미하였다. OSM 방법과 KK 방법이 수치모형 결과에 주는 유효성을 확인하기 위하여 전 지구 대기모형과 대기화학모형이 접합된 HadGEM-UKCA (Hadley Centre Global Environmental Model-United Kingdom Chemistry and Aerosols; Mann et al., 2010; Hewitt et al., 2011)에 OSM 방법과 KK 방법을 적용시킨 결과와 위성관측자료 및 기후 자료를 비교하였다. 그 결과, OSM 방법과 KK 방법이 관측 자료와 0.8 이상의 상관관계를 가졌다.

Figure 3은 위성 자료인 Tropical Rainfall Measuring Mission (TRMM)의 3시간 간격 강수 자료로부터 산출한 일평균 강수량자료와 모형 결과이다. 25일 황해와 한반도지역($30^\circ\sim 40^\circ\text{N}$, $120^\circ\sim 130^\circ\text{E}$)을 덮는 40 mm day^{-1} 이하 강수의 공간적 분포는 TRMM 결과와 유사하나 40 mm day^{-1} 이상의 강수는 잘 모의하지 못하였다.

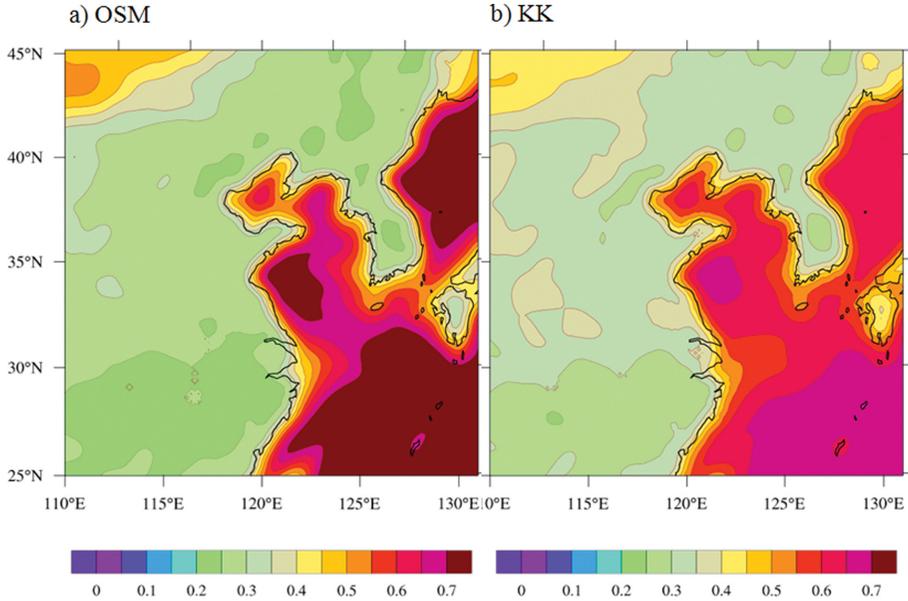


Fig. 4. Hygroscopicity parameter values from OSM experiment (a) and KK experiment (b).

26일의 경우, 위성에서 위도 33°N 부근 120°E와 130°E 사이 길게 늘어지는 강수의 형태는 모의되었으나 중국 동부 지역 40 mm day⁻¹ 이상의 강수는 잘 모의하지 못하였다. 본 연구에서 사용한 Morrison 2-moment 미세물리 모수화 방법은 에어로졸의 간접효과를 반영하며, 여러 종류 수상체의 수농도와 혼합비를 모두 고려함에 따라 강수과정의 복잡성을 표현할 수 있다는 장점이 있지만, 관측에 비해 강수를 남동쪽으로 치우치게 모의하며, 강수 강도를 약하게 모의된다는 보고가 있어 결과 해석에 주의가 필요하다(Clark et al., 2012). 위성관측 자료와 모형 결과의 차이는 위성 자료의 오차도 포함한다. TRMM 위성이 2014년부터 2016년 사이에 아시아 지역에서 40 mm day⁻¹ 이하의 강수를 과다모의 하는 경향이 있다고 보고된 바 있으며(Wang et al., 2017), 본 연구에서는 황해상에서의 강수량의 차이에 적용되었을 가능성이 있다.

