

К.Я. Кондратьев

Аэрозоль и климат: современное состояние и перспективы разработок. 1. Образование, свойства аэрозоля и их трансформация

*НИИ Центр экологической безопасности РАН/Международный Нансеновский фонд окружающей среды
и дистанционного зондирования, г. Санкт-Петербург*

Поступила в редакцию 16.09.2005 г.

Обзор новейших исследований по проблеме «аэрозоль и климат», главная цель которого – продемонстрировать (на основе анализа новейших публикаций) исключительную сложность и высокий уровень неопределенностей учета климатообразующей роли интерактивной подсистемы «аэрозоль – облака – малые газовые компоненты», составляющей часть климатической системы.

Введение

Нет, пожалуй, такой научной проблемы, как «глобальное потепление», которая, с одной стороны, оказалась бы предметом обсуждения на самом высоком уровне международной политики (достаточно упомянуть состоявшуюся 7–8 июля 2005 г. сессию «Группы-8» в Шотландии), а с другой – была бы полна многочисленных противоречий и несомненных искажений научной истины. Так, например, А. Кегг, обозреватель престижного и популярного журнала «Science», начинает свою краткую статью-резюме по климатической проблематике словами [38]: «Ученые знают, что мир потеплел за последнее время, и они полагают, что человечество ответственно за бóльшую часть этого потепления». Статью иллюстрирует фотография склада гробов, произведенных в период рекордной волны тепла в Западной Европе в 2003 г. Еще более катастрофические суждения и угрожающие прогнозы можно найти в разнообразных средствах массовой информации. Даже такой известный ученый, как директор Годдардовского института космических исследований в Нью-Йорке J. Hansen (его можно считать главным, хотя и противоречивым проповедником «глобального потепления»), заявил: «Не может быть более никаких сомнений в том, что газы антропогенного происхождения являются доминирующей причиной наблюдаемого потепления».

К сожалению, не избежал «апокалиптических» оценок и J. Noughton [33], многолетний сопредседатель (1988–2002 гг.) МГЭИК (Межправительственной группы экспертов по проблеме изменений климата) и руководитель Рабочей группы (РГ-1) МГЭИК, ответственной за подготовку материалов, касающихся научных основ обсуждаемой проблематики. По его мнению, «основные принципы науки об изменениях климата были подтверждены».

На фоне нередко апокалиптических заявлений, сделанных политиками, вполне взвешенные суждения высказал президент США W. Bush еще в 2001 г.: «Мы не знаем, в какой степени природно обусловленные флуктуации климата могут оказывать влияние на потепление. Мы не знаем, насколько наш климат мог бы и будет изменяться в будущем. Мы не знаем, насколько быстрыми могут быть изменения, или также, каким образом могут сказаться наши воздействия на климат. Никто не может сказать, каким может быть опасный уровень потепления».

Парадокс противоречивых оценок изменений климата состоит в том, что в ходе дискуссий о климате странным образом отошли на задний план некоторые фундаментальные и совершенно очевидные обстоятельства, которые, однако, были детально обсуждены во многих публикациях [1–72].

1. Первое, о чем следует упомянуть, – отсутствие до сих пор согласованного определения понятия климата. Согласно классическому определению, климат характеризуется совокупностью метеорологических параметров, осредняемых за 30 лет. Если принять такое определение, то становится бессмысленным обсуждение проблемы «глобального потепления», поскольку речь идет в действительности о среднелобальном повышении приземной температуры воздуха (ПТВ) за последние несколько десятков лет. Проблема состоит, однако, в том, что в качестве индикаторов климата рассматриваются нередко такие отдельные метеорологические события, как, например, волны тепла. Другое важное обстоятельство состоит в том, что главным предметом дискуссии о климате стало обсуждение повышения среднелобальной ПТВ. Между тем С. Essex и R. McKittrick [20] убедительно разъяснили условность этой величины.

2. С определением климата связана необходимость осознания того факта, что изменения климата определяются сложным взаимодействием интерактивных компонентов климатической системы «атмосфера – гидросфера – литосфера – криосфера – биосфера» при особой роли динамики биосферы (ответственной за биотическую регуляцию окружающей среды [3а]), а также взаимодействия атмосферы и океана. Особое место занимают такие компоненты атмосферы, воздействующие на формирование климата, как облачный покров и аэрозоль [39в]. Вполне очевидно, что сложная (и нелинейная) интерактивность климатической системы практически исключает возможность достаточно достоверной оценки влияния отдельных факторов (например, парникового эффекта атмосферы) на климат. Подобная сложность еще более усугубляется климатообразующим воздействием космических факторов (в первую очередь – солнечной активности [39б]).

Еще более сложная ситуация возникает в контексте долгосрочных (до конца XXI в. или более) прогнозов климата, которые привлекли за последние годы большое внимание. Связанный с этим учет антропогенных факторов определяет необходимость рассмотрения динамики системы «природа – общество» (СПО) [41], что представляет собой задачу исключительной сложности. Пока что долгосрочные прогнозы климата не учитывают не только динамики СПО, но даже и принципиально существенной интерактивности компонентов климатической системы. Так, например, вместо интерактивного воспроизведения динамики глобального круговорота углерода задается увеличение концентрации CO_2 в атмосфере на 1% в год.

3. Климат всегда изменялся в прошлом (и, как известно, значительно более существенно, чем в настоящее время, причем палеоклиматические данные свидетельствуют о проявлении в прошлом не только положительной, но и отрицательной корреляции между изменениями приземной температуры воздуха и концентрации углекислого газа в атмосфере). Следует, однако, иметь в виду, что данные наблюдений климата (даже за XX в.) не всегда достаточно достоверны и полны. Это имеет принципиально важное значение для проверки надежности результатов численного моделирования климата. Как это ни странно, все опубликованные сравнения самых разнообразных моделей климата сводятся, в основном, к констатации удовлетворительного, в целом, согласия между результатами численного моделирования и наблюдениями. Вполне очевидно, однако, что гораздо более содержательными были бы количественный анализ расхождений и обоснование, на основе такого рода анализа, требований к данным наблюдений, которые позволили бы располагать более адекватным массивом данных наблюдений.

4. Несмотря на активное обсуждение и постепенное развертывание программ глобальных наблюдений (GCOS, GOOS, IGOS), остается далекой

от решения проблема получения однородных длинных рядов комплексных данных наблюдений различных параметров климатической системы. Даже в случае рядов ПТВ за предшествующие полтора века есть основания подвергать сомнению качество данных наблюдений (прежде всего это связано с невозможностью достаточно корректного определения поправок к ПТВ за счет городских «островов тепла»). Острая дискуссия возникла по поводу данных спутникового СВЧ-дистанционного зондирования тропосферы (см., например, [3, 4]), из которых следует, что значительное повышение температуры в свободной атмосфере за последние десятилетия отсутствовало, хотя оно должно быть более интенсивным, чем в случае ПТВ.

Предметом активной дискуссии стали палеоклиматические данные об изменениях ПТВ за последние 2 тыс. лет, представленные как возникновение «хоккейной клюшки» – аномально интенсивного повышения ПТВ за последние десятилетия по сравнению с плавными изменениями в течение предшествующих 2 тыс. лет [51]. McIntyre и McKittrik [54, 55] показали, что подобный вывод основан на использовании статистически некорректной методики обработки палеоклиматических данных (остается, кроме того, не вполне решенной и проблема адекватности такого рода данных, опирающихся на использование различных косвенных индикаторов климата). Von Storch [65] справедливо заметил в этой связи: «Усилиями МГЭИК представление о «хоккейной клюшке» было поднято до статуса иконы. В то время как в технической части TAR (Третьего оценочного отчета МГЭИК по проблеме изменений климата, опубликованного в 2001 г.) результаты восстановления температуры за последнее тысячелетие были представлены с оговорками по поводу их недостаточной достоверности и соответствующих неопределенностей, в тех разделах TAR, на которые обращают внимание широкие круги читателей, подобные оговорки становятся все менее заметными. В результате многие рассматривают «хоккейную клюшку» как несомненный признак обнаружения и распознавания причин антропогенного изменения климата».

К числу ключевых источников неопределенностей оценок причин современных изменений климата и возможных изменений климата в будущем относится проблема воздействия аэрозоля на климат. Эта проблема широко обсуждалась ранее (см., например, [6, 39в]), в том числе в серии обзорных статей, завершившихся [5а]. Интенсивное развитие соответствующих разработок определяет, однако, необходимость обратиться к анализу новейших исследований в этой области, касающихся в первую очередь результатов исследований свойств аэрозоля и их пространственно-временной изменчивости. В этой связи следует упомянуть прежде всего программу «Аэрозоли Сибири», результаты осуществления которой детально обсуждены, в частности, в тематическом выпуске журнала «Оптика атмосферы и океана» (2005. Т. 18. № 5–6).

Микрофизические и оптические свойства, процессы формирования аэрозоля

Главные трудности исследований воздействия аэрозоля на климат состоят в сложности и интерактивной динамике многокомпонентного аэрозоля, сильной пространственно-временной изменчивости микроструктуры и свойств аэрозоля различных типов, а также в многообразии процессов, определяющих свойства аэрозоля. Естественно, что потребности численного моделирования воздействий аэрозоля на климат диктуют прежде всего необходимость обоснования моделей аэрозоля, которые могли бы быть использованы в численных моделях климата. Хотя подобные разработки находятся пока что на начальном этапе развития, важно, что они привлекают самое серьезное внимание.

В связи с усиливающимся осознанием роли аэрозоля как климатообразующего фактора Herzog и др. [31] разработали динамическую модель аэрозоля с учетом бинарной нуклеации сульфатного газа и его конденсации с последующим образованием частиц аэрозоля. Рассмотрена также коагуляция сульфатных частиц между собой и с другими частицами. Обсуждаемая модель аэрозоля формализована в виде модуля, который может быть использован как компонент глобальной модели дальнего переноса аэрозоля с учетом его химической трансформации, причем параметризация всех рассматриваемых процессов пригодна для условий как тропосферы, так и стратосферы. На каждом шаге по времени воспроизводятся взаимодействия процессов образования и трансформации аэрозоля.

В работе [31] выполнен анализ адекватности модели путем сравнения с результатами численного моделирования с применением «секционной» модели, обеспечивающей воспроизведение микроструктуры аэрозоля любой формы и достоверный прогноз эволюции свойств аэрозоля. При учете четырех мод аэрозоля новая модель позволяет предвычислить счетную концентрацию и площадь поверхности частиц с точностью до коэффициента 1,2 по отношению к секционной модели (в случае двухмодальной параметризации возникает лишь незначительное ухудшение результатов). В пределах пограничного слоя атмосферы результаты вычислений счетной концентрации частиц аккумуляционной моды расходятся более существенно, будучи согласованными лишь с точностью до коэффициента 2,1. Предполагается, что дальнейшее совершенствование модели с целью численного моделирования ширины микроструктуры для каждой из мод аэрозоля, а также счетной и массовой концентрации для отдельных мод обеспечит лучшее согласие с секционной моделью.

Работа Herzog и др. [31] может служить иллюстрацией первоначального подхода к учету климатообразующего воздействия одного из типов аэрозоля. Конечной целью является, однако, обоснование учета всей совокупности процессов образования

и свойств аэрозоля в рамках соответствующего модуля, являющегося интерактивным компонентом модели климата. Berglen и др. [8] предприняли попытку такого рода на примере сульфатного аэрозоля.

Глобальный круговорот серы принадлежит к числу биогеофизических круговоротов, которые подвергаются наиболее значительному антропогенному воздействию. Berglen и др. [8] разработали новую пятикомпонентную модель круговорота серы, использованную как часть модели OsloCTM-2 дальнего переноса с учетом соответствующих выбросов, а также процессов окисления и осаждения при особом внимании к таким компонентам, как DMS, SO₂, MSA и сульфат. Прогресс по сравнению с предшествующими аналогичными разработками состоит в интерактивном учете процессов окисления SO₂ в водной фазе до сульфата за счет O₃, H₂O₂ и HO₂NO₂. Поэтому изменения уровней выбросов предшественников-оксидантов приводят к немедленному изменению в составе соединений оксидантов. С другой стороны, открываются возможности оценки влияния динамики круговорота серы на содержание оксидантов.

