

火花放电条件下 CS₂ 转化为 COS 的反应

孙斌, 潘循哲, 侯健, 侯惠奇* (复旦大学环境科学研究所, 上海 200433)

摘要: 利用火花放电技术模拟研究了自然界闪电作用下 CS₂ 转化为 COS 的反应. 结果表明, 放电条件(电压 3000 V)下 CS₂(初始分压为 1.33×10^3 Pa)能与空气(25 °C, 10^5 Pa)中的氧气、水蒸气作用, 转化为 COS 以及其他含硫含碳产物(CO、CO₂、SO₂等); CS₂ 初始分压、水蒸气和放电时间等因素对 COS 生成量有明显的影响. 并在实验基础上结合多种理论, 探讨了相关过程的大气闪电反应机理. 这些结果可为自然界闪电条件下的硫循环、碳循环过程的研究提供重要依据.

关键词: CS₂; COS; 火花放电; 闪电

中图分类号: X131.3 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2002)02-06-0023

The Conversion from CS₂ to COS by Spark Discharge

Sun Bin, Pan Xunxi, Hou Jian, Hou Huiqi (Institute of Environmental Science, Fudan University, Shanghai 200433, China)

Abstract: Spark discharge method was used to take simulative investigations on the conversion reaction from CS₂ to COS by lightning. The results showed that 1.33×10^3 Pa CS₂ could act with O₂ or H₂O in the atmosphere (25 °C, 10^5 Pa) under electric discharge conditions ($V = 3000$ V), and COS was produced as well as other species such as CO, CO₂, SO₂ and so on. Factors such as CS₂ concentration, water vapor and discharge time played important roles in the formation of COS. Based on these results and several theories, possible mechanisms of correlative processes during thunderstorms were proposed here, which could contribute to give evidence for the conversion from CS₂ to COS by lightning during thunderstorms.

Key words: CS₂; COS; spark discharge; lightning

COS 是对流层和平流层低层中丰度最高的还原态硫化物, 其全球平均体积分数约为 5×10^{-10} , 且变动性相对很小^[1]. 已有研究表明, COS 是平流层硫酸盐气溶胶层的重要来源^[2]. 该气溶胶层不但对地球辐射预算有显著影响^[3], 而且在导致臭氧损耗的非均相化学反应过程中起重要作用^[4]. 因此有关 COS 源和汇的研究日益受到人们的关注.

最新的相关资料表明, COS 全球源强估计值为 1.31 ± 0.25 Tg/a, 其中由 CS₂ 氧化转化引起的约 0.42 ± 0.12 Tg/a^[5], 约占 COS 总源强的 32%. 因此研究自然条件下 CS₂ 氧化为 COS 的转化过程无疑具有重要意义. 自然界的闪电过程本质上是火花的放电, 并伴随着多种放电化学反应过程^[6]. 近年来大气辐射、动力学及光化学的两维区域平衡瞬间模式 (two dimensional zonally averaged transient

model) 被应用于评估由闪电产生的 NO_x 对于对流层及平流层低层 NO_x 及 O₃ 分布的影响, 结论为全球闪电源 (global lightning source, GLS) 对于对流层中的 NO_x 和 O₃ 物种起重要作用^[7]. 例如, 2×10^4 Pa 高空对应于相应的 GLS 强度, NO_x 浓度上升 100% 至 900%, O₃ 则上升 33% 至 100%. 即使是化学性质不太活泼的 CFCs, 其闪电转化速率估计值达 900 kg/a^[8]. 可以推测, 闪电在 CS₂ 氧化转化为 COS 的过程中也可能起着重要作用. 本文利用火花放电技术在实验室中研究了 CS₂ 在空气气氛中放电转化为 COS 的反应, 并结合等离子体物理及化学理论等探讨了火花通道的电子密

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(29877005)

作者简介: 孙斌(1975~), 硕士研究生, 主要研究方向为大气环境化学.

