

К.Я. Кондратьев

# Аэрозоль как климатообразующий компонент атмосферы

## 1. Физические свойства и химический состав

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

Поступила в редакцию 17.09.2001 г.

Сделан обзор полученных за последние годы данных о физических свойствах и химическом составе атмосферного аэрозоля в контексте исследований аэрозоля как климатообразующего компонента атмосферы. Особое внимание уделено обсуждению результатов полевого наблюдательного эксперимента по изучению свойств аэрозоля (АСЕ). Кратко проанализированы основные процессы, ответственные за образование атмосферного аэрозоля. Подведены итоги новых усилий по обоснованию моделей атмосферного аэрозоля. Охарактеризованы основы численного моделирования с целью воспроизведения пространственно-временной изменчивости трехмерных полей счетной концентрации и микроструктуры аэрозоля.

### Введение

В 1988 г. под эгидой Всемирной метеорологической организации (ВМО) и Программы ООН по окружающей среде (ЮНЕП) была создана Межправительственная группа экспертов по проблеме изменений климата (МГЭИК), перед которой была поставлена задача подготовки итоговых обзорных отчетов по всем аспектам проблемы изменений глобального климата, включая (в особенности) антропогенные воздействия на климат. Для решения этой задачи было привлечено максимально возможное число (сотни) специалистов, а также представителей правительств. В рамках МГЭИК учреждены три рабочие группы (РГ), ответственные за: 1) научные разработки по проблеме изменений климата (руководителем РГ-1 избран и остается до сих пор проф. Д.Т. Хотон из Великобритании); 2) анализ возможных воздействий изменений климата на человека и его хозяйственную деятельность; 3) обоснование рекомендаций относительно мер, способных предотвратить нежелательные изменения климата.

В 1990 г. был опубликован первый отчет МГЭИК-1990, который сыграл важную роль в разработке международной Рамочной конвенции по проблеме изменений климата (РКИК), одобренной в 1992 г. Второй Всемирной конференцией по проблемам окружающей среды и развития, состоявшейся в Рио-де-Жанейро. В 1996 г. вышел в свет второй отчет МГЭИК-1996 (SAR), которому предшествовало опубликование нескольких промежуточных отчетов по различным аспектам проблемы изменений глобального климата. Наконец, в 2001 г. завершилась работа по подготовке и опубликованию третьего отчета (TAR). Все эти три отчета подвергались двойному рецензированию с участием многих сотен специалистов и представителей

правительств, что должно было обеспечить высокое качество, полноту и объективность отчетов.

Важное обстоятельство состоит в том, что каждый отчет содержал Резюме для лиц, принимающих решение (SPM), текст которого согласовывался с представителями более 100 стран и имел целью четкое (недвусмысленное) изложение главных результатов и выводов. Д. Хотон [36, 39] сделал краткий обзор содержания TAR, в котором особое внимание уделено таким проблемам, как учет радиационных возмущающих воздействий (RF), обусловленных ростом концентрации в атмосфере парниковых газов (ПГ), при численном моделировании климата, и влияние RF на формирование общей циркуляции атмосферы и океана, исходя из того, что наиболее существенными и вероятными последствиями изменений климата должны быть подъем уровня Мирового океана и интенсификация глобального гидрологического круговорота.

Что касается RF (определяемого как изменение радиационного баланса системы «подстилающая поверхность – атмосфера» за счет факторов, порождающих изменения климата), то не вызывают серьезных трудностей оценки той его части, которая обусловлена изменениями концентрации ПГ. Совсем иначе обстоит дело с оценками «аэрозольного» RF, особенно его «косвенного» компонента, отображающего воздействие атмосферного аэрозоля на свойства облачного покрова [45–48]. Согласно SAR значения «коротковолнового» RF за период с 1850 г. варьируют в пределах от 0,1 до  $-0,5 \text{ Вт/м}^2$  (уровень «парникового» воздействия за тот же срок составил  $2,4 \text{ Вт/м}^2$  и, таким образом, влияние ПГ преобладает). Что касается причин изменений глобального климата в XX в. (обычно рассматривается вековой ход среднегодовой среднелобальной приземной температуры воздуха – ПТВ), то результаты численного моделирования климата показывают

следующее: помимо внутренне обусловленной изменчивости климатической системы не вызывает сомнений наличие влияния таких факторов, как рост концентрации ПГ и антропогенного аэрозоля, вулканические извержения и внеатмосферная инсоляция.