Расчеты сделаны для метеорологических условий и уровней выбросов 1996 г. с последующим сравнением результатов численного моделирования круговорота серы с данными наблюдений за 1996 г. Результаты сравнения оказались, в целом, положительными, хотя имеют место тенденция завышенности вычисленных значений концентрации SO₂ и заниженности концентрации сульфата зимой в атмосфере северного полушария, обусловленная недостаточной интенсивностью процессов окисления.

Согласно расчетным данным, среднеглобальное время жизни (глобальная масса) в 1985 г. составило 1,06 сут (0,26 TrS) или 3,7 сут (0,50 TrS) для SO₂ или сульфатов. Для 1996 г. соответствующие значения оказались равными 0,99 сут (0,25 TrS) или 3 сут (0,53 TrS). Наблюдается существенное различие между южным полушарием с характерным для него преобладанием природных выбросов и потерь SO₂ за счет обусловленного O₃ и H₂O₂ окисления и северным полушарием, где имеют место высокий уровень антропогенных выбросов и большие потери, обусловленные сухим осаждением. Значительные изменения выбросов серы происходили за последние десятилетия, в ходе которых выбросы SO₂ в США, Западной Европе и бывшем СССР уменьшались, а в Юго-Восточной Азии, в некоторых регионах США и Западной Европы и в Китае — возрастали, что составило соответственно -17,6; -47,5; +95%.

Для оценки воздействия выбросов на химический состав тропосферы сделаны расчеты с использованием данных осуществленной в 1985 г. программы GEIA глобальной инвентаризации выбросов. Согласно данным GEIA, суммарные выбросы SO₂ составили в 1985 г. 89,2 TrS/год при следующих значениях отдельных компонентов выбросов SO₂ (в скобках, в TrS/год): антропогенные выбросы (67,1), сжигание биомассы (2,3), вулканы (8,0), окисление (11,8). Суммарный сток достигал

89,2 TrS/год, а уровни компонентов стока характеризовались следующими значениями: сухое осаждение (41,3), влажное осаждение (1,5), окисление в газовой фазе за счет OH (7,5), окисление в водной фазе (38,9). В случае сульфата (при суммарных выбросах, равных 49,9 TrS/год) вклады отдельных компонентов определяют антропогенные выбросы (3,5) и процессы окисления SO₂ (46,4). Суммарные стоки, равные 49,9 TrS/год, определяются вкладами сухого (7,4) и влажного (42,5) осаждения.

Изменения выбросов серы существенно сказались на уровнях концентрации серы и окислителей в атмосфере. Так, например, возросшие выбросы окислов азота NO_x и углеводородных соединений в Китае привели к увеличению концентрации тропосферного озона, причем это увеличение сдерживалось влиянием возросших выбросов SO₂. Особое внимание было уделено анализу обусловленного OH окисления SO₂, которое могло привести к образованию новых частиц сульфатного аэрозоля. Произошедшее за период 1985–1996 гг. смещение максимальных выбросов на юг способствовало возрастанию роли OH как окислителя, особенно в Юго-Восточной Азии.

Естественно, что только воспроизведение глобального круговорота серы — это лишь часть проблемы. Решением ее должно стать обоснование аэрозольного модуля как компонента модели климата, который позволил бы учесть климатообразующее воздействие интерактивного круговорота серы. На пути решения этой проблемы есть много трудностей. Рассмотрим те из них, которые относятся к аэрозолю различных типов.

Известно, что процесс однородной нуклеации частиц (образования устойчивых кластеров размером около 1 нм) и их последующий рост до размеров новых частиц (более 3 нм) определяют микроструктуру аэрозоля и облачных ядер конденсации, однако до сих пор отсутствует адекватная теория формирования новых частиц аэрозоля. Kulmala и др. [43] предприняли обоснование такого рода теории, основу которой составляет объяснение образования новых частиц. Они считают, что это образование обусловлено активацией устойчивых неорганических кластеров под воздействием паров органических соединений. Новая теория активации наночастиц аналогична теории Келера, описывающей образование облаков при наличии пересыщения водяного пара, но отличается рассмотрением активации неорганических устойчивых нанокластеров до уровня частиц аэрозоля при наличии пересыщенных органических паров, которые инициируют спонтанный и быстрый рост кластеров. Использование новой теории как компонента моделей образования аэрозоля привело к выводу, что возрастание концентрации паров органических компонентов приводит к интенсификации образования частиц аэрозоля, которая оказывает влияние на обусловленное аэрозолем глобальное радиационное выхолаживание. Авторы [43] подчеркнули необходимость дальнейшего совершенствования предложенной теории с точки зрения уточнения использо-

вания в ней термодинамической модели. Важный аспект этой и других разработок состоит в том, что они иллюстрируют наличие тесного взаимодействия между аэрозолем и малыми газовыми компонентами атмосферы (МГК).

Химический анализ проб снега с купола г. Фуджи в Антарктике из отложений, образовавшихся летом после снегопада, показал, что слой снега толщиной до 3,4 м характеризовался минимумами концентрации сульфатов (nss)-SO₄²⁻, происходящих не из морских солей, и ионов Na⁺, а также максимумом отношения концентраций ионов Cl⁻/Na⁺. Подобный летний минимум nss-SO₄²⁻ в слое снега не был зарегистрирован ранее где-либо в Антарктике и возник, несмотря на существование известного максимума концентрации nss-SO₄²⁻ в аэрозоле, на куполе г. Фуджи летом.

С целью понять природу подобного явления были выполнены лабораторные эксперименты, результаты которых позволяют считать, что летом происходят сублимация водяного пара внутри слоя снежного покрова днем и конденсация водяного пара ночью на поверхности снега в виде изморози, в результате чего возникают растворение и уменьшение концентрации nss-SO₄²⁻. По-видимому, подобный процесс сублимации-конденсации осуществляется и в других холодных внутриконтинентальных регионах. Определение числа подслоев с низкой концентрацией nss-SO₄²⁻ может помочь в датировке ледяных кернов из региона г. Фуджи при обеспечении высокого разрешения по времени.

Наличие гигантских облачных ядер конденсации (GCCN) в слоисто-кучевых облаках благоприятствует возникновению мороси. Была изучена вероятность воздействия таких соединений, которые обуславливают образование пленки на поверхности капель (FFC) как фактора ослабления влияния GCCN на процесс формирования мороси. В связи с этим Medina и Nenes [56] проанализировали свойства аккомодации и количество FFC, необходимое для существенного воздействия на размеры частиц GCCN в условиях, типичных для слоисто-кучевых облаков. Показано, что даже при небольшой доле массы FFC (порядка 0,2%) и при умеренном влиянии на аккомодацию водяного пара могут возникнуть значительное уменьшение размеров GCCN и ослабление их воздействия на образование мороси. Полученные результаты в одинаковой степени относятся к условиям как чистой, так и загрязненной аэрозолем атмосферы.

Один из концептуальных аспектов изучения процессов образования аэрозоля связан с необходимостью учета взаимодействия аэрозоля и облаков [72]. Ввиду большой сложности и многоаспектности этой проблематики ограничимся, однако, лишь некоторыми примерами.

Облака в средних широтах характеризуются, как правило, смешанным фазовым составом, состоящим в сосуществовании переохлажденных капель воды и кристаллов льда при температуре до

–38 °С. Поскольку до сих пор остается недостаточной изученной роль подобных облаков в формировании климата, на высокогорной станции в Альпах были предприняты микрофизические измерения *in situ* распределения частиц аэрозоля между каплями и кристаллами облаков и внутриоблачным воздухом [29]. Согласно полученным результатам имеет место уменьшение доли активированной фракции аэрозоля F_N при диаметре частиц $D_F > 100$ нм от ~ 0,54 летом (в условиях жидкофазных облаков) до ~ 0,08 зимой (облака со смешанной фазой). Подобное явление можно объяснить функционированием механизма Бержерона–Финдейзена, обуславливающего рост кристаллов льда за счет капель воды, который сопровождается поступлением обратно во внутриоблачный воздух первоначально активированных частиц аэрозоля. Такого рода аэрозоль может выполнять роль облачных ядер конденсации и подвергаться многократной активации до его удаления путем влажного осаждения. Возникает, таким образом, необходимость учета связанного с обсуждаемым явлением косвенного воздействия аэрозоля на климат, проявляющегося через обусловленные аэрозолем изменения свойств облаков.

Yin и др. [72] осуществили численное моделирование с целью анализа «переработки» сульфатного аэрозоля конвективными облаками смешанной фазы и возникающего при этом обратного воздействия аэрозоля на микрофизические свойства облаков и осадки. Показано, что за счет вертикального переноса в такого рода условиях происходит возрастание счетной концентрации аэрозоля в верхней тропосфере в несколько раз, что обуславливает усиление воздействия аэрозоля на процесс эволюции облаков.

В настоящее время достоверно установлено, что гумусоподобные вещества (HULIS) являются неизменной составной частью мелкодисперсного континентального аэрозоля и составляют значительную долю органических соединений в водных растворах сельского и городского аэрозолей, а также в аэрозольных продуктах сжигания биомассы. По-видимому, подобный вторичный аэрозоль может образовываться путем газофазной трансформации различных малых газовых компонентов, выбрасываемых в атмосферу природными и антропогенными источниками. Возможность образования HULIS не является самоочевидной, поскольку процессы гумификации в почве происходят медленно (занимают годы) и требуют наличия специфической микробной среды.

В этой связи были высказаны различные гипотезы образования HULIS в атмосфере. Одна из них основана на рассмотрении полимеризации летучих альдегидов, возникающих в ходе фотохимических реакций (с учетом капель серной кислоты как катализатора), и образования хемиацетал/ацетала. Другая возможность состоит в непосредственном образовании HULIS из изопреноидных или терпеноидных углеводородных соединений (также в присутствии ароматических гидроксикислот, найденных в составе мелкодисперсного континенталь-

ного аэрозоля), которые могут вступать в реакцию с участием радикала гидроксила в облачной воде с последующим образованием окрашенных органических соединений.

В связи с отмеченными обстоятельствами Hoffer и др. [32] изучили химическую структуру и свойства продуктов реакций (они названы синтетическими HULIS), образующихся из 3,5-дигидроксibenзоичной кислоты в синтетической облачной воде. Показано, что характерные аэрозольные продукты сжигания биомассы типа лигнина вступают в реакции с радикалами OH в облачной воде, ведущие к образованию окрашенных органических соединений. Полученные результаты лабораторных исследований позволяют считать, что за счет процесса олигомеризации с участием свободных радикалов в водной фазе возникает продукты с более высоким молекулярным весом. Подобный процесс сходен с наблюдаемым в природе процессом образования гумусоподобных веществ, входящих в состав аэрозоля в сельских регионах, а также возникающих при сжигании биомассы. Поскольку такого рода аэрозоль способен поглощать солнечную радиацию, его существование может иметь определенные климатические последствия.

Перистые облака в тропиках оказывают значительное воздействие на формирование глобального климата и на происходящие в атмосфере химические процессы, порождая сильные изменения радиационного баланса Земли, которые зависят от таких физических характеристик облачного покрова, как высота его верхней границы, толщина, микроструктура и форма ледяных кристаллов. В контексте этой проблематики Kojima и др. [39a] предприняли осуществление полевого наблюдательного эксперимента CRYSTAL-FACE с целью изучения перистых облаков и их наковален в регионе штата Флорида (США). В рамках программы этого эксперимента выполнен забор с самолета проб аэрозоля в верхней тропосфере (UT) и нижней стратосфере (LS) при помощи установленной на самолете аппаратуры. Для анализа проб использована методика трансмиссионной электронной микроскопии (TEM).

Полученные в работе [39a] пробы классифицированы на три категории: 1) внутриоблачные пробы в пределах UT; 2) внеоблачные пробы в пределах UT; 3) пробы, относящиеся к LS. Во всех трех случаях доминируют сульфатные частицы, включая первоначальные капли H_2SO_4 . Морфология капель H_2SO_4 свидетельствует о том, что во время их забора происходила частичная «аммонизация» состава капель. Этот состав характеризовался наличием внутреннего перемешивания с органическим веществом, металлосульфатами и твердыми частицами различного состава.