모형이 계산한 대표 흡습도는 이전 연구에서 제시한 해양과 육지 평균값(각각 0.72 ± 0.24과 0.27 ± 0.21; Andreae and Rosenfeld, 2008; Pringle et al., 2009; Chang et al., 2017)과 유사한 값을 산출하였다. Figure 4를 보면 해양지역에서는 OSM에서 산출한 흡습도(0.6~0.75)보다 KK 실험에서 산출한 흡습도(0.6~0.7)가 전반적으로 조금 낮은 값을 보였으며, 육지에서는 OSM 실험에서 산출한 흡습도(0.2~0.3)보다 KK 실험에서 산출한 흡습도(0.25~0.35)가 조금 높은 경향을 보인다. 에어로졸의 대표 흡습도는 서로 다른 흡습성을 가지는 화학종의 화학구성비의 영향을 받으며, 흡습

성이 높은 염화나트륨이나 황산화물의 비율이 높은 경우 대표 흡습도가 높아지고, 흡습성이 낮은 일부 유기화합물이나 황사입자의 비율이 높을 경우 대표 흡습도가 낮아진다. 에어로졸의 화학구성비가 동일한 경우에도 관측된 대표 흡습도와 이론적으로 계산한 대표 흡습도가 다르게 나타날 수 있는데, 에어로졸이 용질로 작용을 할 때 실제 대기에서 나타나는 에어로졸의 화학적 특성과 이론상의 에어로졸의 화학적 특성이 다르게 나타날 수 있기 때문이다(Wex et al., 2005). Petters and Kreidenweis (2007)는 화학구성이 알려진 상황에서 관측된 κ 와 이론적으로 계산된 κ 값을 비교하였는데, 황산화물이나 염화나트륨의 비율이 유기화합물보다 높은 경우(e.g., fulvic : 황산화물 : 염화나트륨 = 1 : 3 : 5) 이론적으로 계산한 κ 값이 관측된 κ 값보다 높게 나타났고, 유기화합물의 화학구성비가 높은 경우(e.g., adipic acid : 황산화물 = 11 : 9, norpinic acid : 황산화물 = 9 : 1)에는 이론적으로 계산한 κ 값이 관측된 κ 값보다 낮게 나타났다. 대체로, 해양의 경우 염화나트륨과 황산화물의 비율이 대체로 높은 편이며(Zhang et al., 2010) 육지의 경우 유기화합물의 비율이 높다(Snyder et al., 2016). 이러한 선행연구 결과는 본 실험에서 나타난 KK 실험과 OSM 실험의 해양과 육지의 흡습도의 차이와도 일부 일치하는 결과이다.

기상조건과 에어로졸의 크기가 동일할 때 흡습도가 높은 입자의 구성 비율이 높은 경우 구름방울로 활성화되는 에어로졸의 수는 증가하며, 이는 에어로졸의 유입과 구름방울 생성이 활발한 운저고도에서 민감하

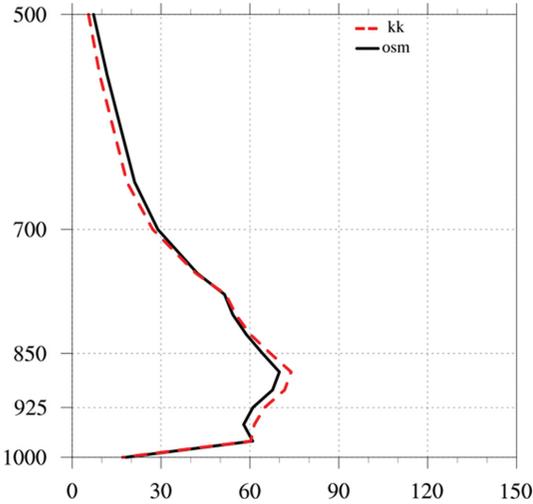


Fig. 5. Vertical profiles of domain averaged cloud droplet number concentration (cm^{-3}) from OSM experiment (black solid line) and KK experiment (red dashed line).