Очень важный аспект проблемы состоит в распознавании антропогенно обусловленных изменений климата. Содержащийся в Отчете МГЭИК-1996 вывод о том, что «баланс несомненных данных предполагает наличие различного влияния человека на климат», нашел, по мнению Д. Хотона [36], еще более убедительное подтверждение. Особое внимание уделялось за последние годы проблеме глобального круговорота углерода в контексте влияния биосферы на его формирование, поскольку до сих пор нет полной ясности в том, является ли глобальная биосфера источником или стоком углерода и, тем более, – останутся ли трудно предсказуемыми изменения круговорота углерода в будущем [12, 47]. В среднем для всего земного шара растительный покров был в 1980-е гг. источником углекислого газа, но в 1990-е гг. возникла противоположная тенденция функционирования растительности как стока  $\text{CO}_2$ . Вероятно, подобная ситуация сохранится в случае биосферы суши и в первой половине XXI в., но позднее она может трансформироваться в источник углерода.

Значительные успехи достигнуты в совершенствовании численных моделей глобального климата, особенно с точки зрения учета взаимодействия атмосферы и океана, что позволило устранить (во многих моделях) использование так называемой «поточковой поправки». Серьезным прогрессом характеризуются разработки, касающиеся численного моделирования регионального климата и посвященные, например, анализу возможного воздействия глобального потепления на такие явления, как Эль-Ниньо/Южное колебание (ЭНЮК) и на термохалинную циркуляцию (из палеоклиматической информации следует, что последняя разрушалась в прошлом несколько раз).

Если исходить из того, что скорость изменения климата в XXI в. будет, вероятно, более высокой, чем за последние 10 тыс. лет, то отсюда вытекают, в частности, два важных вывода, связанные с глобальным потеплением: 1) разрушительные воздействия (для ряда стран) подъема уровня океана; 2) значительные изменения глобального гидрологического круговорота, которые могут сопровождаться усилением как наводнений, так и засух. В соответствии со статьей 3 РКИК «... должны быть приняты меры предосторожности для предвидения, предотвращения или минимизации причин изменения климата и смягчения их неблагоприятных воздействий. При наличии угроз серьезного или неотвратимого разрушения отсутствие полной научной неопределенности не должно быть использовано как причина для отлагательства принятия подобных мер, учитывая, что такого рода меры должны быть экономически оправданными и обеспечивающими пользу в глобальных масштабах при наименьших затратах». При этом, согласно статье 2, «Конечная цель Конвенции состоит в том, чтобы достигнуть ста-

билизации ПГ на уровне, который достаточен для предотвращения опасного антропогенного воздействия на климатическую систему. Подобный уровень должен быть достигнут за время, достаточное для природной адаптации экосистем к изменениям климата для избежания угрозы производству пищи и для обеспечения устойчивого экономического развития». По мнению Всемирного Совета по энергетике (WEC), наиболее важная задача промышленно развитых стран состоит в том, чтобы уменьшить выбросы углекислого газа в атмосферу к 2020 г. примерно на 30%. Это потребует затрат порядка 1% от глобальной валовой продукции.

В контексте острых дискуссий по Протоколу Киото [9], которые происходили, в частности, во время совещания руководителей группы 8 государств в Генуе 21–22 июля 2001 г., главное внимание привлекает высокая степень неопределенности количественных оценок антропогенных воздействий на глобальный климат. Одна из главных неопределенностей связана с отсутствием адекватной информации о глобальной пространственно-временной изменчивости концентрации аэрозоля различных типов, физических (особенно оптических) свойствах аэрозоля и его влиянии на микрофизические процессы в облаках. Эти обстоятельства серьезно осложняют оценки влияния атмосферного аэрозоля на климат. Цель первой части настоящего обзора состоит в том, чтобы обсудить информацию, касающуюся физических свойств и химического состава атмосферного аэрозоля. Следует заметить, что этой проблематике посвящена 5-я глава TAR, небольшая часть материалов которой воспроизведена далее. К сожалению, авторы главы TAR об аэрозоле [39] полностью проигнорировали разработки, выполненные в России (несмотря на конкретные предложения, высказанные автором настоящего обзора после ознакомления с предварительным текстом главы), а также и многие другие важные результаты. Именно эти обстоятельства стимулировали написание данного обзора с учетом того, что многие вопросы, составляющие предмет обзора, были обсуждены ранее [1–82].