Типичной особенностью всех трех типов проб было наличие К- и S-содержащих органических частиц и частиц, обогащенных Si и Al. Особенностью внутриоблачных проб было значительное содержание частиц, обогащенных Zn. Происхождение подобных частиц остается неясным, но вполне

вероятно, что они являются продуктом загрязнений, обусловленных работой двигателя самолета. Следствием «аммонизации» и внутренней перемешанности частиц H_2SO_4 в аэрозоле УТ может быть замораживание частиц при более высокой температуре, чем в случае аэрозоля из чистого H_2SO_4 . Причиной относительно интенсивной «аммонизации» во внутриоблачных пробах УТ мог быть интенсивный перенос аммония за счет конвекции. Содержание несulfатных частиц характеризуется убыванием с ростом высоты. Подобные частицы возникали в нижней тропосфере и затем претерпевали перенос в УТ и LS.

Количественные оценки радиационного возмущающего воздействия за счет перистых облаков (ПО) характеризуются высоким уровнем неопределенности. Это происходит в значительной мере потому, что остаются недостаточно изученными механизмы формирования ПО. Существенно в этом контексте и влияние ПО на гетерогенные химические реакции в верхней тропосфере. Предполагается, что ПО образуются посредством однородной нуклеации в верхней тропосфере, когда происходит понижение температуры и возникает пересыщенность по отношению ко льду частиц фонового аэрозоля. При соответствующих уровнях температуры и относительной влажности подобные частицы могут обуславливать однородную или неоднородную нуклеацию льда, приводящую к образованию ледяных частиц ПО.

Недавние исследования установили, что тропосферный сульфатный аэрозоль содержит около 50% и более органических компонентов, влияние которых на процессы в атмосфере недостаточно изучено. С применением проточной кюветы Wise и др. [70] выполнили лабораторные исследования с целью определения температуры, при которой происходит нуклеация льда в частицах, состоящих из сульфата аммония и смесей сульфата аммония с различными дикарбоксильными кислотами. Анализ полученных результатов показал, что критическая температура замерзания для сульфата аммония остается неизменной в случае смесей сульфата аммония с дикарбоксильными кислотами (при фиксированной водной активности раствора), хотя растворы содержали различные доли неорганических и органических компонентов. Идентичным оказалось и поведение частиц, состоящих только из дикарбоксильных кислот. Необходимы, однако, дальнейшие исследования усвоения воды и образования льда для других частиц смешанного состава, состоящих из неорганических и органических компонентов, в зависимости от температуры и относительной влажности. Особое внимание привлекает то обстоятельство, что растворимые (не в воде) органические соединения могут образовывать на поверхности частиц аэрозоля из сульфата аммония пленку, которая может препятствовать усвоению воды.

Роль органических соединений в трансформации частиц аэрозоля и их свойств тем более существенна, что, как показал выполненный Lohmann и Lesck [48] анализ данных наблюдений над частич-

но покрытой ледяным покровом центральной частью Арктического океана, состав высокоширотного аэрозоля характеризуется наличием значительной доли органических соединений, что сказывается на функционировании частиц аэрозоля как облачных ядер конденсации (ОЯК). Было обнаружено существенное присутствие ядер Айткена, которое влияет на формирование косвенного воздействия аэрозоля на климат, усиливая эффект выхолаживания по сравнению с обусловленным частицами, образующимися за счет выбрасываемого фитопланктоном диметилсульфида.

Ранее было показано, что в потоках воздуха, исходящих из морских слоистых и кучевых облаков, происходит образование новых частиц атмосферного аэрозоля. Luo и др. [50] обсудили результаты самолетных измерений характеристик перистых облаков, анализ которых обнаружил наличие ультрамельких частиц диаметром (D_p) от 4 до 9 нм (N_{4-9}) в составе внутриоблачного аэрозоля, составлявшие часть программы эксперимента CRYSTAL-FACE по изучению накопления ПО и слоев ПО. Наблюдения были выполнены в июле 2002 г. в районе штата Флорида (США) на высотах 7–16 км при помощи аэрозольных спектрометров, установленных на самолете-лаборатории WB-57.

Анализ полученных результатов показал, что около 72% проб, полученных в облаках, отображали события образования новых частиц при среднем значении счетной концентрации $N_{4-9} = 3,0 \cdot 10^3 \text{ см}^{-3}$, тогда как в 56% случаев обработки внеоблачных проб происходило образование частиц при $N_{4-9} = 3,0 \cdot 10^3 \text{ см}^{-3}$. Периоды, в течение которых наблюдались высокие значения N_{4-9} , часто совпадали с интервалами возрастания ледосодержания облаков (IWC) и высокой относительной влажностью по отношению к льду (RHI). Однако количественная корреляция измеренных значений N_{4-9} с IWC отсутствовала. Масштабы и повторяемость событий образования новых частиц в перистых облаках оказались более существенными, чем наблюдавшиеся ранее в тропической/субтропической верхней тропосфере при отсутствии перистых облаков. Обсуждаемая ситуация свидетельствует о том, что наличие ПО может создавать и благоприятные условия для образования новых частиц аэрозоля, благодаря низкой температуре, высокой RHI, интенсивному образованию гидроксила OH (за счет достаточно большого содержания водяного пара), влиянию электрического поля облаков и конвекции. Остаются, однако, нераспознанными механизмы образования новых частиц аэрозоля в облаках.

На основе использования лагранжевой микрофизической модели взаимодействия аэрозоля и облаков Haag и Kärcher [25] выполнили анализ закономерностей динамики перистых облаков в условиях средних широт северного полушария. Численное моделирование осуществлено с учетом имеющейся эмпирической априорной информации, характеризующей микроструктуру аэрозоля, скорость выхолаживания, относительную влажность воздуха, при которой происходит замерзание капель,

и скорость седиментации частиц ПО. Полученные в работе [25] результаты свидетельствуют о том, что к числу наиболее существенных процессов, определяющих динамику ПО, относятся: «соревнования» между нерастворимыми и летучими частицами аэрозоля, а также возмущающие воздействия высокочастотных гравитационных волн на поле температуры. Выводы о ведущей роли этих факторов следуют из имеющихся данных наблюдений.

Как правило, ПО формируются в регионах холодного воздуха, причем их микрофизические свойства определяются мезомасштабной изменчивостью вертикальной скорости. Существенная трансформация свойств ПО может быть обусловлена гетерогенными ядрами нуклеации (IN) при их типичной для средних широт счетной концентрации в пределах $< 0,01-0,03 \text{ см}^{-3}$. IN не способны, однако, контролировать образование перистых облаков. Ключевое воздействие IN на ПО состоит в уменьшении концентрации ледяных кристаллов, что порождает косвенное воздействие аэрозоля на облака, проявляющееся в снижении их альbedo за счет возрастания эффективного радиуса частиц и уменьшения водосодержания ПО. Помимо этого, возникают нелинейные изменения частоты образования ПО, оптической экстинкции и доли невидимых (нерегистрируемых) облаков, находящихся на пределе обнаружения. Нелинейные зависимости от этих трех величин проявляются при повышении концентрации IN выше порогового уровня, составляющего около $0,01 \text{ см}^{-3}$ (точное значение этой величины зависит от температуры, при которой происходит образование облаков, скорости выхолаживания и относительной влажности, при которой происходит замерзание IN). В таких условиях IN становятся контролирующим фактором образования ПО, ослабляя роль однородного замерзания.

Ледяные ядра, у которых порог замерзания близок к уровню насыщения над льдом, способны вызывать сильные изменения свойств облаков даже если их концентрация мала. Особенно чувствительны к IN такие ПО, которые обладают малой оптической толщиной и оказываются близкими к порогу обнаружения. Наличие даже низкой концентрации IN (порядка $0,001 \text{ см}^{-3}$) может способствовать существенному возрастанию частоты их возникновения. Если образование подобных облаков происходит преимущественно на IN, они могут быть подвержены существенным антропогенным воздействиям. Возможные в будущем изменения скоростей выхолаживания в верхней тропосфере и ответственных за образование ледяных частиц аэрозолей могут породить изменения частоты формирования перистых облаков, сравнимые с наблюдаемыми десятилетними тенденциями перистых облаков в глобальных масштабах.

Развитие исследований косвенного воздействия аэрозоля на облачный покров (и, соответственно, косвенного влияния аэрозоля на климат) позволило получить разнообразную информацию о динамике облачных систем и о соответствующих обратных связях. Анализу подверглись, в частности, такие

аспекты проблематики, как обусловленные аэрозолем изменения альbedo облаков, модификация водных и ледяных облаков, формирование осадков и состав атмосферы. За последние годы стало понятным также, что, помимо влияния микрофизической структуры и химического состава аэрозоля на микрофизические процессы в облаках, некоторые «химические факторы» также могут порождать изменения микрофизической структуры облаков и дополнительное похолодание климата. Подобные химические факторы определяются наличием высокорастворимых в воде малых газовых компонентов, слабо растворимых растворов и обусловленного органическими МГК уменьшения поверхностного натяжения. Как правило, упомянутые химические факторы способствуют увеличению счетной концентрации капель (при прочих равных условиях) и, таким образом, — похолоданию климата. Фактором, который может обуславливать уменьшение счетной концентрации капель (и, следовательно, эффект потепления), является замедление роста некоторых капель за счет образования на их поверхности пленок из органических соединений.

С точки зрения аэрозольного косвенного воздействия в случае теплых облаков особое внимание привлекает газообразная HNO_3 , которая является высокорастворимым МГК. Именно это послужило мотивацией для исследований влияния HNO_3 на обусловленное облаками радиационное возмущающее воздействие. Теоретические оценки показали, что при отношении смеси газообразной HNO_3 , равном 5 млрд^{-1} , и при наличии скорости восходящих потоков в облаках порядка $0,1 \text{ м/с}$ может возникнуть возрастание счетной концентрации облачных капель (по сравнению с такими условиями, когда HNO_3 отсутствует) до 60%. Подобное увеличение сравнимо с ростом счетной концентрации капель при удвоении счетной концентрации частиц аэрозоля.

Xue и Feingold [71] получили новые оценки влияния HNO_3 на микрофизические и радиационные свойства облаков с использованием адиабатической модели частицы облаков при заданных микрофизической структуре аэрозоля, различных значениях массового коэффициента аккомодации водяного пара и концентрации HNO_3 . Расчеты показали, что следствием наличия HNO_3 оказывается не только возрастание счетной концентрации облачных капель N_d , но также значительное расширение спектра размеров капель в сторону как меньших, так и больших размеров. Такого рода расширение влечет за собой «соревнование» между H_2O и HNO_3 по отношению к каплям различных размеров. Уширение с крупнокапельной стороны спектра связано с усилением факторов роста капель. В случае мелких капель факторы роста ослабевают при наличии HNO_3 . Хотя происходит возрастание N_d с увеличением концентрации HNO_3 , трудно оценить сопутствующие подобному росту увеличение оптической толщины облаков и альbedo на основе существующих методик использования соотношений для оптических свойств облаков. В частности, оценки

зависимости оптической толщины облаков от N_d с учетом степенного соотношения при показателе степени, равном одной трети, оказываются завышенными ввиду значительного уширения спектра размеров капель, обусловленного влиянием HNO_3 . Такого рода результат свидетельствует о важности учета влияния азотной кислоты на оптические свойства облаков и, соответственно, на климат.

Железо является критически важным биогеном, регулирующим скорость развития микроорганизмов в морской воде. Предполагается, в частности, что оно ограничивает образование фитопланктона в таких регионах Мирового океана, для которых типична высокая концентрация нитратов при низком уровне хлорофилла. Концентрация хлорофилла оказывается в таких регионах ниже ожидаемой, поскольку низкая концентрация железа ограничивает рост фитопланктона и первичной продукции. Подобные регионы включают субарктический и экваториальный Тихий океан и океаны южного полушария, где имеет место низкий уровень осаждения пылевого аэрозоля на поверхность океана. В такого рода регионах поставляемое апвеллингом железо может быть недостаточным, и для более эффективного использования биогенов оказывается необходимым внешний источник железа. Помимо этого, осаждение железа оказывает существенное воздействие на формирование бюджета CO_2 , поскольку усиление поступления железа в океан способствует уменьшению концентрации CO_2 в атмосфере (в масштабах времени периодов оледенений).