收稿日期: 2001-01-01; 修订日期: 2001-06-26

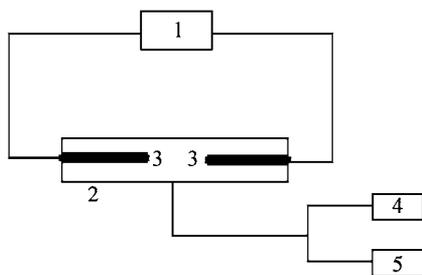
* 通讯联系人

度.粒子(包括电子)平均能量和相关反应机理,对研究自然界闪电过程中的化学反应具有重要的参考意义.

1 实验部分

气体原料:空气(取自钢瓶气,纯度 99.99%)、 CS_2 气体(由 CS_2 分析纯试剂气化而成,纯度高于 99%)、 H_2O (由去离子水气化而成,纯度高于 99.99%);高电压中频电源(自制,3000 V);102G 气相色谱仪(TCD 检测器,信号经自制微电流放大器放大 10 倍后进入记录仪,分离柱为 3 m×2 mm 不锈钢柱,填充剂为 25%邻苯二甲酸乙酯涂于 6201 担体);傅立叶红外光谱仪(Nicolet 5DX 型);主要实验装置如图 1 所示.

实验中先将反应池抽真空至 1 Pa 以下,充入一定量的 CS_2 气体,再充以干燥空气或带有饱和水蒸气的空气至 $1.01325 \times 10^5 \text{ Pa}$ (室温),接通高压中频电源,两电极间发生火花放电,本实验条件下放电形式表现为弧光火花.反应物和产物主要用气相色谱和傅立叶红外光谱分析.



1. 电源 2. 放电反应池 3. 电极
4. 气相色谱检测 5. 红外光谱检测

图 1 实验装置示意图

Fig.1 Schematic diagram of the device

2 结果与讨论

2.1 CS_2 的转化和 COS 的生成

实验考察了 CS_2 的火花放电反应[$p_{\text{CS}_2} = 1.33 \times 10^3 \text{ Pa}$, 放电气氛为带有饱和水蒸气的空气(25 °C, $1.01325 \times 10^5 \text{ Pa}$, 为简便起见,以下简称“潮湿空气”)],放电前后气体红外光谱见图 2. 从图 2 可以看到原料峰为 CS_2 (a: $1522 \sim 1538 \text{ cm}^{-1}$), 产物峰为 SO_2 (b: $1348 \sim 1373$

cm^{-1} , $1135 \sim 1164 \text{ cm}^{-1}$), CO_2 (c: $2345 \sim 2358 \text{ cm}^{-1}$, 669 cm^{-1}), CO (d: 2204 cm^{-1} , 2115 cm^{-1}), COS (e: 2069 cm^{-1} , 2051 cm^{-1}), 除此之外,还有少量的 N_2O (f: 2235 cm^{-1}) 生成,但未见 NO_x (NO 或 NO_2) 及 O_3 的红外吸收峰,原因可能是放电体系含有较高浓度的还原性气体 CS_2 , 在这种还原性气氛中具有较强氧化性的 NO 及 NO_2 不可能大量生成,限于仪器灵敏度,很难检测到痕量的 NO 与 NO_2 . 实验中发现 CS_2 浓度为痕量级($\times 10^{-6}$)时,放电后有明显的 NO 和 O_3 生成,而 NO_2 的量极少,这与 Egorova 等^[7]的结论是一致的.

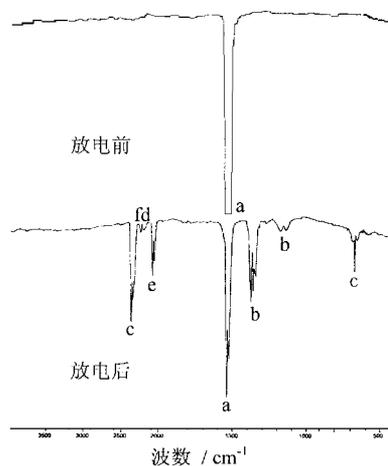


图 2 CS_2 -air(wet)体系放电前后红外光谱
Fig.2 FT-IR of CS_2 -air(wet) system before
/ after the discharge

因此,空气在火花放电(即闪电)条件下确实存在着 CS_2 转化为 COS 的反应. 以下重点研究放电时间、水蒸气以及 CS_2 初始分压对 COS 生成量的影响.