## 1. Процессы формирования и свойства атмосферного аэрозоля

Атмосферный аэрозоль является продуктом сложной совокупности химических и физических процессов. Вследствие сложности этих процессов и относительно короткого времени жизни химический состав и физические характеристики аэрозоля очень изменчивы. Пространственно-временная изменчивость характеристик аэрозоля настолько велика, а данные наблюдений в такой степени фрагментарны, что пока еще невозможны достаточно достоверные оценки общего бюджета аэрозоля различных типов, а имеющиеся оценки мощности глобальных источников природного и антропогенного аэрозоля сугубо ориентировочны.

Несомненно однако, что оценки антропогенного аэрозоля более достоверны, чем природного (особенно

в труднодоступных регионах Мирового океана и континентов). Подобная ситуация определяет малую достоверность данных о соотношении между природным и антропогенным аэрозолем, хотя несомненно проявляющееся в глобальных масштабах воздействие хозяйственной деятельности человека на круговороты серы и азота.

Классификация атмосферного аэрозоля в зависимости от его состава или источников позволяет выделить следующие типы природного аэрозоля: 1) продукты испарения морских брызг; 2) поднятая ветром в атмосферу минеральная пыль; 3) вулканический аэрозоль (как непосредственно выброшенный в атмосферу, так и образовавшийся за счет газофазных реакций); 4) частицы биогенного происхождения (непосредственно выброшенные в атмосферу и образовавшиеся в результате конденсации летучих органических соединений, например терпенов, а также химических реакций между этими соединениями); 5) дымы от сжигания биоты на суше; 6) продукты природных газофазных реакций (например, сульфаты, возникающие за счет восстановленной серы, поступающей с поверхности океана при выбросах диметилсульфида [47, 48]).

К числу важных типов антропогенного аэрозоля принадлежат также: 1) непосредственные промышленные выбросы частиц (частицы сажи, дыма, дорожной пыли и др.); 2) продукты газофазных реакций.

Целесообразно, помимо этого, различать тропосферный и стратосферный (преимущественно вулканический) аэрозоли.

Большое внимание привлекают газофазные реакции образования аэрозоля за счет следующих процессов: 1) однородной гомомолекулярной нуклеации (образование новых устойчивых жидких или твердых мельчайших частиц из газовой фазы при наличии лишь одного газового компонента); 2) однородной гетеромолекулярной нуклеации (аналогичный процесс в присутствии двух или более газов); 3) гетерогенной гетеромолекулярной конденсации (рост уже существующих частиц за счет адсорбции газа).

Согласно [39] следует различать следующие первичные и вторичные источники аэрозоля: почвенная пыль, морские соли, промышленная пыль и первичный антропогенный аэрозоль, углеродный аэрозоль (органический и черный углерод), первичный биогенный аэрозоль, сульфаты, нитраты и вулканический аэрозоль.

Исключительно сложны и пока еще плохо изучены фотохимические и химические реакции, которые ответственны за первоначальную трансформацию «высоко летучего» газа в газовой компонент, являющийся исходным для образования аэрозоля. По-видимому, наиболее существенны следующие процессы: 1) реакция сернистого газа с радикалами гидроксила, которые в конечном счете приводят к образованию молекул серной кислоты и сернокислотного аэрозоля; 2) реакции неметановых углеводородных соединений с озоном и (или) радикалами гидроксила с образованием альдегидов, спиртов, карбоксильных и

дикарбоксильных кислот (как правило, вторичные продукты этих реакций вступают в реакцию с окислами азота, что приводит к образованию органических нитратов).

Очень важную роль в химии атмосферы играют озон и радикалы гидроксила ( $\text{HO}$  и  $\text{HO}_2$ ), которые прямо или косвенно являются продуктами фотохимических реакций (именно поэтому процессы газофазного образования частиц характеризуются обычно сильным суточным ходом).

К числу важнейших типов атмосферного аэрозоля принадлежат частицы органических соединений [8]. Разнообразные органические соединения участвуют в столь большом числе реакций, что исследования органического аэрозоля наталкиваются на исключительные трудности. Весьма значительна концентрация в атмосфере сажевых частиц, достигающая над океанами средних значений около  $0,5 \text{ мкг/м}^3$ , которая сравнима с концентрацией минерального аэрозоля. По-видимому, источники глобального органического аэрозоля являются в равной степени природными и антропогенными, причем примерно половина продукции природного аэрозоля приходится на долю океана.

Результаты воздействия аэрозоля на различные процессы (например, перенос излучения) зависят, как правило, от совокупности химических и физических процессов, причем почти всегда существенную роль играет зависимость состава от размера частиц аэрозоля. Поэтому адекватное описание свойств реального аэрозоля возможно лишь на основе использования результатов комплексного определения его характеристик. Один из наиболее распространенных видов аэрозольных измерений – определение его массовой концентрации, но именно эта характеристика наименее информативна, поскольку ничего не говорит об источниках, составе аэрозоля и его возможных воздействиях.