Предполагается также, что наличие железа в морском аэрозоле может влиять на формирование круговорота серы путем участия в реакциях окисления, включая окисление диметилсульфида и образование облачных ядер конденсации. Развитие биогеохимических процессов в океане с участием железа определяется растворимостью железа, которая сильно зависит от его минералогии и степени окисленности. В среднем относительное содержание железа в земной коре составляет около 3,5% при доминировании нерастворимого железа (FeIII) в форме алюмосиликата. Растворимость железа, содержащегося в почвах, как правило, меньше 0,1%, что свидетельствует о возможной важной роли переработки минерального аэрозоля в атмосфере в повышении доступности железа как биогена. В этой связи важное значение приобретают исследования тех процессов в атмосфере, которые способствуют трансформации нерастворимого железа в более растворимые формы. Подобные процессы особенно существенны в удаленных регионах Мирового океана, где железо может играть роль ограничивающего биопродуктивности биогена.

Hand и др. [27] обсудили результаты корабельных измерений растворимости железа, содержащегося в аэрозоле в период осуществленных в 2001 г. трех рейсов в регионах Атлантического и Тихого океанов. Согласно полученным результатам концентрация растворимого железа варьировала в пределах 0–45% [при среднем значении $(4 \pm 9)\%$] в мелкодисперсном аэрозоле (диаметр частиц

меньше 2,5 мкм) и 0–87% $[(2 \pm 10)\%]$ в крупнодисперсном аэрозоле. С учетом этих результатов в работе [27] проанализирована достоверность двух гипотез о воздействии растворимого железа на экодинамику, опирающихся на использование глобальной модели минерального аэрозоля. Первая из этих гипотез основана на предположении, что растворимость железа усиливается при его облучении солнечной радиацией (имеются в виду реакции фотовосстановления, которые служат механизмом возрастания концентрации растворимого железа в присутствии кислотных растворов). Вторая гипотеза исходит из учета переработки железа облаками и возрастания концентрации растворимого железа при взаимодействии минерального аэрозоля с облаками. В обоих этих случаях осредненные оценки доли растворимого железа по сравнению с наблюдаемой оказались близкими, но неспособными воспроизвести наблюдаемую изменчивость. Возможной причиной подобной ситуации является отсутствие учета взаимодействия с другими компонентами, кроме минерального аэрозоля, а также других процессов, которые могли оказаться существенными факторами возрастания концентрации растворимого железа.

На японских антарктических станциях Syowa и Dome Fuji в 1997–1998 гг. выполнены регулярные измерения состава атмосферного аэрозоля [28]. Согласно данным для станции Syowa, годовой ход массовой фоновой концентрации частиц морского солевого аэрозоля характеризуется средним значением содержания Na^+ , равным 2,7 нмоль/ м^3 , летом и возрастанием концентрации зимой за счет дальнего переноса из региона Индийского океана и локальных выбросов, обусловленных сильным ветром. Хотя аналогичный годовой ход наблюдался и на внутриконтинентальной станции Dome Fuji, концентрация солевого аэрозоля оказалась в этом случае ниже – в пределах от 10% до нескольких десятков процентов (по сравнению с данными для станции Syowa). Солевой аэрозоль, наблюдавшийся на станции Dome Fuji, поступал за счет дальнего переноса из пограничного слоя и нижней тропосферы антарктических секторов Индийского, Атлантического и Тихого океанов (отсюда следует, в частности, что данные ледяных кернов должны содержать информацию об эволюции дальнего переноса, а также об источниках и осаждении (или аккумуляции) аэрозоля на поверхность снежного покрова).

Высвобождение морским солевым аэрозолем ионов Cl^- и Br^- на станции Syowa происходило главным образом летом. При этом молярные отношения Cl^-/Na^+ и Br^-/Na^+ составляли соответственно около 0,5 и 0. В процессе дальнего переноса могла происходить модификация свойств аэрозоля за счет гетерогенных химических реакций с участием SO_4^{2-} , CH_3SO_3^- , NO_3^- и их предшественников. Преимущественное высвобождение Cl^- (содержащегося главным образом в HCl) летом имело место также на ст. Dome Fuji, но значения Cl^-/Na^+ были более низкими в течение всего года. Ввиду наличия на ст. Dome Fuji положительной корреляции между

Na^+ и NO_3^- , а также присутствия таких химически активных малых газовых компонентов, как HNO_3 , N_2O_5 и NO_3 , в процессе переноса к этой станции могло возникать существенное высвобождение Cl^- (по-видимому, частицы солевого аэрозоля в Антарктике служат важными переносчиками NO_3^-). Концентрация Cl и Br (в газообразной фазе) на ст. Syowa изменялась соответственно в пределах от необнаружимой (BDL) до $5,3$ нмоль/ м^3 (при среднем значении $1,2$ нмоль/ м^3) и BDL $-1,4$ нмоль/ м^3 .

Из данных по годовому ходу концентрации Cl следует, что в условиях преимущественного высвобождения Cl^- солевыми частицами летом могла иметь место аккумуляция Cl^- зимой. На этом основании можно считать, что время жизни Cl^- имеет годовой ход, связанный с вариациями протяженности морского ледяного покрова. Концентрация Br^- заметно уменьшалась при низком содержании приземного озона. На обеих рассматриваемых станциях происходило уменьшение концентрации SO_4^{2-} , обусловленное образованием мирабилита. Зарегистрированный на ст. Dome Fuji спад концентрации сульфата мог возникать за счет сублимации на поверхности снега. При наличии сильного ветра на ст. Syowa в солевом аэрозоле наблюдалось фракционирование Mg^{2+} , K^+ и Ca^{2+} .

С целью определения изменяющихся со временем характеристик мобилизации и концентрации пылевого аэрозоля в регионах его источников Luo и др. [50] осуществили численное моделирование, позволяющее проанализировать процессы, обуславливающие поступление аэрозоля в атмосферу. Для осуществления подобного численного моделирования использованы данные двух серий реанализа метеорологической информации и два варианта параметризации источников аэрозоля, причем расчеты сделаны для шести регионов — источников аэрозоля.

Анализ результатов численного моделирования показал, что примерно 35–70% изменчивости мобилизации аэрозоля связано с суточным ходом мобилизации пылевого аэрозоля в рассматриваемых регионах-источниках, независимо от заданных метеорологических условий и параметризации источников. Изменчивость синоптического масштаба ответственна за 6–50% вариаций мобилизации аэрозоля при наличии более значительных различий в зависимости от метеорологических условий и выбора схемы параметризации источников. Изменчивость концентрации аэрозоля в регионе источников очень чувствительна к специфике метеорологических условий и к параметризации при вкладе синоптически обусловленной изменчивости в пределах 30–50% по отношению к суммарной изменчивости при некоторых условиях или 6–40% — в других условиях. Определяемая суточным ходом изменчивость варьирует в интервале от 20–50 до 25–80% в зависимости от специфики модели.

Из полученных в работе [49] результатов следует, что мобилизация пылевого аэрозоля и его концентрация в более сильной степени определяют

ся синоптической изменчивостью в регионах-источниках, находящихся в Австралии и Восточной Азии, чем в Северной Африке и Аравии, что согласуется с данными наблюдений холодных фронтов и перемещения циклонических систем, обуславливающих мобилизацию и дальний перенос аэрозоля. Контрасты изменчивости для различной априорной информации о метеорологических условиях и параметризации источников отображают возможности того, что обратные связи, влияющие на формирование круговоротов аэрозоля, могут быть чувствительны к параметризации источников и к специфическим особенностям модели.

Имеющий важное значение при численном моделировании климата учет атмосферного аэрозоля как климатообразующего фактора серьезно ограничивается недостаточной пространственной разрешающей способностью моделей. В связи с этим Sakumig и др. [10] предложили параметризацию выбросов пылевого аэрозоля в атмосферу, обусловленных мелкомасштабными циркуляциями атмосферы, путем задания функции вероятности распределения скорости ветра в пределах элементарной ячейки пространственного разрешения, которая зависит от скорости, непосредственно вычисляемой с использованием модели общей циркуляции атмосферы (МОЦА), а также амплитуды флуктуаций относительно этой скорости. При этом рассматриваемая МОЦА обеспечивает адекватную параметризацию планетарного пограничного слоя атмосферы с учетом процессов сухой и влажной конвекции.

Выбросы аэрозоля зависят от той доли значений скорости ветра, которые превосходят пороговый уровень скорости, определяющий возможность выбросов. Поэтому выбросы оказываются возможными при вычисленной с помощью МОЦА скорости ветра, которая ниже пороговой, если имеет место достаточно значительная подсеточная изменчивость скорости. Поскольку в рассматриваемой МОЦА доминирующее воздействие на выбросы аэрозоля оказывают подсеточные флуктуации ветра, обусловленные процессом сухой конвекции, это благоприятствует выбросам в регионах пустынь, где осуществляется интенсивное перемешивание в пограничном слое за счет сильного прогревания подстилающей поверхности. Частицы, выбрасываемые в пустынях, оказываются более удаленными от зон осадков и претерпевают перемешивание (посредством процесса сухой конвекции) в пределах более значительной толщи атмосферы, что способствует возрастанию характерного времени сухого и влажного осаждения аэрозоля и, соответственно, приводит к росту содержания аэрозоля в атмосфере при заданном уровне выбросов. Учет подсеточной изменчивости скорости ветра обеспечивает получение более надежных значений общего содержания аэрозоля в атмосфере в регионах Сахары и пустыни Такламакан, чем при использовании данных спутникового дистанционного зондирования аэрозольной оптической толщины.

Результаты недавних наблюдений свидетельствуют в пользу гипотезы, согласно которой важную

роль в образовании ультрамелких частиц атмосферного аэрозоля играет возникновение ионов (путем ионизации), функционирующих как агенты нуклеации. Эта гипотеза представляет большой интерес в контексте предположения о том, что наблюдаемая положительная корреляция между средним глобальным количеством облаков и интенсивностью галактических космических лучей (GCR), изменяющейся в ходе 11-летнего солнечного цикла, может быть объяснена как следствие влияющих на образование аэрозоля ионов, образующихся под воздействием GCR (в свою очередь, возникающие таким образом частицы аэрозоля функционируют как облачные ядра конденсации).

На основе использования теоретической модели индуцирования ионами образования аэрозоля, опирающейся на учет экспериментальных данных по термодинамике кластерных ионов, Kazil и Lovejoy [39] проанализировали образование в тропосфере ультрамелких частиц аэрозоля в зависимости от уровня фоновой ионизации и концентрации паров серной кислоты. Полученные результаты численного моделирования отображают возможность образования супермелких частиц аэрозоля за счет индуцированной ионами нуклеации. Как счетная концентрация, так и площадь поверхности подобных частиц существенно зависят от уровня ионизации, изменяющегося, в частности, под воздействием 11-летнего цикла GCR. Однако в зависимости от условий окружающей среды такого рода зависимость может быть как положительной, так и отрицательной. С учетом обнаруженной на основе численного моделирования возможности образования также больших частиц можно сделать вывод, что обусловленная ионами нуклеация является таким важным процессом в атмосфере, который может благоприятствовать проявлению в тропосфере «сигнала» воздействия солнечной активности.

Vana и др. [68] выполнили сравнение количественных характеристик процессов образования и роста аэрозольных частиц нуклеационной моды по данным наблюдений в трех пунктах: Нуутиälä и Värriö в Финляндии и Tahkuse в Эстонии. Программа наблюдений во всех трех пунктах включала измерения микроструктуры аэрозоля, а также подвижности ионов (Tahkuse). По данным наблюдений в течение 157 сут (в течение трех периодов: 28 марта – 2 мая 2000 г., 20 марта – 16 мая и 18 сентября – 19 ноября 2001 г.) события нуклеации наблюдались на 62, 50 и 45-е сут в Нуутиälä, Värriö и Tahkuse соответственно. Зарегистрированы 18 одновременных событий нуклеации во всех трех пунктах.

По данным о наблюдаемой микроструктуре аэрозоля получены оценки концентрации конденсируемого водяного пара, интенсивности его источников, скорости роста частиц, суммарного конденсационного стока, скорости образования частиц размером 3 нм, скорости образования и счетной концентрации 1-нанометровых частиц. Оценки скорости роста размеров частиц дали значения в пределах 2–9 нм/ч. Скорости роста, полученные по

данным измерений распределения подвижности ионов, привели к примерно таким же результатам. Концентрация конденсируемого водяного пара изменялась в диапазоне $(1-12) \cdot 10^7 \text{ см}^{-3}$, будучи меньше в Нуутиälä по сравнению с Tahkuse и Värriö. Скорость возрастания интенсивности источников составила $(6-55) \cdot 10^4 \text{ см}^{-3} \cdot \text{с}^{-1}$ (Tahkuse) и $(2-14) \cdot 10^4 \text{ см}^{-3} \cdot \text{с}^{-1}$ (Нуутиälä и Värriö). Конденсационный сток был, как правило, более значительным в Tahkuse, чем в двух других пунктах.