게 나타난다. Figure 5는 도메인 평균 CDNC의 연직 분포를 나타낸다. 평균 CDNC의 연직 분포는 OSM 실험과 KK 실험 모두 대체로 유사한 범위에서 나타났다. 연직 CDNC의 차이는 925 hPa부터 850 hPa 사이에서 주로 나타났으며, 해당 구간에서 두 실험 간의 CDNC 차이는 최대 2.51 cm^{-3} 정도(이때, OSM 실험의 CDNC는 68.3 cm^{-3} , KK 실험의 CDNC는 70.8 cm^{-3})로 약 5% 이내의 차이를 보였다. Figure 6는 925 hPa에서 OSM 실험과 KK 실험 간의 평균 CDNC 차이의 수평 분포이다. 두 실험 간의 CDNC 차이는 중국 내륙 지역에서 주로 나타난다. OSM 실험보다 KK 실험이 더 높은 CDNC를 보이며 두 실험의 최대 차이를 나타내는 중국 동부지역($33.5^{\circ}\sim 34^{\circ}\text{N}$, $115.5^{\circ}\sim 116^{\circ}\text{E}$)의 평균 OSM 실험과 KK 실험의 차이 값은 -4.00 cm^{-3} 를 그 외의 지역에선 이보다 적은 차이를 보이며 연직 CDNC 분포에서 보인 차이와 유사한 결과를 나타낸다. 하지만, 해양 지역에서는 그 차이가 뚜렷하지 않았다(Fig. 6). 이는 해양 지역의 κ 가 두 실험 모두 에어로졸이 구름방울로 활성화 되기에 충분히 높은 값이기 때문에 κ 가 조금 더 증가한다 하더라도 CDNC 변화에 영향을 미치지 못한 것으로 추정된다. 반면, 육지에서의 CDNC의 차이는 황산화물이나 유기화합물과 같은 인류기원의 인위적 에어로졸 배출이 많았던 중국 내륙 지역에서 KK 실험이 좀 더 높은 κ 값을 산출했기 때문으로 생각되나, 차이 값은 수평과 연직 평균 CDNC 값의 5% 미만으로 미미한 수준이다.

4DDA의 포함하지 않은 경우에도 흡습도, 평균

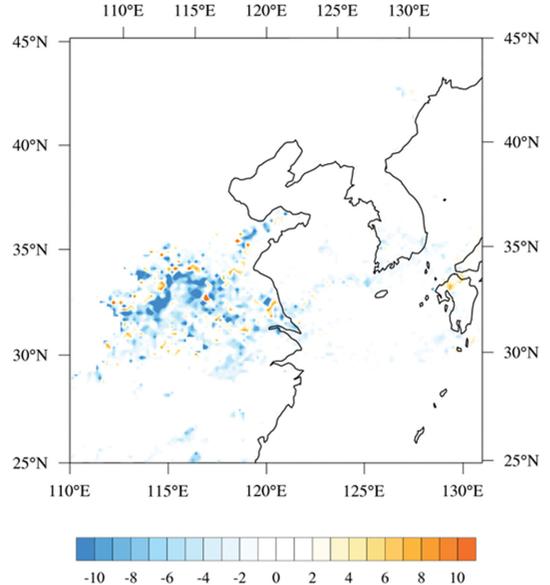


Fig. 6. 3-Day (0000 UTC 24~0000 UTC 27 June 2015) averaged cloud droplet number concentration (cm^{-3}) difference between OSM experiment and KK experiment at 925 hPa.

CDNC의 연직분포, 2 m 고도 온도의 경우 4DDA를 포함한 실험과 유사한 결과를 보였으며(본문에서는 보이지 않았음), 강수량의 경우에는 4DDA를 포함한 실험과 포함하지 않은 실험 간의 차이는 있으나 4DDA를 포함하지 않은 OSM 실험과 KK 실험 간의 차이는 미미하였다.

5. 요약 및 결론

본 연구에서는 구름 형성 과정 중 에어로졸의 화학적 특성을 고려한 용질효과 계산 방법의 활용성을 검증하기 위하여 OSM과 KK 실험을 수행하였다. 두 방법으로 5가지 주요 에어로졸 화학성분을 고려하여 κ 를 산출하였는데 두 실험 간의 산출된 κ 값 차이가 5% 이내로 나타났으며 이는 선행연구 결과와 유사하다(Petters and Kreidenweis, 2007; Andreae and Rosenfeld, 2008; Pringle et al., 2009; Chang et al., 2017). 두 실험에서 모의한 기상장의 경우, 유사한 분포의 지면온도와 강수량을 모의하였으며, 재분석결과도 유사한 모습을 보이며 모형 결과가 용질효과 계산 방법의 차이에 대해 민감하게 변하지 않았음을 알 수 있다.