Круговороты аэрозоля тесно связаны с гидрологическими процессами в атмосфере вследствие существенного взаимодействия между аэрозолем и облаками: облака и осадки играют важную роль в образовании, трансформации и удалении аэрозоля из атмосферы, но, с другой стороны, аэрозоль существенно влияет на микрофизические процессы в облаках. Отнюдь не случаен тот факт, что в большинстве районов земного шара время жизни аэрозоля в нижней и верхней тропосфере составляет 1–2 нед, а для водяного пара оно равно 10 сут. Связь между облаками и аэрозолем свидетельствует о невозможности достаточно полного понимания процессов образования и трансформации аэрозоля без надежных представлений о физике и химии облаков. Критически важное значение имеют в этой связи исследования механизмов нуклеации.

Вполне обоснованны опасения относительно возможного антропогенно обусловленного возрастания содержания аэрозоля, которое может оказывать воздействие на климат как посредством изменения радиационного баланса Земли, так и путем влияния на

гидрологический цикл. Сильная пространственно-временная изменчивость характеристик аэрозоля затрудняет, однако, выделение ее антропогенного компонента. Это может стать возможным лишь при условии понимания причин подобной изменчивости, что требует осуществления широкой программы комплексных исследований атмосферного аэрозоля.

Вслед за многолетними исследованиями атмосферного аэрозоля в рамках программ КЭНЭКС и ГАРЭКС [6,7,48] были предприняты многочисленные новые разработки. Главную цель этого обзора составляет обсуждение этих новых результатов.

### **1.1. Полевой эксперимент ACE**

С целью получения более надежной информации об аэрозоле и уточнения оценок его влияния на климат в рамках ключевого проекта МГБП по глобальной химии атмосферы (IGAC) была разработана программа Первого эксперимента по изучению свойств аэрозоля (ACE-1), направленная на исследование химических и физических процессов, определяющих свойства морского аэрозоля в южном полушарии, и получение оценок его влияния на климат [17, 18]. Решение этих задач потребовало дальнейшей разработки глобальных моделей переноса аэрозоля с учетом его химической трансформации, применения теории переноса излучения в условиях ясной и облачной атмосферы для расчета радиационных потоков и притоков тепла, для анализа взаимодействия аэрозоля с различными компонентами климатической системы.

Не менее важные цели состояли в получении адекватной информации о таких характеристиках, определяющих влияние аэрозоля на перенос излучения, как эффективность рассеяния света на единицу массы  $\alpha_{sp}$ ; доля света, рассеянного назад,  $\beta$ ; коэффициент асимметрии индикатрис рассеяния  $g$ , альbedo однократного рассеяния  $\omega_0$ , зависимость аэрозольного рассеяния от относительной влажности  $f_{sp}(RH)$ . Все эти характеристики зависят от химического состава, микроструктуры, морфологии и других свойств аэрозоля. Ввиду большой роли аэрозоля газофазного происхождения важное значение имеют сведения о его газообразных предшественниках.

Получение надежной информации о влиянии аэрозоля на климат возможно лишь путем осуществления комплексной программы наблюдений в натуральных и лабораторных условиях в сочетании с численным моделированием. Программа ACE задумана как серия полевых наблюдений в различных репрезентативных регионах земного шара. Ставятся следующие три главные цели: 1) получение данных о физических и химических свойствах основных типов аэрозоля (а также о взаимодействиях между этими свойствами), включая информацию о характеристиках аэрозоля, определяющих его влияние на образование облаков (нуклеационные свойства); 2) исследование физических и химических процессов, контролирующих образование и эволюцию главных типов аэрозоля, и свойства, определяющие его микроструктуру, химический состав,

радиационные и нуклеационные характеристики; 3) проверка надежности различных схем параметризации аэрозоля в региональных и глобальных моделях климата.

Полевой наблюдательный эксперимент по изучению свойств атмосферного аэрозоля, осуществленный в период с 15 ноября по 14 декабря 1995 г. над юго-западным сектором Тихого океана (к югу от Австралии), был первым из серии подобных наблюдательных программ по изучению физических, химических и нуклеационных свойств атмосферного аэрозоля, запланированных в рамках Международной программы по изучению химических процессов в глобальной атмосфере [18]. Участниками ACE-1 были 47 исследовательских организаций из 11 стран. Наблюдения были выполнены с использованием самолета-лаборатории C-130 НАСА, двух научно-исследовательских судов и на островных станциях.