Анализ данных по микроструктуре аэрозоля в Tahkuse привел к выводу, что неучет частиц диаметром больше 500 нм порождает занижение интенсивности суммарного конденсационного стока. Доля фракции заряженных частиц нуклеационной моды оказалась в Tahkuse значительно выше, чем вероятность заряжения отдельной частицы. Рассмотрение траектории воздушных масс и данных метеорологических наблюдений продемонстрировало, что события нуклеации представляют собой явления синоптического масштаба при горизонтальной протяженности, превосходящей 1000 км.

Такие восстановленные соединения серы (RSC), как H_2S , COS , CH_3SH , CH_3SCH_3 , CS_2 , выбрасываются в атмосферу как биогенными источниками (образующимися путем ассимиляционного и неассимиляционного восстановления сульфата и в результате вулканической активности), так и антропогенными источниками (добыча природного газа, нефтеперерабатывающие и бумагоделательные производства, сжигание биомассы и др.), в конечном счете воздействуют на локальный и глобальный климат. Диметилсульфид (DMS), возникающий за счет обусловленной морским фитопланктоном биогенной продукции, является единственным газообразным соединением серы, имеющим природное происхождение, который воздействует на глобальный климат через посредство многоступенчатого и комплексного механизма обратных связей, который включает образование облачных ядер конденсации в атмосфере над океанами. Этот процесс влияет на альбедо морских слоистых облаков.

Как правило, RSC претерпевают фотоокисление и дальний перенос в другие регионы. Наибольшим содержанием в удаленной тропосфере характеризуется COS (образующийся в результате фотоокисления CS_2), средняя концентрация которого составляет около 500 трлн⁻¹. Ввиду низкой химической активности COS и, соответственно, длительного времени жизни в атмосфере (порядка 1 года) COS является единственным соединением серы (за исключением выбрасываемого вулканами SO_2), которое может достигать стратосферы. Поступление COS может быть важным источником поддержания слоя сульфатного стратосферного аэрозоля в вулканически спокойные периоды благодаря его эффективному фотолизу и трансформации в серную кислоту. Большинство RSC являются токсичными, поэтому могут причинять ущерб окружающей среде и человеку.

В связи с дефицитом информации о восстановленных соединениях серы в Южной Америке,

в нескольких пунктах двух районов Бразилии (All Saints Bay и Reconcavo Baiano) Nunes и др. [57] выполнили забор проб воздуха с помощью криогенных устройств для последующего анализа на содержание RSC с применением методик газовой хроматографии и пламенной фотометрии. В тех пунктах, где преобладали биогенные источники, концентрация COS варьировала в пределах 0,5–1,0 млрд⁻¹. Районы, свободные от воздействий промышленных выбросов, характеризовались низкой концентрацией всех летучих соединений серы ($\leq 0,25$ млрд⁻¹). Концентрация RSC возрастала, однако, вблизи от нефтеперерабатывающего комплекса (Самаçари): COS (8 млрд⁻¹), CH₃SH (1,50 млрд⁻¹), H₂S (1,35 млрд⁻¹), CS₂ (0,3 млрд⁻¹). В районе нефтеперерабатывающего комплекса в Landulfo Alves концентрация COS, DMS и CS₂ была равна соответственно 2,0; 0,55 и 0,2 млрд⁻¹.

Одним из наиболее важных последствий аэрозольных загрязнений атмосферы является ухудшение условий видимости. Подобная ситуация часто возникает в США, где снижение дальности видимости обусловлено главным образом мелкодисперсным аэрозолем, включая такие его разновидности, как карбонатный (элементный и органический), сульфатный, нитратный и пылевой (почвенный) аэрозоли. На основе использования глобальной трехмерной интерактивной модели аэрозоля и малых газовых компонентов-оксидантов (GEOS-CHEM) Park и др. [58] получили оценки влияния природных факторов и трансграничного переноса на формирование сульфатно-нитратно-аммониевого аэрозоля в условиях США. Соответствующие расчеты сделаны с целью воспроизведения эволюции содержания и химического состава аэрозоля в течение целого года (рассмотрены результаты, относящиеся к 1998 и 2001 гг.). Численное моделирование для условий 2001 г. привело к значениям среднегодовой массовой концентрации для сульфата аммония и нитрата, равной 1,52 и 1,53 мкг/м³ соответственно, в Западном регионе США и 4,11 и 3,26 мкг/м³ – в Восточном регионе. Оценки уровней природной концентрации дали значения, равные 0,11 и 0,03 мкг/м³. Результаты численного моделирования сопоставлены с данными наблюдений на сетях станций, созданных различными ведомствами в США. Исключение вклада антропогенных выбросов на территории США позволило проанализировать влияние природных факторов и дальнего переноса.

В работе [58] показано, что для сульфатных и нитратных компонентов аэрозоля вклад трансграничного переноса из Канады, Мексики и Азии в формирование состава аэрозоля доминирует по сравнению с природными факторами. Для фонового сульфатного компонента как в Западном, так и в Восточном регионах США доля вклада трансхоокеанского переноса азиатских загрязнений составляет около 30%. Результаты наиболее надежных расчетов природно обусловленных концентраций сульфата аммония и нитрата аммония либо согласуются, либо ниже оценок, полученных спе-

циалистами Агентства США по окружающей среде (EPA) для изменчивости видимости под воздействием природных факторов с целью установления пороговых уровней допустимых загрязнений. Наличие, однако, большого вклада трансграничных загрязнений, продемонстрированное обсужденными расчетами, свидетельствует о том, что достижение подобных уровней невозможно без принятия мер по международному контролю выбросов.

Хотя глобальные модели распределения аэрозоля способны адекватно воспроизвести многие наблюдаемые особенности массовой концентрации и оптической толщины аэрозоля, не вполне достоверными оказываются расчеты микроструктуры аэрозоля, характеризующиеся занижением концентрации больших частиц после дальнего переноса. Образование пылевого аэрозоля (ПА) обусловлено главным образом двумя взаимосвязанными процессами – сальтация и сандбластинг. Сальтация представляет собой процесс горизонтального перемещения больших частиц в турбулентной атмосфере. Сандбластингом называют выбросы пыли и более крупных частиц, обусловленные воздействием на подстилающую поверхность различных внешних факторов («сальтаторов»).

Grini и Zender [24] проанализировали причины упомянутых расхождений в оценках концентрации больших частиц ПА, связанные с не вполне адекватным учетом четырех факторов, ответственных за образование ПА. К числу этих факторов относятся: 1) микроструктура ПА в месте расположения его источника (рассматриваемая как постоянная или изменчивая с учетом процессов сальтации и сандбластинга); 2) распределение скорости ветра (задаваемое как осредненное или в виде функции плотности вероятности PDF); 3) структура (зернистость) почвы, являющейся источником аэрозоля; 4) уровень дискретизации микроструктуры аэрозоля. Для воспроизведения результатов полевого наблюдательного эксперимента PRIDE, осуществленного в Пуэрто-Рико в 2000 г. с целью получения данных о пылевом аэрозоле, использована глобальная модель вовлечения, дальнего переноса и осаждения ПА.

Полученные результаты показали, что совместный учет сальтации-сандбластинга приводит к более высоким значениям концентрации больших частиц, чем схемы, основанные на пренебрежении сандбластингом. Важным фактором, от которого зависит микроструктура поступающего в атмосферу аэрозоля, является структура почвы как источника аэрозоля. Переход от крупнозернистой структуры почвы и почвы с меньшими размерами зерен влечет за собой возрастание на 50% доли больших частиц аэрозоля (диаметр $D > 5$ мкм). Наилучшее согласие с данными PRIDE обеспечивает задание промежуточной структуры почвы, которая типична для Западной Африки, но также является главным компонентом ПА во всех регионах-источниках.

Henze и др. [30] предложили основанный на использовании формализма сопряженных уравнений обобщенный подход к анализу данных об

атмосферном аэрозоле в моделях его дальнего переноса и химической трансформации с учетом микроструктуры и химического состава многокомпонентного аэрозоля. В работе [30] обсуждены результаты испытаний адекватности рассматриваемой методики при задании начального распределения химического состава частиц по их размерам и концентрации водяного пара с полным или частичным учетом результатов измерений для всех компонентов состава аэрозоля. Показано, что применение методики сопряженных уравнений обеспечивает восстановление первоначальной микроструктуры аэрозоля и концентрации водяного пара даже при частичном учете входной информации, хотя в последнем случае успешность результатов зависит от специфики наблюдений, особенностей оценок начального состояния и длительности периода усвоения. Описанная методика является перспективной с точки зрения ее применения в трехмерных моделях переноса с учетом химической трансформации.

Системы конвективных облаков оказывают разнообразное воздействие на атмосферу и климат. За счет вымывания химически активных малых газовых компонентов они вносят вклад в образование кислотных осадков и трансграничное загрязнение атмосферы. Конвективные облака обуславливают дальний перенос и перемешивание МГК между пограничным слоем атмосферы и верхней тропосферой и, таким образом, влияют на распространение городских загрязнений и МГК в верхней тропосфере, что, в свою очередь, воздействует на перенос излучения. В результате молниевых разрядов конвективные облака оказываются важными источниками окислов азота NO_x — ключевого компонента глобального круговорота азота и важного фактора формирования поля концентрации озона в тропосфере. Конвективные облака — существенный фактор процессов образования нечетного водорода, связанных с переносом таких предшественников гидроксила OH , как перекись водорода, ацетон, формальдегид и другие перекиси. С другой стороны, будучи главным окисляющим компонентом тропосферы, OH регулирует распад почти всех МГК в атмосфере.

Поскольку до сих пор остаются слабо изученными взаимодействия между МГК и ледяной фазой облаков, Stuart и Jacobson [66] предприняли исследование соотношения между компонентами различной фазы при замерзании жидких гидрометеоров в процессе «сухого» роста за счет «райминга» (riming), который определяется как столкновения переохлажденных капель с ледяными частицами при последующем замерзании и образовании градовых частиц. Рассматриваемый процесс характеризуется наличием полного замерзания сталкивающихся капель при температуре поверхности претерпевающих райминг частиц ниже 0°C . В противоположность этому для «влажного» роста за счет райминга типично частичное замерзание гидрометеоров при температуре поверхности 0°C . Различные химические компоненты, первоначально растворенные в переохлажденных каплях воды, могут

либо удерживаться каплями, либо выбрасываться по мере их замерзания. От степени удержания зависит доступность различных компонентов для химических реакций в жидкой и газообразной фазах и для перемещения внутри облаков, что может оказывать существенное воздействие на распределение различных МГК в тропосфере и осаждение на подстилающую поверхность.

В связи с важностью надежного определения упомянутого удержания в работе [66] обсуждены возможности его расчета для условий «сухого» роста за счет райминга. Вычислены значения безразмерного индикатора удержания λ , которые сопоставлены с измеренными величинами доли Γ удерживаемого компонента. Такого рода сравнение выявило хорошее согласие. Вполне адекватной является параметризация: $\Gamma = 1 - \exp(-0,002\lambda)$, которая применима к целому ряду химических соединений.

Химически активные соединения кислорода (ROS), которые включают такие содержащие кислород компоненты, обладающие сильной окислительной способностью, как молекулы H_2O_2 , ионы типа иона гипохлорита (OCl^-), радикалы типа гидроксила OH и аниона супероксида O_2^- , образуются за счет фотохимических реакций в загрязненной атмосфере. При этом наиболее существенны два предшественника ROS — летучие органические соединения (VOC) и окислы азота (NO_x). Наблюдается эндогенное образование ROS биологическими системами с целью защиты от агрессивных организмов и других неблагоприятных факторов окружающей среды (например, от выбросов загрязнений двигателями). ROS могут быть также продуктом сжигания органических веществ (например, древесины и сигарет). Они обладают различным временем жизни в атмосфере, зависящим от специфики их источников и существуют как в газообразной, так и в аэрозольной фазах.