2.2 COS 生成量与放电时间的关系

反应池充入 $1.33 \times 10^3 \text{ Pa}$ CS_2 (g), 再充以干燥空气或潮湿空气至 $1.01325 \times 10^5 \text{ Pa}$, 改变不同放电时间,用气相色谱分析了 COS 的生成量,所得结果见图 3.

由图 3 可见,无论是有水体系或无水体系,长时间放电条件下 COS 生成量总是先增加后减小,在某一特定时间 COS 浓度达到最大值. 这表明放电过程中存在 COS 的生成反应和

转化反应，COS 的生成量取决于这 2 类反应的相对进行程度。

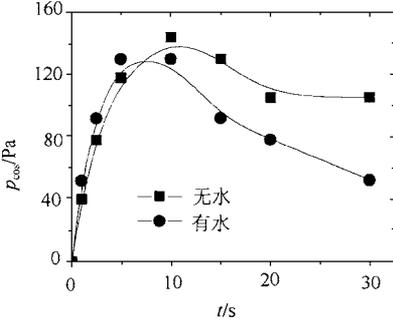


图 3 放电时间对 COS 生成量的影响

Fig. 3 Effects of discharge time on the production of COS

由于 SO₂ 也是该反应过程的重要产物，本研究考察了相同条件下 SO₂ 生成量随放电时间的变化关系(如表 1)。

表 1 数据表明，放电时间较短时，SO₂ 生成不明显；长时间放电情况下，SO₂ 生成量随时间而递增，而且有水体系中 SO₂ 的生成显著早于无水体系；将有水体系内 10.0 ~ 30.0 s 的数据与图 3 的相应数据比较可发现， $\Delta p_{SO_2} / |\Delta p_{COS}| \approx 1.0$ ，表明生成的 SO₂ 实际上是由 COS 转化而来的，即 COS 是 CS₂ → SO₂ 转化过程的中间产物，这类似于 CS₂ 的燃烧过程^[9]。

表 1 放电时间对 SO₂ 生成量的影响

Table 1 Effects of discharge time on the production of SO₂

t/s	p _{SO₂} (in dry air) / Pa	p _{SO₂} (in wet air) / Pa
<10.0		
10.0		10
15.0		48
20.0		62
30.0		86
45.0	10	100
60.0	96	115

2.3 H₂O 对 COS 生成量的影响

2.2 中已经指出，放电过程中存在 COS 的生成反应和消失反应，为便于研究，以 t₀ = 10.0 s 为界将整个反应历程分为 2 个阶段，且定义 $\Delta_{COS} = p_{COS}(w) - p_{COS}(d)$ ，其中 p_{COS}(w)、p_{COS}(d) 分别为有水和无水体系 COS 的

生成量，从而讨论水蒸气对该过程的影响(表 2)。

表 2 水蒸气对 COS 生成量的影响

Table 2 Effects of water vapor on the production of COS

t/s	p _{COS} (d) / Pa	p _{COS} (w) / Pa	Δ_{COS} / Pa
1.0	40	52	12
2.5	78	92	14
5.0	118	130	12
15.0	130	92	- 38
20.0	105	78	- 27
30.0	105	52	- 53

COS 的生成阶段(t < ~10 s)， $\Delta_{COS} > 0$ ，表明 H₂O 的存在有利于 COS 的生成；COS 的转化阶段(t > ~10 s)， $\Delta_{COS} < 0$ ，表明潮湿空气中 COS 较快转化为其他产物(SO₂ 或 H₂SO₄)。

2.4 CS₂ 初始分压与 COS 相对产率的关系

实验考察了火花放电条件下 COS 相对产率(Y_{COS})与 CS₂ 初始分压的关系，其中 Y_{COS} (%) = (n_{COS} / n_{CS₂}⁰) × 100(n_{COS} 为产物 COS 摩尔数，n_{CS₂}⁰ 为反应物 CS₂ 初始摩尔数)。