Имея в виду особую роль диметилсульфида, выбрасываемого в атмосферу океаном, ученые исследовали характеристики четырех водных масс в регионе эксперимента с целью проанализировать влияние их физических, химических и биологических свойств на содержание различных малых газовых компонентов в атмосфере. В этой связи важно, что океан является источником поступления в атмосферу таких биогенных выбросов, как диметилсульфид (DMS), углеводородные соединения, метилнитраты и метилгалиды [8]. Океан может быть также источником биогенного карбоната кальция, способствующего усилению щелочности морского солевого аэрозоля и обусловленного озоном окисления находящегося в составе «аэрозольной» воды сернистого газа.

Опубликованные ранее результаты указывают на то, что в рассматриваемом регионе доминирующим компонентом аэрозоля является морской солевой аэрозоль (это относится к 90% частиц диаметром  $>130$  нм и к 70% частиц диаметром  $>80$  нм). В 50% частиц аэрозоля диаметром  $>160$  нм обнаружены связанные с морской солью органические компоненты. Все это отображает необходимость учета морского солевого аэрозоля в моделях климата, поскольку он контролирует не только рассеяние солнечной радиации, но и концентрацию облачных ядер конденсации.

Обсужденные Т. Бейтсом [17, 18] результаты показали, что даже в удаленном океанском регионе все же заметно проявляются антропогенные воздействия на атмосферу и свойства аэрозоля. Так, например, на высотах более 3 км наблюдались слои, которые содержали претерпевшие старение продукты сжигания биомассы. Около 11–46% частиц сульфатного аэрозоля диаметром  $>100$  нм содержали сажу, источником которой было, вероятно, сжигание биомассы в Южной Африке.

Данные ACE-1 позволяют оценить роль биогенных компонентов в образовании и росте новых частиц аэрозоля. Наблюдалось также фотохимическое образование новых частиц из серной кислоты на участках «выбросов» из облаков. Результаты численного моделирования свидетельствуют о том, что около 30–50% DMS преобразуется в  $SO_2$ , причем главным стоком

для этого сернистого газа служит его обусловленное озоном окисление в «аэрозольной» воде. Несолевые сульфаты содержались главным образом в супермикронных солевых частицах, составляя  $(35 \pm 10)\%$  летом и  $(58 \pm 22)\%$  зимой.

## 1.2. Фоновый морской аэрозоль

Атмосфера в удаленных регионах Мирового океана представляет собой химически динамичную систему, в которой происходит, в частности, образование морского солевого аэрозоля (в результате разрушения водяных капель, попадающих под воздействием морского волнения в атмосферу) и несолевого аэрозоля (NSS) как продукта газофазных реакций преобразования выбрасываемого из океана в атмосферу биогенного диметилсульфида. С целью проверки целого ряда гипотез относительно источников и свойств морского фонового аэрозоля Б. Хуберт и др. [38] проанализировали результаты самолетных измерений концентрации NSS, а также анионов и катионов метаносульфата (MS), аммония, калия, нитрата и других газовых компонентов, сделанных в период наблюдательного полевого эксперимента ACE-1 и на наземной станции на мысе Грим.

Обработка результатов наблюдений выявила наличие сильного градиента концентрации MS в свободной тропосфере южного полушария весной, тогда как в случае NSS такого рода градиент отсутствовал. Для большей части исследованных компонентов были характерны сильные вертикальные градиенты концентрации при более высоких значениях концентрации вблизи биогенных источников в пограничном слое атмосферы, чем в свободной атмосфере. Данные «лагранжевых» экспериментов и наблюдений на м. Грим обнаружили наличие фотохимически обусловленного образования MS днем при наличии неизменной или убывающей концентрации MS ночью. Днем имел место также и рост концентрации NSS. Для отношения концентраций MS/NSS типичен сильный широтный градиент при наличии значений в самой южной точке, близких к измеренным в снежном покрове Антарктического плато.

Хотя образование мельчайших частиц аэрозоля (нуклеация) в незагрязненном морском пограничном слое имеет очень важное значение (особенно с точки зрения воздействия подобных частиц на свойства облаков), данные наблюдений процесса нуклеации остаются крайне фрагментарными. В связи с этим Ч. О'Дауд и др. [59, 60] выполнили наблюдения нескольких событий нуклеации (образования ультрамелких частиц аэрозоля) на прибрежной станции Мэйс Хэд (Ирландия) в 1996 г. при помощи двух счетчиков ядер конденсации (ЯК), регистрирующих счетную концентрацию частиц в диапазоне радиусов  $>1,5$  и  $>5$  нм. Разность показаний счетчиков позволяет определить концентрацию частиц в диапазоне радиусов 1,5–5 нм.