Было обнаружено, что содержание ROS в частицах аэрозоля определяется, в частности, возрастом частиц. Так, например, кремниевая пыль характеризуется высокой концентрацией свободных радикалов, которая экспоненциально уменьшается с полупериодом около 30 ч. Концентрация ROS в шлейфах, возникающих в дыму при сварке, также экспоненциально падает со временем, но с полупериодом около 10 сут. Было установлено, что «свежие» ROS обладают более сильным токсическим воздействием, чем «старые» ROS. Наличие ROS связано с патогенезом многих легочных заболеваний, включая астму, а также играет некоторую роль в развитии онкологических заболеваний.

По данным наблюдений в Rubidoux (Калифорния), Venkatachari и др. [69] изучили суточный ход содержания ROS в различных фракциях аэрозоля, пробы которых получены при помощи импактора через промежутки времени, равные 3 ч. Проанализированы факторы изменчивости содержания ROS при особом внимании к соотношению между концентрацией ROS и интенсивностью фотохимических реакций, индикатором которой служила концентрация приземного озона. Показано, что

роль фотохимических реакций как фактора, определяющего концентрацию ROS днем, является умеренной. Наблюдения продемонстрировали, что концентрация ROS больше в малых частицах аэрозоля, особенно в диапазоне размеров 10–56 нм.

Li и др. [46] обосновали алгоритм обработки данных двухканального лидара, который установлен на спутнике CALIPSO для зондирования атмосферы, с целью различения облаков и аэрозоля. Рассмотрены два варианта алгоритма, основанные на использовании одномерной (1-D) и многомерной функций распределения вероятности и составляющие основу для разработки оперативного алгоритма. Последний опирается на использование трехмерного (3-D)-подхода с учетом осредненных по слоям обратного рассеяния на длине волны 532 нм, отношения обратного рассеяния на длинах волн 1064 и 532 нм и средней высоты слоя. Для испытаний алгоритма послужили данные «облачного» лидара (CPL).

В работе [46] выполнены сравнения между результатами, полученными с применением трехмерного алгоритма CALIPSO и используемого в настоящее время двухмерного алгоритма, которые выявили достаточно хорошее согласие этих методик обработки данных. Однако после обработки данных для 228 264 слоев в 5,7% всех случаев результаты классификации оказались различными, что обусловлено главным образом погрешностями распознавания оптически тонких облаков как аэрозоля при использовании 2-D-алгоритма. Уровень подобных погрешностей существенно снижается в случае трехмерных PDF (алгоритм CALIPSO). Особые условия распознавания возникают при наличии пылевого аэрозоля в связи с тем, что рассеяние слоями пыли сходно с рассеянием, обусловленным облаками. В связи с этим был разработан дополнительный алгоритм, обеспечивающий распознавание оптически толстых слоев пылевого аэрозоля, подобных создаваемым под воздействием пылевых бурь в Сахаре. Исключение составляют, однако, пылевые слои очень большой оптической толщины.

Данные измерений температуры, при которой аэрозоль становится летучим, содержат информацию о наличии в частицах аэрозоля компонентов, обладающих низкой летучестью. Измеряя характеристики гигроскопического поведения аэрозоля, можно определить растворимость подобных компонентов с низкой летучестью. Для осуществления подобных измерений была разработана аппаратура анализатора дифференциальной подвижности VH-TDMA, которая впервые применена Johnson и др. [37] для измерений летучих фракций и гигроскопического роста частиц аэрозоля применительно к прибрежному аэрозолю и г. Брисбейну в Австралии. Прибрежный пункт наблюдений располагался на песчаной приливной полосе в 10 км от ближайшего шоссе и был окружен мангровым лесом и песчаной поверхностью, которая обнажалась во время отливов.

Результаты рассматриваемых натуральных измерений были сопоставлены с аэрозолем известного

состава, генерируемым в лаборатории. Согласно полученным результатам для частиц моды Айткена характерна динамика летучести, сходная с наблюдавшейся для лабораторного аэрозоля, состоявшего из метаносульфониной кислоты и сульфата аммония. Данные измерений, относящиеся к частицам размером 60 нм, возникающим во время событий нуклеации, содержали более значительную фракцию вещества с летучестью, близкой к соответствующей сульфату аммония. Эти частицы были гигроскопичными, но в меньшей степени, чем состоящие из чистого сульфата аммония. Наблюдения в центре г. Брисбейна в условиях морского бриза привели практически к тем же результатам, что и для прибрежного аэрозоля, но при наличии дополнительных компонентов аэрозоля с низкой летучестью. Подобный аэрозоль мог возникнуть за счет городских источников или частиц морского происхождения, приобретших дополнительные вторичные компоненты в ходе дальнего переноса.

Bauer и др. [7] обсудили осуществленный в рамках проекта MINATROC исследований пылевого аэрозоля и химии тропосферы опыт использования интерактивной глобальной модели общей циркуляции атмосферы с учетом гетерогенных химических реакций, происходящих на поверхности частиц минерального аэрозоля, с целью анализа воздействий подобных реакций на формирование поля концентрации тропосферного озона (ТО). Рассматриваемая модель обеспечивает, в целом, достоверное воспроизведение сахарского пылевого аэрозоля, но, по-видимому, приводит к недооценке содержания ПА над Восточной Азией и северной частью Тихого океана. Поэтому полученные оценки рассматриваются как характеризующие нижний предел потерь предшественников ТО, обусловленных гетерогенными реакциями.

Результаты вычислений показали, что среднглобальное среднегодовое уменьшение концентрации ТО за счет гетерогенных химических реакций составляет около 5%, достигая максимума (20%) над экваториальной Атлантикой и Африкой. Наиболее существенной оказалась потеря ТО за счет усвоения газообразной азотной кислоты на частицах ПА. Гетерогенные химические реакции обуславливают выведение из тропосферы около 35% азотной кислоты, что приводит к значительному ослаблению резервуара азота в фоновой тропосфере и, следовательно, к снижению уровня образования ТО в условиях чистой атмосферы.

Оценки влияния процесса усвоения различных малых газовых компонентов на глобальный бюджет ТО привели к выводу, что наиболее существенным компонентом является HNO_3 . Значительно более слабыми являются вклады усвоения N_2O_5 или NO_3 , порождающие разрушение всего лишь 1% ТО за счет усвоения этих МГК частицами аэрозоля. Несущественным оказывается и прямое усвоение O_3 аэрозолем, которое становится заметным лишь в условиях пылевых бурь и поэтому не сказывается в глобальных масштабах.

Наиболее значительные неопределенности обсуждаемых оценок связаны с недостаточной достоверностью значений коэффициентов усвоения (КУ). В случаях HNO_3 , N_2O_5 и O_3 подобные неопределенности слабо сказываются на среднглобальных оценках концентрации ТО, за исключением таких условий, когда происходят изменения КУ для HNO_3 на два порядка величины (таков реальный уровень расхождений для двух групп данных).

Результаты численного моделирования поля концентрации ТО сильно зависят от надежности вычислений концентрации HNO_3 (как правило, такого рода оценки оказываются завышенными). Ввиду высоких значений растворимости и вероятности усвоения HNO_3 рассчитанная концентрация HNO_3 тесно связана со спецификой химических реакций с участием аэрозоля. Поэтому модели, в которых учитываются лишь химические процессы в газовой фазе, не могут рассматриваться как адекватные. Поскольку в обсуждаемой модели не приняты во внимание все возможные механизмы образования нитратного аэрозоля, она может порождать завышение концентрации HNO_3 . Тем не менее сравнение с данными наблюдений в Центральной Африке, где влияние ПА должно быть значительным, продемонстрировало неожиданно хорошее согласие рассчитанных значений концентрации HNO_3 при учете гетерогенных реакций с наблюдаемыми величинами.

Хотя в рассматриваемой модели не учтены реакции с участием неметановых углеводородных соединений (NMHC), что не обеспечивало адекватного воспроизведения всей сложности химических процессов в условиях загрязненной атмосферы, полученные результаты численного моделирования оказались сравнительно реалистичскими. Расчеты показали, что около 80% спада концентрации ТО происходит в периоды событий запыления атмосферы и может быть объяснено поступлением в пункт наблюдений незагрязненных воздушных масс, а примерно 20% спада приходится на долю гетерогенных химических реакций с участием ПА. В случае наблюдавшегося в августе 2000 г. в Mount Simone (Северная Италия) сильного запыления атмосферы за счет сахарского ПА соответствующие уровни спада были равны 60 и 40%.

Rodriguez и Dabdub [60] проанализировали зависимость химического состава частиц аэрозоля от их размеров, полученную путем расчетов с использованием модели IMAGES глобальной эволюции химического состава атмосферы в процессе дальнего переноса в сочетании с моделью SCAPE-2 формирования химического состава частиц аэрозоля. Главное внимание уделено при этом численному моделированию равновесных значений концентрации аммония, нитрата, сульфата и воды с учетом взаимодействия с ионами морских солей и пыли. Для расчета дальнего переноса аэрозоля и малых газовых компонентов применена полулагранжева схема при задании полей среднемесячных значений метеорологических параметров по данным объек-

тивного анализа, выполненного в Европейском центре среднесрочных прогнозов погоды.

Рассмотрены вычисленные среднегодовые распределения сухой массы частиц аэрозоля по размерам для различных пунктов наблюдений в Северной Америке и Западной Европе, а также выполнено сравнение результатов численного моделирования с использованием интерактивной модели IMAGES-SCAPE2 и модели IMAGES для различных ключевых компонентов атмосферного аэрозоля. В случае нитрата значения концентрации, рассчитанные с использованием интерактивной модели, согласуются с данными наблюдений лучше, чем вычисленные на основе модели IMAGES.

Согласно полученным результатам микроструктура аэрозоля является, как правило, бимодальной. Наличие морского солевого и пылевого аэрозоля в регионах загрязненной атмосферы над континентами ведет к усилению образования сульфата на 20–80% (в атмосфере над океанами южного полушария влияние солевого аэрозоля доминирует). В этих условиях образование нитрата интенсифицируется в пределах 14–60%, тогда как процессы образования аммония ослабевают на 20–60%. Для многих европейских станций наблюдений характерна существенная роль нитрата как фактора формирования микроструктуры аэрозоля, но регионы максимальной концентрации нитрата на уровне поверхности совпадают с источниками интенсивных выбросов пылевого аэрозоля в Северной Африке, Саудовской Аравии и Центральной Азии. Время жизни нитрата в тропосфере составляет 7,69 сут. Наличие воды способствует изменению формы микроструктуры, состоящему в ее смещении в сторону частиц более значительных размеров.

В августе 2000 г. было начато осуществление программы FLAMBE с целью глобального мониторинга и численного моделирования процессов сжигания биомассы. Главная задача программы состояла в обеспечении 5-суточных прогнозов развития и последствий существенных эпизодов дальнего распространения дымов, возникающих при сжигании биомассы, на основе использования разработанной сотрудниками ВМС США модели NAAPS анализа и прогноза распространения дымов. Обоснованный сотрудниками Национальной администрации США по проблемам океана и атмосферы (NOAA) алгоритм WA_ABBA обеспечил обработку данных спутниковых наблюдений (геостационарные спутники GOES) очагов пожаров с повторяемостью, равной 0,5 ч.

Reid и др. [59] обсудили опыт прослеживания распределения дымового аэрозоля (ДА) и оценки потока ДА, поступающего в атмосферу, по данным наблюдений за 2001–2002 гг. В согласии с ранее полученными оценками поступление ДА в атмосферу составило 10–25 Тг/год. Хорошее соответствие с данными спутниковых (аппаратура MODIS) и сети наземных (AERONET) наблюдений обнаружило и сравнение значений аэрозольной оптической толщины. Характерной особенностью ДА (по сравнению с другими видами аэрозоля) является его

сильная пространственно-временная изменчивость, что затрудняет параметризацию дальнего переноса и трансформации свойств аэрозоля. Своевременный прогноз динамики поля содержания ДА может быть сделан лишь при условии задания потока ДА не более чем через 6 ч после его выбросов. Естественно поэтому, что единственным адекватным источником информации являются данные спутникового дистанционного зондирования.

За последние годы в различных точках земного шара наблюдались существенно повышенные значения концентрации ультрамелкого аэрозоля (частиц диаметром порядка нескольких нанометров). Хотя не вызывает сомнений, что образование такого рода частиц связано с процессом нуклеации, причины событий нуклеации оставались неизвестными. В этой связи интенсивно обсуждалась в научной литературе специфика таких метеорологических условий, которые могли благоприятствовать образованию новых частиц и росту их измеримых размеров. В частности, в некоторых работах изучалось влияние на микрофизические процессы развития планетарного пограничного слоя атмосферы (ПСА) и турбулентного перемешивания.