如 2.3 所述，整个反应历程可以 t₀ = 10 s 为界分为 2 个阶段。进一步的研究发现，该时间分界点与 CS₂ 初始浓度有关，CS₂ 初始浓度越小，t₀ 也越小。为便于研究，本实验固定放电时间为 2.5 s，以保证反应历程处于 COS 的生成阶段。具体步骤如下：以不同分压的 CS₂ 气体在潮湿空气气氛中进行火花放电(输入能量固定为 220 V × 0.21 A × 2.5 s = 115.5 J)，以红外光谱分析生成的 COS 量，所得结果如图 4 所示。

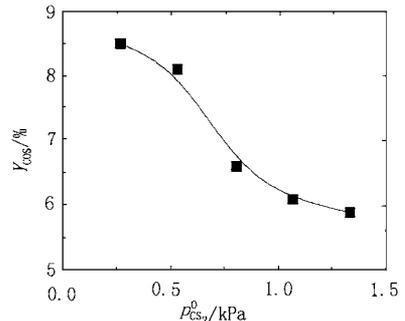


图 4 CS₂ 初始分压对 COS 相对产率的影响

Fig. 4 Effects of CS₂ concentration on Y_{COS}

$Y_{\text{COS}}^0 p_{\text{CS}_2}^0$ 曲线表明, 随着 CS_2 初始浓度的上升, COS 相对产率显著下降. 可以推测, 在闪电作用下, 对流层中痕量浓度 ($\times 10^{-12}$ 级) 的 CS_2 也可能有相当一部分转化为 COS .

2.5 反应机理分析

火花放电是一种介于电晕放电与弧光放电之间的过渡放电形式^[6], 如果放电气体压力为 $1.01325 \times 10^5 \text{ Pa}$, 火花放电等离子体就兼有低温等离子体和高温等离子体的某些性质. 具体表现为: 放电初期处于低温等离子体状态, 电子能量约几个 eV, 气体温度接近常温^[10]; 放电较晚时期处于高温等离子体状态, 其温度高于 10^4 K ^[10]. 本文主要应用等离子体物理及化学原理等, 结合相关实验结果, 探讨 CS_2 转化为 COS 的火花放电反应机理.

2.5.1 放电体系的电子密度和电子平均能量

研究结果表明, 火花放电中除电子碰撞电离、光致电离外, 还存在其他形式的电离过程 (热电离), 这些都大大增强了空间电离度^[11]. 研究发现, 在火花放电较晚时期的火花通道等离子体属于高温等离子体, 其中的电子、离子和中性粒子具有相同的热运动能量, 即它们之间处于热力学平衡状态^[6]. 以下估算在这个时期火花通道 (即闪电通道) 的电子密度和电子平均能量. 从体系能量与温度的关系可以判断, 这 2 个值应该是整个火花放电过程火花通道的电子密度与电子平均能量的上限, 因为放电晚期的温度远高于放电初期.

(1) 电子密度 在温度为 T 达电离平衡时, 电离度 α 与电离条件的关系可用沙特方程 (Saha equation)^[6] 表示:

$$p \cdot \alpha^2 / (1 - \alpha^2) = (2 \pi m_e / h^2)^{3/2} \cdot (kT)^{5/2} \cdot \exp(-eV_i/kT)$$

其中压强 p 单位为 Pa ; m_e 为电子质量; h 为 Planck 常数; k 为 Boltzman 常数; e 为电子电量; V_i 是气体的电离能, 单位为 eV.

火花通道 (闪电通道) 光谱分析结果表明, 闪电回击典型峰值温度为 $2 \times 10^4 \text{ K}$ (变化范围为 $0.8 \sim 3.6 \times 10^4 \text{ K}$)^[12]; 大气主要成分 N_2 的

电离电位约 15.6 eV ^[13]; 闪电回击峰值气压约 10^6 Pa ^[12]. 将这些数值代入沙特方程可得电离度 α 约为 0.42, 符合弧光正柱等离子体气体电离度的变化范围 ($1\% \sim > 50\%$)^[6]. 火花通道大气分子密度 n 约为 $1.2 \times 10^{24} \text{ m}^{-3}$ ^[8], 由此计算可能的电子密度 $n_e = n \cdot \alpha = 5 \times 10^{23} \text{ m}^{-3}$.