Одновременно велись измерения концентрации сажевого углерода, результаты которых продемонст-

рировали наличие (в двух случаях) чистого воздуха при концентрации сажевого углерода менее  $20 \text{ нг}/\text{м}^3$ , и концентрации радона (для оценки возможного выхода континентального аэрозоля, который оказался незначительным, поскольку концентрация радона была меньше 0,4 или 0,8  $\text{pCi}/\text{м}^3$ , что типично для морской воздушной массы в Северной Атлантике).

События нуклеации возникали часто и характеризовались пространственно-временными масштабами в пределах от десятков до сотен метров и от секунд до минут при двух условиях: 1) низкий прилив; 2) достаточно интенсивная солнечная радиация. Первое из этих условий определяет наличие полосы обнаженного морского дна, являющейся источником газообразных предшественников ЯК. Предполагается, что подобными предшественниками нуклеации служили летучие органические соединения и (или) алкилгаллидные производные. Что касается солнечной радиации, то важную роль играет стимулирование ею фотохимических реакций образования новых частиц (наблюдения не обнаружили процесса нуклеации ночью). Оценки скорости нуклеации дали значения порядка  $10^3\text{--}10^4 \text{ см}^{-3} \cdot \text{с}^{-1}$ , свидетельствуя о том, что прибрежная зона является существенным источником атмосферных ядер конденсации.

Исследования морского пограничного слоя показали, что атмосферный аэрозоль, и особенно те частицы, которые служат облачными ядрами конденсации (ОЯК), не только воздействуют на облака (изменяя их микроструктуру и оптические свойства), но и подвергаются обратному влиянию облачной среды, которое приводит к изменениям концентрации и других характеристик ОЯК. Подобное влияние может осуществляться через посредство различных механизмов [28].

Прежде всего, имеются данные, свидетельствующие о том, что непосредственно под верхней границей облаков протекает процесс нуклеации, обуславливающий высокую концентрацию новых сульфатных частиц, возникающих, по-видимому, как продукт процесса однородной гетеромолекулярной нуклеации в регионах высокой относительной влажности. Этот процесс обеспечивает рост счетной концентрации частиц аэрозоля, которые в конечном счете могут играть главную роль как ОЯК, достигая достаточных для этого размеров.

Вторым вероятным механизмом является увеличение массы капель за счет различных химических реакций в водной фазе. В случае полного испарения такого рода капель возникают частицы аэрозоля, которые могут служить ОЯК. Важное обстоятельство состоит в том, что в рассматриваемом случае происходит увеличение массовой концентрации частиц без изменения их счетной концентрации и, таким образом, ОЯК становятся крупнее и легче активируются (как ОЯК) при наличии пересыщения в окружающем воздухе.

Еще один возможный механизм влияния облаков («обработки» облаками аэрозоля) связан с процессами столкновений/слияния частиц. Все три упомянутых механизма могут проявляться в различной

степени во всех облаках. До сих пор не предпринималось, однако, попыток анализа их сравнительной значимости.

В этой связи, на примерах ряда конкретных ситуаций, Г. Фейнгольд и др. [28] проанализировали значение механизмов столкновений/слияния и химических процессов в водной фазе, причем главной целью было изучение процессов в морском пограничном слое атмосферы (МПСА) с расположенным в его верхней части слоем слоисто-кучевых облаков толщиной около 300 м. Подобный выбор объекта исследования определялся несколькими обстоятельствами: важным вкладом МПСА в формировании глобального радиационного баланса; предполагаемой чувствительностью свойств облачности МПСА к концентрации ОЯК; как правило, низкой концентрацией ОЯК в рассматриваемой ситуации, что благоприятствует усилению влияния процессов в облаках на ОЯК.

Полученные в работе [28] результаты основаны на использовании двухмерной версии региональной вихреразрешающей модели атмосферных процессов, разработанной в Колорадском университете (США) и уже применявшейся ранее для исследований динамики слоисто-кучевых облаков. Численное моделирование влияния процессов столкновений/слияния, порождающих уменьшение счетной концентрации капель и, таким образом, – ОЯК, осуществлено без учета влажного осаждения, а полученные результаты сопоставлены с данными, характеризующими роль химических процессов в водной фазе. Детально рассмотрены такие микрофизические процессы, как активация капель, конденсация (испарение, столкновения), слияние, седиментация и регенерация частиц, возникающих при полном испарении капель.