KK 방법은 용질효과를 계산하는데 있어서 OSM 방법에 비해 사용하는 변수를 최소화하고 계산과정을 줄임으로써 용질효과를 효율적으로 계산해낼 수 있어

기존의 OSM 방법을 대체 가능한 것으로 사료된다. 이 방법은 추후에 보다 다양한 에어로졸의 종류를 고려할 경우 매우 유용할 것이다. 특히, 유기화합물이 약 45% 정도의 비율을 차지하고 있는 동아시아 지역의 경우(Kim et al., 2017) KK 방법은 여러 캠페인을 통해 관측된 값을 직접 적용하여 지역적 특성을 고려한 구름 형성 과정 연구에도 유용하게 사용될 수 있을 것으로 기대된다.

감사의 글

본 연구는 기상청 기상기술개발사업(KMIPA 2015-2061)의 일환으로 수행되었습니다.

REFERENCES

- Abdul-Razzak, H., S. J. Ghan, and C. Rivera-Carpio, 1998: A parameterization of aerosol activation. Part I: Single aerosol type. *J. Geophys. Res.*, **103**, 6123-6131.
- _____, and _____, 2000: A parameterization of aerosol activation: 2. Multiple aerosol types. *J. Geophys. Res.*, **105**, 6837-6844.
- Ackermann, I. J., H. Hass, M. Memmesheimer, A. Ebel, F. S. Binkowski, and U. Shankar, 1998: Modal aerosol dynamics model for Europe: Development and first applications. *Atmos. Environ.*, **32**, 2981-2999.
- Albrecht, B. A., 1989: Aerosols, cloud microphysics and fractional cloudiness. *Science*, **245**, 1227-1230.
- Andreae, M. O. and D. Rosenfeld, 2008: Aerosol-cloud precipitation interactions. Part 1. The nature and sources of cloud-active aerosols. *Earth. Sci. Rev.*, **89**, 13-41.
- Chang, D. Y., J. Lelieveld, H. Tost, B. Steil, A. Pozzer, and J. Yoon, 2017: Aerosol physicochemical effects on CCN activation simulated with the chemistry-climate model EMAC. *Atmos. Environ.*, **162**, 127-140, doi:10.1016/j.atmosenv.2017.03.036.
- Chapman, E. G., W. I. Gustafson Jr., J. C. Barnard, S. J. Ghan, M. S. Pekour, and J. D. Fast, 2009: Coupling aerosol-cloud-radiative processes in the WRF-Chem model: Investigating the radiative impact of large point sources. *Atmos. Chem. Phys.*, **9**, 945-964.
- Chuang, C. C., J. E. Penner, K. E. Taylor, A. S. Grossman, and J. J. Walton, 1997: An assessment of the radiative effects of anthropogenic sulphate. *J. Geophys. Res.*, **102**, 3761-3778.
- Chýlek, P. and J. G. D. Wong, 1998: Erroneous use of the modified Köhler equation in cloud and aerosol physics applications. *J. Atmos. Sci.*, **55**, 1473-1477.
- Clark, A. J., and Coauthors, 2012: An overview of the 2010 hazardous weather testbed experimental forecast program spring experiment. *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, **93**, 55-74, doi:10.1175/BAMS-D-11-00040.1.