(2) 电子平均能量 由电子能量与温度的关系式 $\frac{1}{2} m \bar{v}^2 = \frac{3}{2} kT$ 可得 $T = 2 \times 10^4 \text{ K}$ 时, 电子平均能量约为 2.6 eV. 实际上电子能量的分布范围很广, 如果假设等离子体中的电子能量服从 Maxwell 分布, 由其简化方程 $f_E = \exp(-E/RT)$ (其中 f_E 是指能量大于或等于 E 的电子占总电子的份额) 可以计算得上述条件下, 能量在 5.0 eV 以上的电子数约占总电子数的 5.5%, 相应的电子密度约为 $3 \times 10^{22} \text{ m}^{-3}$. 这样高密度的高能电子能有效地破坏大气中的 O_2 、 H_2O 等分子的化学键, 从而引发等离子体化学反应.

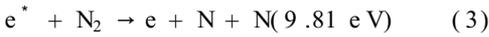
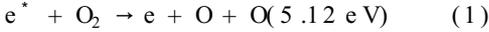
2.5.2 主要反应区域

研究发现, 随着火花通道温度的急剧上升, 体系从低温等离子体状态过渡到高温等离子体状态^[10] 时间不超过 10^{-6} s ^[6], 可以推测, 热效应的作用将十分显著. 如果假设火花通道温度高于 10^4 K 时, 气体处于高度原子化状态, 那么在火花通道中心部分是不可能大量反应物分子和产物分子稳定存在的; 根据高温等离子体的性质可以判断, 这些原子的平均动能可达 1.3 eV 以上 (参见 2.5.1), 对应平均速率约 10^3 m/s 数量级 (如该情况下 O 原子的平均速率约为 $4 \times 10^3 \text{ m/s}$). 由于高温扩散作用, 它们完全有可能扩散至火花通道边缘部分, 与那里的气体分子反应. 类似的讨论也适用于电子, 但由于相同能量的电子速率约比原子高 3~4 个数量级, 其扩散至火花通道边缘部分与气体分子反应的几率比原子大得多.

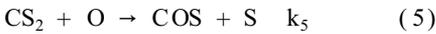
总之, 在放电晚期, 火花通道的边缘部分是主要的反应区域, 在那里高能电子与温度相对接近于室温的气体分子作用, 而且在绝大多数反应时间内火花通道处于高温状态.

2.5.3 实验体系主要反应历程

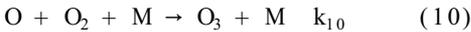
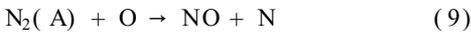
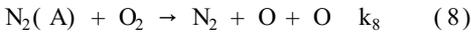
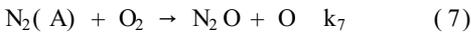
(1) 无水体系 在无水条件下, 高能电子 e^* 先与 O_2 、 CS_2 和 N_2 分子(空气中其余微量成分在此忽略不计)按下式作用:



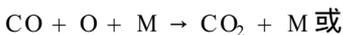
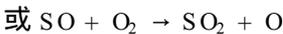
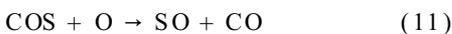
计算表明, 能量高于 9.81 eV 的电子数远小于能量高于 4.46 eV 或 5.12 eV 的电子数, 因此反应(3)相对于(1)和(2)并非主要反应; 随后 COS 经由下列反应生成^[14]:



关于反应(6)以及反应 $CS + O_2 \rightarrow CO + SO$ 存在很大争议^[15], 有待于进一步研究. 同时进行的反应还有:

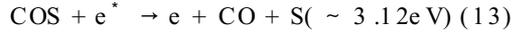
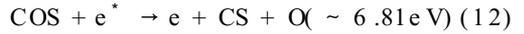