В этой связи Sieber и др. [63] обсудили результаты первых наблюдений ультрамелкого аэрозоля, выполненных в 2002 г. в рамках полевого наблюдательного эксперимента SATURN на высотах до 1200 м с использованием аппаратуры, которая была установлена на привязном аэростате. Главными компонентами комплекса аппаратуры были конденсационные счетчики частиц аэрозоля и датчики ACTOS для измерений характеристик турбулентности, а также датчики температуры и влажности воздуха. Анализ наблюдаемых вертикальных профилей счетной концентрации аэрозоля (СКА) выявил наличие вблизи инверсии, составлявшей часть ПСА, слоя повышенной СКА, достигавшей 600 см^{-3} при размере частиц в пределах 5–10 нм. При этом имела место высокая корреляция повышенной СКА с сильными флуктуациями температуры и влажности, порожденными вторжениями шлейфов, которые проникали через слой инверсии. Последнее обуславливало интенсивное перемешивание, которое способствовало значительному повышению скорости нуклеации. Наблюденные вблизи от слоя инверсии значения СКА существенно превосходили зарегистрированные в пределах приземного слоя и на уровне подстилающей поверхности. Этот факт свидетельствует в пользу гипотезы о том, что образование ультрамелких частиц происходило вблизи от инверсии, после чего частицы опускались на меньшие высоты, обуславливая повышение СКА на уровне подстилающей поверхности.

Исследованиям различных проявлений аэрозоля (влияние на формирование климата, гетерогенные химические реакции, изменения дальности видимости) должен предшествовать анализ их фазового состояния и гигроскопических свойств. К настоящему времени установлено, что частицы аэрозоля состоят как из неорганических, так и ор-

ганических компонентов. Так, например, по наблюдениям в ряде пунктов, средний химический относительный весовой состав мелкодисперсного городского аэрозоля характеризуется следующими данными: 37% (сульфат), 24 (органический углерод), 11 (аммоний), 5 (элементный углерод), 4% (нитрат). Если фаза и гигроскопические свойства такого компонента аэрозоля, как аммоний, были изучены довольно детально, то совсем мало известно о частицах органического и смешанного состава.

В связи с этим Pant и др. [57a] выполнили лабораторные измерения деликвесценции и кристаллизации частиц аммониевой сульфат-глутаричной и натриево-хлоридглутаричной кислот, имея в виду, что глутаричная кислота, являющаяся дикарбоксильной кислотой, была обнаружена как компонент частиц атмосферного аэрозоля, а сульфат аммония и хлорид натрия принадлежат к числу двух главных неорганических компонентов аэрозоля. Главной целью измерений было определение уровней относительной влажности (RH), при которых происходят деликвесценция (DRH) и кристаллизация (CRH) частиц упомянутого состава. Информация о DRH и CRH для частиц смешанного состава имеет критически важное значение для оценки роли аэрозоля в различных протекающих в атмосфере процессах.

Результаты измерений величин DRH находятся в хорошем согласии с полученными ранее, тогда как данные по CRH оказались существенно заниженными по сравнению с известными из научной литературы результатами. Обсуждаемые результаты измерений указывают на то, что в случаях DRH и CRH для сульфата аммония и хлорида натрия происходит лишь небольшое уменьшение этих величин, если молярная фракция кислоты не превышала 0,4. Если же и поведение других присутствующих в атмосфере органических соединений оказывается аналогичным, то значения DRH и CRH для частиц смешанного (органическо-неорганического) состава лишь несколько меньше, чем для чисто неорганических частиц в тех случаях, когда молярная фракция органики меньше 0,4. Можно, таким образом, сделать вывод, что если частицы содержат значительное количество органических соединений (молярная фракция больше 0,5), то происходит значительный спад уровня относительной влажности, при котором происходит кристаллизация. Это означает повышение вероятности сохранения частиц в жидкой фазе.

Заключение

Обсужденные выше результаты являются не более чем иллюстрацией к общему выводу о том, что современный уровень знаний об атмосферном аэрозоле очень далек от адекватного. Несомненно, необходима разработка долгосрочной международной программы всесторонних лабораторных и полевых исследований функционирования интерактивной совокупности процессов «аэрозоль – облака – малые газовые компоненты», осуществляемых

в тесной кооперации с усилиями в области численного моделирования соответствующих процессов.

1. *Бышев А.И., Нейман В.Г., Романов Ю.А.* О разнонаправленности изменений глобального климата на материках и океанах // Докл. РАН. 2005. Т. 400. № 1. С. 98–104.
- 1а. *Зуев В.В.* Лидарный контроль стратосферы. Новосибирск: Наука, 2004. 307 с.
2. *Кондратьев К.Я.* (ред.). Аэрозоль и климат. Л.: Гидрометеоздат, 1991. 542 с.
3. *Кондратьев К.Я.* Изменения глобального климата: реальность, предположение и вымыслы // Исслед. Земли из космоса. 2002. № 1. С. 3–23.
- 3а. *Кондратьев К.Я., Лосев К.С., Ананичева М.Д., Чеснокова И.В.* Естественнонаучные основы устойчивости жизни. М.: ВИНТИ, 2003. 240 с.
4. *Кондратьев К.Я.* Неопределенности данных наблюдений и численного моделирования климата // Тр. Всемирной конф. по изменению климата. М.: Гидрометеоздат, 2004. С. 196–215.
5. *Кондратьев К.Я., Крапивин В.Ф.* Глобальная динамика климата: перспективы разработок. 1. Стратегия развития Всемирной программы исследований климата // Изв. Рус. геогр. о-ва. 2005. Т. 137. Вып. 3. С. 1–12.
- 5а. *Кондратьев К.Я.* От нано- до глобальных масштабов: свойства, процессы образования и последствия воздействий атмосферного аэрозоля. 7. Аэрозольное возмущающее воздействие и климат // Оптика атмосф. и океана. 2005. Т. 18. № 7. С. 535–556.
6. *Кондратьев К.Я.* Свойства, процессы образования и последствия воздействий атмосферного аэрозоля. СПб.: ВВМ, 2005. 450 с.
7. *Bauer S.E., Balkanski Y., Schulz M., Hauglustaine D.A.* Global modeling of heterogeneous chemistry on mineral aerosol surfaces: Influence on tropospheric ozone chemistry and comparison to observations // J. Geophys. Res. 2004. V. 109. N 2. P. D02304/1–D02304/17.
8. *Berglen T.F., Berntsen T.K., Isaksen I.S.A., Sundet K.* A global model of the coupled sulfur/oxidant chemistry in the troposphere: The sulfur cycle // J. Geophys. Res. 2004. V. 109. N 19. P. D19310/1–D19310/27.
9. *Berndt T., Böge O., Stratmann F., Heintzenberg J., Kulmala M.* Rapid formation of sulfuric acid particles at near-atmospheric conditions // Science. 2005. V. 307. N 5710. P. 698–700.
10. *Cakmur R.V., Miller R.L., Torres O.* Incorporating the effect of small-scale circulations upon dust emission in an atmospheric general circulation mode 1 // J. Geophys. Res. 2004. V. 109. N 7. P. D07201/1–D07201/20.
11. *Carn S.A., Krueger A.J., Krotkov N.A., Gray M.A.* Fire at Iraqi sulfur plant emits SO₂ clouds detected by Earth Probe TOMS // Geophys. Res. Lett. 2004. V. 31. N 19. P. L19105/1–L19105/4.
12. *Cosme E., Hourdin F., Genthon C., Martinerie P.* Origin of dimethylsulfide, non-sea-salt sulfate, and methanesulfonic acid in eastern Antarctica // J. Geophys. Res. 2005. V. 110. D03302, doi: 10.1029/2004JD003881, 2005.
13. *Crahan K.K., Hegg D.A., Covert D.S.* Speciation of organic aerosols in the tropical mid-Pacific and their relationship to light scattering // J. Atmos. Sci. 2004. V. 61. P. 2544–2558.
14. *Czicco D.J., Murphy D.M., Hudson P.K., Thomson D.S.* Single particle measurements of the chemical composition of cirrus ice residue during CRYSTAL-FACE // J. Geophys. Res. 2004. V. 109. N 4. P. D04201/1–D04201/13.
15. *De Bell L.J., Talbot R.W., Dibb E., Munger J.W., Fischer E.V., Frohking S.E.* A major regional air pollution event in the northeastern United States caused by extensive forest fires in Quebec, Canada // J. Geophys. Res. 2004. V. 109. N 19. P. D19305/1–D19305/16.
16. *Easter R.C., Ghan S.J., Zhang Y., Saylor R.D., Chapman F.C., Laulainen N.S., Abdul-Razzak H., Leung L.R., Bian X., Zaveri R.A.* MIRAGE: Model description and evaluation of aerosol and trace gases // J. Geophys. Res. 2004. V. 109. N 20. P. D20210/1–D20210/46.
17. *Ebel A., Memmesheimer M., Friese E., Jakobs H.J., Feldmann H., Kessler C., Piekorz G.* Analysis of seasonal changes of atmospheric aerosols on different scales in Europe using sequentially nested simulations // Proc. 27th NATO/CCMS Intern. Tech. Meet on Air Pollution and its Application. Baniff Centre, Canada, 25–29 October 2004. 8 p.
18. *Ervens B., Feingold G., Frost G.J., Kreidenweis S.M.* A modeling study of aqueous production of dicarboxylic acids. 1. Chemical pathways and speciated organic mass production // J. Geophys. Res. 2004. V. 109. N 15. P. D15205/1–D15205/20.
19. *Ervens B., Feingold G., Clegg S.L., Kreidenweis S.M.* A modeling study of aqueous production of dicarboxylic acids. 2. Implications for cloud microphysics // J. Geophys. Res. 2004. V. 109. N 15. P. D15206/1–D15206/12.
20. *Essex C., McKittrick R.* Taken by storm. The Troubled Science, Policy and Politics of Global Warming // Key Porter Books. Toronto, 2002. 320 p.
21. *Gelencsér A.* Carbonaceous Aerosol. Netherlands. Dordrecht: Springer, 2004. 350 p.
22. *Glagolenko S., Phares D.J.* Single-particle analysis of ultrafine aerosol in College Station, Texas // J. Geophys. Res. 2004. V. 109. N 19. P. D18205/1–D18205/12.
23. *Gonzi S., Dubovik O., Baumgartner D., Putz E.* Clear-sky aerosol radiative forcing effects based on multi-side AERONET observations over Europe // Meteorol. and Atmos. Phys. 2005 (in press).
24. *Grini A., Zender C.S.* Roles of saltation, sandblasting, and wind speed variability on mineral aerosol size distribution during the Puerto Rican Dust Experiment (PRIDE) // J. Geophys. Res. 2004. V. 109. N 4. D07202/1–D07202/12.
25. *Haag W., Kärcher B.* The impact of aerosols and gravity waves on cirrus clouds at midlatitudes // J. Geophys. Res. 2004. V. 109. N 12. P. D12202/1–D12202/8.
26. *Han Z., Ueda H., Matsuda K., Zhang R., Arai K., Kanai Y., Hasome H.* Model study on particle size segregation and deposition during dust events in March 2002 // J. Geophys. Res. 2004. V. 109. N 19. P. D19205/1–D19205/22.
27. *Hand J.L., Mahowald N.M., Chen Y., Siefert R.L., Luo C., Subramaniam A., Fung I.* Estimates of atmospheric-processed soluble iron from observations and a global mineral aerosol model: Biogeochemical implications // J. Geophys. Res. 2004. V. 109. N 17. P. D17205/1–D17205/21.
28. *Hara K., Osada K., Kido M., Hayashi M., Matsunaga K., Iwasaka Y., Yamanouchi T., Hashida G., Fukatsu T.* Chemistry of sea-salt particles and inorganic halogen species in Antarctic regions: Compositional differences between coastal and inland stations // J.