- Fast, J. D., W. I. Gustafson Jr., R. C. Easter, R. A. Zaveri, J. C. Barnard, E. G. Chapman, G. A. Grell, and S. E. Peckham, 2006: Evolution of ozone, particulates, and aerosol direct forcing in an urban area using a new fully-coupled meteorology, chemistry, and aerosol model. *J. Geophys. Res.*, **111**, D21305.
- Ghan, S. J., L. R. Leung, R. C. Easter, and H. Abdul-Razzak, 1997: Prediction of cloud droplet number in a general circulation model. *J. Geophys. Res.*, **102**, 21777-21794.
- _____, and Coauthors, 2011: Droplet nucleation: Physically based parameterizations and comparative evaluation. *J. Adv. Model. Earth Syst.*, **3**, M10001, doi:10.1029/2011MS000074.
- Goliff, W. S., W. R. Stockwell, and C. V. Lawson, 2013: The regional atmospheric chemistry mechanism, version 2. *Atmos. Environ.*, **68**, 174-185, doi:10.1016/j.atmosenv.2012.11.038.
- Grell, G. A. and D. Devenyi, 2002: A generalized approach to parameterizing convection combining ensemble and data assimilation techniques. *Geophys. Res. Lett.*, **29**, 1693-1696.
- _____, S. E. Peckham, R. Schmitz, S. A. McKeen, G. Frost, W. C. Skamarock, and B. Eder, 2005: Fully coupled "online" chemistry within the WRF model. *Atmos. Environ.*, **39**, 6957-6975.
- Guenther, A., T. Karl, P. Harley, C. Wiedinmyer, P. I. Palmer, and C. Geron, 2006: Estimates of global terrestrial isoprene emissions using MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature). *Atmos. Chem. Phys.*, **6**, 3181-3210.
- Gunthe, S. S., and Coauthors, 2009: Cloud condensation nuclei in pristine tropical rainforest air of Amazonia: size-resolved measurements and modeling of atmospheric aerosol composition and CCN activity. *Atmos. Chem. Phys.*, **9**, 7551-7575.
- Hänel, G., 1976: The properties of atmospheric aerosol particles as a function of relative humidity at thermodynamic equilibrium with the surrounding moist air. *Adv. Geophys.*, **19**, 73-188.
- Hewitt, H. T., D. Copey, I. D. Culverwell, C. M. Harris, R. S. R. Hill, A. B. Keen, A. J. McLaren, and E. C. Hunke, 2011: Design and implementation of the infrastructure of HadGEM3: the next generation Met