室温下 $k_8/k_7 = 2.5 \times 10^{-12}/7.8 \times 10^{-14} = 32$, 因此 $N_2(A)$ 分子的主要作用是促使 O_2 分子解离, 其中小部分经由反应(7)转化为 N_2O 而被检出; 而反应(9)在本实验条件下可忽略不计, 原因是 $[CS_2] \gg [N_2(A)]$, 反应(5)的存在大大抑制了 NO 的生成; 至于反应(10), 其竞争反应(5)的存在可能制约了 O_3 的生成(25 °C, $k_5/k_{10}[M] = 26$), 类似于文献[15]的结果. 持续放电条件下, 产物 COS 能与过量的 O 原子进一步作用, 最终转化为 CO(或 CO_2) 和 SO_2 , 对应图 3 中 $t > 10$ s 的部分:



其中 M 为气体分子或器壁. 同时, 部分

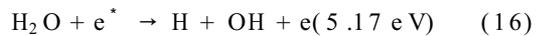
COS 在 高能 电子 的 作用 下 可能 按 下 式 解 离:



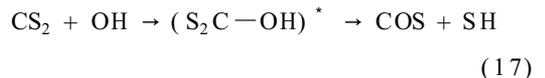
同样地, 反应(12)相对于反应(13)来说可以忽略, 类似于 COS 的光解离^[15].

在反应初期($t < \sim 10$ s), $[CS_2]$ 相对很大, $[COS]$ 相对很小, 反应(5)占主导地位, COS 浓度不断增大; 而反应后期($t > \sim 10$ s) COS 生成量缓慢减少的原因是一部分 COS 经反应(11)或(13)转化为其他产物, 同时非反应区的 CS_2 由于扩散进入反应区, 继续转化为 COS, 这 2 个因素的共同作用可能使所测 COS 生成量变化较小(即图 3 无水曲线 $t > 10$ s 部分).

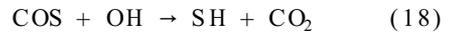
(2) 潮湿空气氛围 体系加入 H_2O 后, 火花放电条件下很容易产生 OH 自由基, 可能的反应途径为:



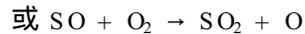
Chameides 等关于雷雨云附近 OH 浓度显著上升的测量结果^[16]则证实了上述过程的可能性. Nien 等认为 COS 可能经由下列反应途径产生^[14]:



COS 也能被 OH 基氧化, 可能的反应为^[3]:



反应(17)、(18)产物中的 SH 基可能经由下列反应转化为 SO_2 ^[9]:



可以看出, 有水条件下 COS 主要经由反应(5)或(17)途径产生, 反应初期其生成量应高于无水体系; 而反应后期由于式(18)的存在, 同样条件下 COS 的转化速率将显著高于无水体系, 且 COS 转化产物 SO_2 的生成亦早于无水体系, 即 H_2O 的存在有利于 COS 的快速转化和 SO_2 的大量生成. 以上推论与实验事实(图 3

和表 1) 基本一致; 另外, CS_2 与 COS 在水中的溶解度都不大^[5], 可以排除实验条件下它们与水蒸气直接作用的可能性, 这也进一步说明了以上机理的合理性.

2.5.4 自然界相关过程大气闪电反应机理

典型的闪电激发等离子体长度以 km 计, 直径以 cm 计, 且具有树枝状的曲折结构^[17]. 通常的研究方法是将其模式化为狭长的良导体圆柱, 其表面密度的不规则变化尺度远小于整个通道长度^[17]. 以下讨论在这个等离子体圆柱边缘部分发生的与 CS_2 转化为 COS 有关的化学反应过程.

由于对流层 CS_2 平均体积分数为 $1.5 \sim 3.0 \times 10^{-10}$ ^[18], 反应(2)、(6)可忽略不计, 闪电初期相关体系的主要反应为(1)、(4)、(5)、(7)、(8)、(14)、(15)、(16)和(17)(如图 5 所示).

在一次闪电回击(典型持续时间为 $150 \sim 167 \mu\text{s}$ ^[8])中经由反应(5)、(17)生成的 COS 可以扩散出反应区域或在反应区域内继续转化为 SO_2 等. 室温下 COS 分子平均速率约为 $3.2 \times 10^2 \text{ m/s}$, 可以推测, 闪电通道边缘部分的 COS 分子平均速率将高于该数值, 而闪电回击典型时间间隔为 50 ms ^[8], 在此期间 COS 分子可能的最大扩散半径大于 16 m , 远大于闪电通道半径(cm 级). 所以 COS 分子完全有可能扩散至反应区域以外的大气中, 即 CS_2 在闪电通道边缘部分的放电转化可能是对流层中 COS 的来源之一.