- Geophys. Res. 2004. V. 109. N 20. P. D20208/1–D20208/18.
29. Henning S., Bojinski S., Diehl K., Ghan S., Nyeki S., Weingartner E., Wurzler S., Baltensperger U. Aerosol partitioning in natural mixed-phase clouds // Geophys. Res. Lett. 2004. V. 31. N 6. P. L06101/1–L06101/4.
 30. Henze D.K., Seinfeld T.H., Liao W., Sondu A., Carmichael G.R. Inverse modeling of aerosol dynamics: Condensational growth // J. Geophys. Res. 2004. V. 109. N 14. P. D14201/1–D14201/14.
 31. Herzog M., Weisenstein D.K., Penner J.E. A dynamic aerosol module for global chemical transport models: Model description // J. Geophys. Res. 2004. V. 109. N 18. P. D18202/1–D18202/12.
 32. Hoffer A., Kiss G., Blazsó M., Gelenczér A. Chemical characterization of humic-like substances (HULIS) formed from a lignin-type precursor in model cloud water // Geophys. Res. Lett. 2004. V. 31. N 6. P. L06115/1–L06115/4.
 33. Houghton J.T. Climate change and sustainable energy // Weather. 2005. V. 60. N 7. P. 179–185.
 34. Husain L., Parekh P.P., Dutkiewicz V.A., Khan A.R., Yang K., Swami K. Long-term trends in atmospheric concentrations of sulfate, total sulfur, and trace elements in the northeastern United States // J. Geophys. Res. 2004. V. 109. N 18. P. D18305/1–D18305/12.
 35. Igarashi Y., Sawa Y., Yoshioka K., Matsueda H., Fuji K., Dokiya Y. Monitoring the SO₂ concentration at the summit of Mt. Fuji and a comparison with other trace gases during winter // J. Geophys. Res. 2004. V. 109. N 17. P. D17304/1–D17304/21.
 36. Iizuka Y., Fujii Y., Hirasawa N., Suzuki T., Motoyama H., Furukawa T., Hondoh T. SO₄²⁻ minimum in summer snow layer at Dome Fuji, Antarctica and the probable mechanism // J. Geophys. Res. 2004. V. 109. N 4. P. D04307/1–D04307/6.
 37. Johnson G., Ristovski Z., Morawska L. Application of the VH-TDMA technique to coastal ambient aerosol // Geophys. Res. Lett. 2004. V. 31. N 16. P. L16105/1–L16105/4.
 38. Kerr R.A. How not will the greenhouse world be // Science. 2005. V. 309. N 5731. P. 100.
 39. Kazil J., Lovejoy E.R. Tropospheric ionization and aerosol production: A model study // J. Geophys. Res. 2004. V. 109. N 19. P. D19206/1–D19206/9.
 - 39a. Kojima T., Buseck P.R., Wilson J.C., Reeves J.M., Mahoney M.J. Aerosol particles from tropical convective systems: Cloud tops and cirrus anvils // J. Geophys. Res. 2004. V. 109. N 12. P. D12201/1–D12201/11.
 - 39b. Kondratyev K.Ya. Multidimensional Global Change // Wiley/Praxis. Chichester, U. K. 1998. 761 p.
 - 39в. Kondratyev K.Ya. Climatic Effects of Aerosols and Clouds // Springer/Praxis. Chichester, U.K. 1999. 264 p.
 40. Kondratyev K.Ya. Key aspects of global climate change // Energy & Environ. 2004. V. 15. N 3. P. 469–503.
 41. Kondratyev K.Ya., Krapivin V.F., Savinykh V.P., Varotsos C.A. Global Ecodynamics. A Multidimensional Analysis // Springer/Praxis. Chichester, U. K. 2004. 687 p.
 42. Kondratyev K.Ya., Krapivin V.F., Varotsos C.A. Atmospheric Aerosol Properties, Formation Processes and Climatic Impacts: From Nano- to Global Scales // Springer/Praxis, Chichester, U. K. 2005. 566 p.
 43. Kulmala M., Kerminen V.-M., Anttila T., Laaksonen A., O'Dowd C.D. Organic aerosol formation via sulphate cluster activation // J. Geophys. Res. 2004. V. 109. N 4. P. D04205/1–D04205/7.
 44. Lee S.-H., Wilson J.C., Baumgardner D., Herman B.L., Weinstuck E.M., LaFleur B.G., Kok G., Anderson B., Lawson P., Baker B., Strawa A., Pittman J.V., Reeves J.M., Bui T.P. New particle formation observed in the tropical/subtropical cirrus clouds // J. Geophys. Res. 2004. V. 109. N 20. P. D20209/1–D20209/7.
 45. Liao H., Adams P.I., Chung S.H., Seinfeld J.H., Mickley L.J., Jacob D.J. Interactions between tropospheric chemistry and aerosols in a unified general circulation model // J. Geophys. Res. D. 2003. V. 108. N 1. P. 1/1–1/23.
 46. Liu Z., Vaughan M.A., Winker D.M., Hostetler C.A., Poole L.R., Hlavka D., Hart W., McGill M. Use of probability distribution functions for discriminating between cloud and aerosol in lidar backscatter data // J. Geophys. Res. 2004. V. 109. N 15. P. D15202/1–D15202/15.
 47. Lohmann U. Can anthropogenic aerosols decrease the snowfall rate? // J. Atmos. Sci. 2004. V. 61. P. 2457–2468.
 48. Lohmann U., Leck C. Importance of submicron surface-active organic aerosols for pristine Arctic clouds // Tellus. 2005. V. 57B. P. 261–268.
 49. Lubin D., Satheesh S.K., McFarquar G., Haymesfield A. Longwave radiative forcing of Indian Ocean tropospheric aerosol // J. Geophys. Res. V. 107, doi: 10.1029/2001JD001183, 2002.
 50. Luo C., Mahowald N., Jones C. Temporal variability of dust mobilization and concentration in source regions // J. Geophys. Res. 2004. V. 109. N 20. P. D20202/1–D20202/13.
 51. Mann M.E., Johnes P.D. Global surface temperatures over the past two millennia // Geophys. Res. Lett. 2003. V. 30. N 15. 10.1029/2003CLO17814, August 14.
 52. Martonchik J.V., Diner D.J., Kahn R., Gattley B., Holben B.N. Comparison of MISR and AERONET aerosol optical depths over desert sites // Geophys. Res. Lett. 2004. V. 31. N 16. P. L1602/1–L1602/4.
 53. Matthias V., Balis D., Bösenberg J., Eixmann R., Iarlori M., Komguem M., Mattis I., Papayannis A., Pappalardo G., Perrone M.R., Wang X. Vertical aerosol distribution over Europe: Statistical analysis of Raman lidar data from 10 European Aerosol Research Lidar Network (EARLINET) stations // J. Geophys. Res. 2004. V. 109. N 18. P. D18201/1–D18201/12.
 54. McIntyre S., McKittrick R. Corrections to the Mann et al. (1998) proxy data base and Northern Hemisphere temperature series // Energy and Environ. 2003. V. 14. N 6. P. 751–757.
 55. McIntyre S., McKittrick R. Hockey sticks, principal components, and spurious significance // Geophys. Res. Lett. 2005. V. 32. L03710, doi: 10.1029/2004GL021750.
 56. Medina J., Nenes A. Effects of film-forming compounds on the growth of giant cloud condensation nuclei: Implications for cloud microphysics and the aerosol indirect effect // J. Geophys. Res. 2004. V. 109. N 20. P. D20207/1–D20207/14.
 57. Nunes L.S.S., Tavares T.M., Dippel J., Jaeschke W. Measurements of atmospheric concentrations of reduced sulphur compounds in the All Saints Bay area in Bahia, Brazil // J. Atmos. Chem. 2005. V. 50. N 1. P. 79–100.
 - 57a. Pant A., Fok A., Parsons M.T., Mak J., Bertram A.K. Deliquescence and crystallization of ammonium sulfate-glutaric acid and sodium chloride-glutaric acid particles // Geophys. Res. Lett. 2004. V. 31. N 12. P. L12111/1–L12111/4.

58. *Park R.J., Jacob D.J., Field B.D., Yantosca R.M., Chin M.* Natural and transboundary pollution influences on sulfate-nitrate-ammonium aerosols in the United States: Implications for policy // *J. Geophys. Res.* 2004. V. 109. N 15. P. D15204/1–D15204/17.
59. *Reid J.S., Prins E.M., Westphal D.L., Schmidt C.C., Richardson K.A., Christopher S.A., Eck T.F., Reid E.A., Curtis C.A., Hoffman J.P.* Real-time monitoring of South American smoke particle emissions and transport using a coupled remote sensing/box-model approach // *Geophys. Res. Lett.* 2004. V. 31. N 6. P. L06107/1–L06107/5.
60. *Rodriguez M.A., Dabdub D.* IMAGES-SCAPE2: A modeling study of size- and chemically resolved aerosol thermodynamics in a global chemical transport model // *J. Geophys. Res.* 2004. V. 109. N 2. P. D02203/1–D02203/27.
- 60a. *Russak V., Kallis A.* (Eds.). Eesti Kiirguskliima Teatmik (Hand Book of Estonian Solar Radiation Climate) // Maailma Meteorologiaorganisatsioon, Tallinn, 2003. 384 p.
61. *Santarpia J., Li R., Collins D.R.* Direct measurement of the hydration state of ambient aerosol population // *J. Geophys. Res.* 2004. V. 109. N 18. P. D18209/1–D18209/16.
62. *Sharma S., Lavoué D., Cachier H., Barrie L.A., Gong S.L.* Long-term trends of the black carbon concentrations in the Canadian Arctic // *J. Geophys. Res.* 2004. V. 109. N 15. P. D15203/1–D15203/10.
63. *Sieber T.H., Stratmann F., Wehner B.* First observations of increased ultrafine particle number concentrations near the inversion of a continental planetary boundary layer and its relation to ground-based measurements // *Geophys. Res. Lett.* 2004. V. 31. N 9. P. L09102/1–L09102/4.
64. *Sievering H., Caine J., Harvey M., McGregor I., Nichol S., Quinn P.* Aerosol non-sea-salt sulfate in the remote marine boundary layer under clear-sky and normal cloudiness conditions: Ocean-derived biogenic alkalinity enhances sea-salt sulfate production by ozone oxidation // *J. Geophys. Res.* 2004. V. 109. N 19. P. D19317/1–D19317/12.
65. *von Storch H.* Hockey sticks, the tragedy of the commous and sustainability of climate science // Talk at NCAR July 8, 2005 (<http://w3g.gkss.de/stafi/storch/PPT/paleo/050780.ncak.ppt>).
66. *Stuart A.L., Jacobson M.Z.* Chemical retention during dry growth riming // *J. Geophys. Res.* 2004. V. 109. N 7. P. D07305/1–D07305/10.
67. *Taha G., Thomason L.W., Burton S.P.* Comparison of Stratospheric Aerosol and Gas Experiment (SAGE) II version 6.2 water vapor with balloon-borne and space-borne instruments // *J. Geophys. Res.* 2004. V. 109. N 18. P. D18313/1–D18313/11.
68. *Vana M., Kulmala M., Dal Maso M., Hörrak U., Tamm E.* Comparative study of nucleation mode aerosol particles and intermediate air ions formation events at three sites // *J. Geophys. Res.* 2004. V. 109. N 17. P. D17201/1–D17201/10.
69. *Venkatachari P., Hopke P.K., Grover B.D., Eatough D.J.* Measurement of particle-bound reactive oxygen species in Rubidoux aerosols // *J. Atmos. Chem.* 2005. V. 50. N 1. P. 49–58.
70. *Wise M.E., Garland R.M., Tolbert M.A.* Ice nucleation in internally mixed ammonium sulfate/dicarboxylic acid particles // *J. Geophys. Res.* 2004. V. 109. N 19. P. D19203/1–D19203/14.
71. *Xue H., Feingold G.* A modeling study of the effect of nitric acid on cloud properties // *J. Geophys. Res.* 2004. V. 109. N 18. P. D18204/1–D18204/13.
72. *Yin Y., Carlslow K.S., Feingold G.* Vertical transport and processing of aerosols in a mixed-phase convective cloud and the feed pack on cloud development // *Quart. J. Roy. Meteorol. Soc.* 2005. V. 131. Part A. N 605. P. 221–246.

K.Ya. Kondratyev. Aerosol and climate: The present state and prospects of development.
1. Formation, properties of aerosols and their transformations.

A review of the most recent investigations on «aerosol and climate» problem, which principle aim is to demonstrate (on the basis of recent publications) high level of complexity and uncertainties in taking into account of climate-forming role of interactive «aerosol – cloud – minor gas component» subsystem as a part of the climatic system is presented.