Расчеты показали, что процессы столкновений/слияния могут вызвать значительное уменьшение счетной концентрации капель (до 22% в час) и это приводит к заметному росту радиуса частиц (около 7% в час). Для более детального анализа процессов столкновений/слияния (в особенности времени оседания капель в облаках) и оценки интенсивности трансформации сернистого газа в сульфаты, происходящей в облаках, сделаны вычисления траекторий частиц, которые привели к выводу, что воздействие обоих исследуемых механизмов на ОЯК, проявляющееся в росте средних размеров частиц (при определенных условиях), сравнимо.

Оценки, относящиеся к слоисто-кучевым облакам вдали от источников загрязнений, указывают на то, что химические реакции в водной фазе могут в таких случаях оказывать более существенное влияние при более низкой водности облаков нижнего яруса, тогда как механизм столкновений/слияния может доминировать в случае высокой водности или при более широком спектре размеров капель.

В ходе исследований радиационных эффектов аэрозоля в МПСА возникла острая дискуссия относительно вкладов морского солевого и несолевого компонентов сульфатного аэрозоля (СА) в формирование такого рода эффектов. В условиях МПСА преоблада-

ет аэрозоль, который представляет собой имеющие наибольшую счетную концентрацию летучие частицы сульфатов размером меньше 0,08 мкм, хотя большая часть массы аэрозоля сконцентрирована в гораздо меньшем числе частиц морских солей крупнее 1 мкм. Обусловленное аэрозодем радиационное возмущающее воздействие на климат формируется, однако, за счет субмикронных частиц промежуточных размеров (0,08–1 мкм), поскольку они наиболее интенсивно рассеивают солнечную радиацию, а также служат облачными ядрами конденсации. Именно поэтому ранее было высказано предположение о том, что сульфатный аэрозоль, образующийся в результате выбросов океаном диметилсульфида и последующих газофазных реакций, может через обусловленное им RF существенно влиять на климат.

Обычно предполагается, что частицы морского аэрозоля размером меньше 1 мкм состоят из сульфатов неморского происхождения, но недавние исследования привели (по косвенным данным) к выводу, что по крайней мере отчасти подобные частицы субмикронного диапазона размеров содержат морские сульфаты. В связи с этим Д. Мэрфи и др. [57] обсудили результаты прямых измерений химического состава частиц аэрозоля в рамках полевого эксперимента ACE-1, из которых следует, что почти все частицы размером больше 0,13 мкм в МПСА содержали морские соли. Подобный морской аэрозоль был главным образом ответствен за рассеяние солнечной радиации и содержал значительное количество облачных ядер конденсации. Частицы аэрозоля представляли собой, как правило, внутреннюю смесь морских солей и сульфатов, в которой трудно отделить один компонент от другого. Субмикронные частицы содержали также небольшое количество органических компонентов.

Многие предложенные ранее численные модели формирования аэрозоля предназначались для воспроизведения результатов лабораторных экспериментов и на более поздней стадии их развития предусматривали рассмотрение многокомпонентного аэрозоля с учетом процессов газофазной трансформации. Подобные результаты создали основу для «боксовых» моделей процессов образования аэрозоля в пограничном слое атмосферы. Именно такой подход был использован Д. Фитцджералдом и др. [30,31] для численного моделирования однородной нуклеации новых частиц и их последующего роста до размеров облачных ядер конденсации в морском пограничном слое атмосферы.

В связи с тем что такого рода модели не способны воспроизводить изменения процессов образования аэрозоля с высотой, в работе [30] предложена одномерная секционная модель, которая обеспечивает воспроизведение изменений свойств аэрозоля со временем и по вертикали – в пределах МПСА. Важная особенность новой модели состоит в ее способности адекватно описать перенос аэрозоля в атмосфере при наличии градиентов влажности. Ограничительным обстоятельством является, однако, предположение о мгновенном выравнивании содержания водяного пара

в частицах по отношению к окружающей атмосфере, что искусственно ограничивает максимальный размер частиц радиусом меньше 30 мкм.

В обсуждаемой модели учтены все известные существенные процессы, определяющие формирование микроструктуры четырехкомпонентного аэрозоля (сульфаты, морские соли, нерастворимый континентальный компонент, вода) в пределах МПСА: образование морского солевого аэрозоля на поверхности океана; нуклеация новых частиц; коагуляция; конденсационный рост частиц газофазного происхождения; рост сульфатных частиц в процессе их «переработки» облаками; вымывание аэрозоля осадками; осаждение на подстилающую поверхность; турбулентное перемешивание; гравитационное оседание и обмен со свободной тропосферой. Приняты во внимание процессы газофазной трансформации, описывающие образование сульфатного аэрозоля в результате окисления диметилсульфида (фотоокисление DMS до  $\text{SO}_2$ ) и сернистого газа (окисление  $\text{SO}_2$  до  $\text{H}_2\text{SO}_4$ ) с последующим образованием частиц (при заданном суточном ходе концентрации гидроксила). Предложенная модель может быть реализована как интерактивный компонент метеорологической мезомасштабной трехмерной модели МПСА.