- Office climate modelling system. *Geosci. Model Dev.*, **4**, 223-253, doi:10.5194/gmd-4-223-2011.
- Hong, S.-Y., Y. Noh, and J. Dudhia, 2006: A new vertical diffusion package with an explicit treatment of entrainment processes. *Mon. Wea. Rev.*, **134**, 2318-2341.
- Iacono, M. J., J. S. Delamere, E. J. Mlawer, M. W. Shephard, S. A. Clough, and W. D. Collins, 2008: Radiative forcing by long-lived greenhouse gases: Calculations with the AER radiative transfer models. *J. Geophys. Res.*, **113**, D13103.
- IPCC, 2007: Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change [Solomon, S., D. Qin, M. Manning, Z. Chen, M. Marquis, K. B. Averyt, M. Tignor, and H. L. Miller (eds.)]. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, 976 pp.
- _____, 2013: Climate Change 2013: *The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change* [Stocker, T. F., D. Qin, G.-K. Plattner, M. Tignor, S. K. Allen, J. Boschung, A. Nauels, Y. Xia, V. Bex, and P. M. Midgley (eds.)]. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, 1535 pp.
- Janssens-Maenhout, G., and Coauthors, 2015: HTAP_v2.2: a mosaic of regional and global emission grid maps for 2008 and 2010 to study hemispheric transport of air pollution. *Atmos. Chem. Phys.*, **15**, 11411-11432.
- Jones, A., D. L. Roberts, and A. Slingo, 1994: A climate model study of indirect radiative forcing by anthropogenic sulfate aerosols. *Nature*, **370**, 450-453.
- Kalnay, E., and Coauthors, 1996: The NCEP/NCAR 40-Year Reanalysis Project. *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, **77**, 437-472.
- Khvorostyanov, V. I., and J. A. Curry, 2014: *Thermodynamics, Kinetics, and Microphysics of clouds*. Cambridge Univ. Press, 782 pp.
- Kim, D., C. Wang, A. M. L. Ekman, M. C. Barth, and P. J. Rasch, 2008: Distribution and direct radiative forcing of carbonaceous and sulfate aerosols in an interactive size resolving aerosol climate model. *J. Geophys. Res.*, **113**, D16309.
- Kim, J. H., S. S. Yum, S. Shim, W. J. Kim, M. Park, J.-H. Kim, M.-H. Kim, and S.-C. Yoon, 2014: On the sub-micron aerosol distributions and CCN number concentrations in and around the Korean Peninsula. *Atmos. Chem. Phys.*, **14**, 8763-8779, doi:10.5194/acp-14-8763-2014.
- Kim, N., and Coauthors, 2017: Hygroscopic properties of urban aerosols and their cloud condensation nuclei activities measured in Seoul during the MAPS-Seoul campaign. *Atmos. Environ.*, **153**, 217-232, doi:10.1016/j.atmosenv.2017.01.034.
- Koehler, K. A., S. M. Kreidenweis, P. J. DeMott, M. D. Petters, A. J. Prenni, and C. M. Carrico, 2009: Hygroscopicity and cloud droplet activation of mineral dust aerosol. *Geophys. Res. Lett.*, **36**, L08805.
- Kreidenweis, S. M., K. Koehler, P. J. DeMott, A. J. Prenni, C. Carrico, and B. Ervens, 2005: Water activity and activation diameters from hygroscopicity data - Part I: Theory and application to inorganic salts. *Atmos. Chem. Phys.*, **5**, 1357-1370.
- Lyubartsev, A. P., and A. Laaksonen, 1997: Osmotic and activity coefficients from effective potentials for hydrated ions. *Phys. Rev. E*, **55**, 5689-5696.
- Mann, G. W., K. S. Carslaw, D. V. Spracklen, D. A. Ridley, P. T. Manktelow, M. P. Chipperfield, S. J. Pickering, and C. E. Johnson, 2010: Description and evaluation of GLOMAP-mode: a modal global aerosol microphysics model for the UKCA composition-climate model. *Geosci. Model Dev.*, **3**, 519-551.
- Mason, B. J., 1971: *The physics of clouds: 2nd Ed.*, Oxford University Press, 671 pp.
- Morrison, H., G. Thompson, and V. Tatarskii, 2009: Impact of cloud microphysics on the development of trailing stratiform precipitation in a simulated squall line: comparison of one- and two-moment schemes. *Mon. Wea. Rev.*, **137**, 991-1007.
- Peckham, S., and Coauthors, 2011: *WRF-Chem Version 3.3 User's Guide*. NOAA Technical Memo., 94 pp.
- Petters, M. D., and S. M. Kreidenweis, 2007: A single parameter representation of hygroscopic growth and cloud condensation nucleus activity. *Atmos. Chem. Phys.*, **7**, 1961-1971.
- Pringle, K. J., H. Tost, A. Pozzer, U. Pöschl, and J. Lelieveld, 2010: Global distribution of the effective aerosol hygroscopicity parameter for CCN activation. *Atmos. Chem. Phys.*, **10**, 5241-5255, doi:10.5194/acpd-10-6301-2010.
- _____, K. S. Carslaw, D. V. Spracklen, G. M. Mann, and M. P. Chipperfield, 2009: The relationship between aerosol and cloud drop number concentrations in a global aerosol microphysics model. *Atmos. Chem. Phys.*, **9**, 4131-4144.
- Pruppacher, H. R., and J. D. Klett, 2010: *Microphysics of Clouds and Precipitation*. Springer, 954 pp.