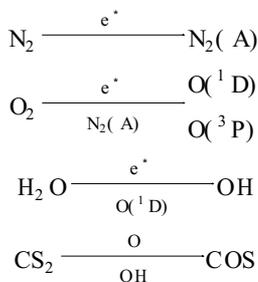


图 5 闪电初期大气中发生的相关过程

Fig. 5 Correlative processes occurred in the atmosphere during initial stages of lightning

3 结论

本文研究了火花放电条件下 CS_2 转化为

COS 的反应, 在干燥空气气氛中由 O_2 分子解离而产生的 O 原子和在潮湿空气气氛中由反应(15)、(16)产生的 OH 基是 COS 生成与转化的关键因素. 放电时间、 H_2O 和 CS_2 初始分压对 COS 生成量有显著影响. 并在实验结果的基础上, 结合多种理论探讨了 CS_2 转化为 COS 的大气闪电反应机理, 可为 CS_2 的闪电转化是对流层中 COS 的来源之一提供实验依据.

参考文献:

- 1 Andreae M O, Crutzen P J. Atmospheric aerosols: biogeochemical sources and role in atmospheric chemistry. *Science*, 1997, **276**: 1052 ~ 1058.
- 2 Crutzen P J. The possible importance of COS for the sulfate layer of the stratosphere. *Geophysical Research Letters*, 1976, **3**: 73 ~ 76.
- 3 Turco R P, Whitten R C et al. COS , stratospheric aerosol and climate. *Nature*, 1980, **283**: 283 ~ 286.
- 4 Fahey D W, Kawa S R et al. In situ measurements constraining the role of sulfate aerosols in mid-latitude ozone depletion. *Nature*, 1993, **363**: 509 ~ 514.
- 5 Simon F W. The mass budgets of carbonyl sulfide, dimethyl sulfide, carbon disulfide and hydrogen sulfide. *Atmospheric Environment*, 2000, **34**: 761 ~ 779.
- 6 徐学基, 诸定昌. 气体放电物理. 上海: 复旦大学出版社, 1996. 215 ~ 216, 14 ~ 15.
- 7 Egorova T, Zubov V et al. Lightning production of NO_x and Ozone. *Phys. Chem. Earth (C)*, 1999, **24**(5): 473 ~ 479.
- 8 Mengu Cho, Michael J R. The decomposition of CFCs in the troposphere by lightning. *Journal of Atmospheric and Solar Terrestrial Physics*, 1997, **59**(12): 1373 ~ 1379.
- 9 周鲁, 刘钟海. 复杂反应动力学基础. 成都: 成都科技大学出版社, 1994. 47 ~ 50.
- 10 杨津基. 气体放电. 北京: 科学出版社, 1983. 151.
- 11 高树香, 陈宗柱. 气体导电. 江苏: 南京工学院出版社, 1988. 77 ~ 78.
- 12 孙景群. 大气电学手册. 北京: 科学出版社, 1995. 120, 148.
- 13 吴季兰, 戚生初. 辐射化学. 北京: 原子能出版社, 1993. 68.
- 14 Nien D S, Malcolm K W K. Is CS_2 a precursor for atmospheric COS ? *Nature*, 1979, **278**: 731 ~ 732.
- 15 William P W, Julian H. The Photooxidation of Carbon Disulfide. *The Journal of Physical Chemistry*, 1971, **75**(7): 854 ~ 860.
- 16 Chameides W L, Davis D D et al. Net ozone photochemical production over the eastern and central North Pacific as inferred from GTE/CITE 1 observations during fall 1983. *J. Geophys. Res.*, 1987, **92**: 2131 ~ 2152.
- 17 Lee M C, Dalkie Y R et al. Radar reflectivity of lightning-induced plasmas. *Journal of Atmospheric and Solar Terrestrial Physics*, 1998, **60**: 941 ~ 949.
- 18 唐孝炎. 大气环境化学. 北京: 高等教育出版社, 1990. 37.