- Reutter, P., H. Su, J. Trentmann, M. Simmel, D. Rose, S. S. Gunthe, H. Wernli, M. O. Andreae, and U. Pöschl, 2009: Aerosol and updraft-limited regimes of cloud droplet formation: influence of particle number, size and hygroscopicity on the activation of cloud condensation nuclei (CCN). *Atmos. Chem. Phys.*, **9**, 7067-7080.
- Rose, D., S. S. Gunthe, E. Mikhailov, G. P. Frank, U. Dusek, M. O. Andreae, and U. Pöschl, 2008: Calibration and measurement uncertainties of a continuous-flow cloud condensation nuclei counter (DMT-CCNC): CCN activation of ammonium sulfate and sodium chloride aerosol particles in theory and experiment. *Atmos. Chem. Phys.*, **8**, 1153-1179.
- _____, A. Nowak, P. Achtert, A. Wiedensohler, M. Hu, M. Shao, Y. Zhang, M. O. Andreae, and U. Pöschl, 2010: Cloud condensation nuclei in polluted air and biomass burning smoke near the megacity Guangzhou, China Part 1: Size-resolved measurements and implications for the modeling of aerosol particle hygroscopicity and CCN activity. *Atmos. Chem. Phys.*, **10**, 3365-3383, doi:10.5194/acp-10-3365-2010.
- Schell, B., I. J. Ackermann, H. Hass, F. S. Binkowski, and A. Ebel, 2001: Modeling the formation of secondary organic aerosol within a comprehensive air quality model system. *J. Geophys. Res.*, **106**, 28275-28293.
- Seinfeld, J. H., and S. N. Pandis, 2006: *Atmospheric Chemistry and Physics*. John Wiley and Sons, 1232 pp.
- Snider, G., and Coauthors, 2016: Variation in global chemical composition of PM_{2.5}: emerging results from SPARTAN. *Atmos. Chem. Phys.*, **16**, 9629-9653, doi:10.5194/acp-16-9629-2016.
- Snider, J. R., and M. D. Petters, 2008: Optical particle counter measurement of marine aerosol hygroscopic growth. *Atmos. Chem. Phys.*, **8**, 1949-1962.
- Spracklen, D. V., and Coauthors, 2008: Contribution of particle formation to global cloud condensation nuclei concentrations. *Geophys. Res. Lett.*, **35**, L06808.
- Squires, P., 1958: The microstructure and colloidal stability of warm clouds: II. The causes of the variations in microstructure. *Tellus*, **10**, 262-271.
- Svenningsson, B., and Coauthors, 2006: Hygroscopic growth and critical supersaturations for mixed aerosol particles of inorganic and organic compounds of atmospheric relevance. *Atmos. Chem. Phys.*, **6**, 1937-1952.
- Tewari, M., and Coauthors, 2004: *Implementation and verification of the unified NOAA land surface model in the WRF model*. 20th conference on weather analysis and forecasting/16th conference on numerical weather prediction, 11-15.
- Twomey, S., 1959: The nuclei of natural cloud formation: II. The supersaturation in natural clouds and the variation of cloud droplet concentration. *Geophys. Pure Appl.*, **43**, 243-249.
- _____, 1977: The influence of pollution on the shortwave albedo of clouds. *J. Atmos. Sci.*, **34**, 1149-1154.
- Von der Emde, K., and U. Wacker, 1993: Comments on the relationship between aerosol spectra, equilibrium drop size spectra, and CCN spectra. *Beit. Phys. Atmos.*, **66**, 157-162.
- Wang, M., and J. E. Penner, 2009: Aerosol indirect forcing in a global model with particle nucleation. *Atmos. Chem. Phys.*, **9**, 239-260.
- Wang, W., H. Lu, T. Zhao, L. Jiang, and J. Shi, 2017: Evaluation and comparison of daily rainfall from latest GPM and TRMM products over the Mekong River Basin. *IEEE*, **10**, 2540-2549, doi:10.1109/JSTARS.2017.2672786.
- West, R. E. L., P. Stier, A. Jones, C. E. Johnson, G. W. Mann, N. Bellouin, D. G. Partridge, and Z. Kipling, 2014: The importance of vertical velocity variability for estimates of the indirect aerosol effects. *Atmos. Chem. Phys.*, **14**, 6369-6393, doi:10.5194/acp-14-6369-2014.
- Wex, H., A. Kiselev, F. Stratmann, J. Zoboki, and F. Brechtel, 2005: Measured and modeled equilibrium sizes of NaCl and (NH₄)₂SO₄ particles at relative humidities up to 99.1%. *J. Geophys. Res.*, **110**, D21212.
- Zhang, M., J. M. Chen, T. Wang, T. T. Cheng, L. Lin, R. S. Bhatia, and M. Hanvey, 2010: Chemical characterization of aerosols over the Atlantic Ocean and the Pacific Ocean during two cruises in 2007 and 2008. *J. Geophys. Res.*, **115**, D22302, doi:10.1029/2010JD014246.
- Zieger, P., and Coauthors, 2017: Revising the hygroscopicity of inorganic sea salt particles. *Nat. Commun.*, **8**, 15833, doi:10.1038/ncomms15883.