Д. Фитцджералд и др. [31] обсудили результаты численного моделирования процессов образования и трансформации аэрозоля в морском пограничном слое атмосферы в условиях удаленной атмосферы над океаном южного полушария (поблизости от Тасмании) с использованием одномерной модели MARBLES динамики многокомпонентного аэрозоля в МПСА. Главной целью численного моделирования был анализ процессов, ответственных за формирование микроструктуры аэрозоля путем последовательного учета различных факторов, определяющих микроструктуру. Основное внимание было уделено вызывающим особый интерес процессам «переработки» аэрозоля облаками и обмена аэрозолем между МПСА и свободной тропосферой.

Расчеты показали, что влияние трансформации свойств аэрозоля облаками, проявляющееся в появлении характерного двойного максимума микроструктуры в верхней части МПСА, на уровне морской поверхности сказывается в характерных масштабах времени жизни аэрозоля, которые гораздо короче, чем соответствующие взаимодействию с тропосферой (в этом случае типичная скорость обмена составляет около 0,6 см/с). Согласно расчетным данным, свободная тропосфера может быть существенным источником частиц для МПСА в диапазоне размеров, соответствующем минимальным размерам частиц, «переработанных» облаками, рост которых определяется превращением растворенного  $\text{SO}_2$  в сульфаты в облачных каплях. Обмен между МПСА и тропосферой вносит существенный вклад в формирование микроструктуры аэрозоля в МПСА.

Рассматриваемая модель была также применена для прослеживания эволюции аэрозоля в воздушной

массе, претерпевающей адвекцию от восточного побережья США в средней части Атлантического океана в течение промежутков времени до 10 сут. В процессе такого рода адвекции трансформация микроструктуры из континентальной в морскую (характерную для удаленного региона океана) происходит за 6–8 сут. Нуклеация в рассмотренном случае типичных метеорологических условий не происходила, но при менее типичных условиях, включающих значительное вымывание аэрозоля (осадки интенсивностью 5 мм/ч в течение 12 ч), понижение температуры на 10 °С (от 283 К у поверхности до 279 К на высоте 1000 м) и большим потоке DMS (40 мкмоль/( $\text{м}^2 \cdot \text{сут}$ )), может иметь место значительная нуклеация. Оценка чувствительности результатов к начальным условиям показала, что подобная чувствительность практически не проявляется в течение всего срока численного моделирования (8–10 сут).

### 1.3. Углеродный аэрозоль

Особое внимание привлекают исследования углеродного аэрозоля. Оценки образования в глобальной атмосфере антропогенного компонента углеродного аэрозоля (УА) дали значения порядка 12–24 Тг/год, что свидетельствует о существенном воздействии подобного аэрозоля на такие процессы, как рассеяние и поглощение света в атмосфере, химические реакции, а также влияние на здоровье человека. Поскольку степень подобного воздействия зависит от уровня гидратации частиц УА (присоединения аэрозолем воды), это обуславливает актуальность проблемы взаимодействия УА с водой. Известно, например, что регулируемое сажевым углеродом окисление  $\text{SO}_2$  и фотодегградация полиароматических углеводородных соединений, связанных с сажевыми частицами, зависят от наличия воды.

С целью дальнейшего развития исследований гидратации сажевых частиц А. Чугтаи и др. [24а] выполнили лабораторные измерения способности захвата воды различными сажевыми частицами (топливо TP-8 для реактивных самолетов, керосин, дизельное топливо, синтетические вещества, содержащие металлы и серу). Построение изотерм адсорбции и десорбции сажей (модель *n*-гексана) позволило определить такой параметр десорбции воды, как покрытие поверхности при предельном уровне хемосорбции и относительной влажности (ОВ), равной 83%. Полученные значения возрастают при окислении поверхности сажи в интервале ОВ, равном 35–85%, тогда как уровень гидратации при более низкой ОВ (до 92%) зависит от состава топлива и условий его сгорания. Сажа, содержащая металлы и серу, характеризуется более высоким уровнем гидратации. Полученные результаты исследований гидратации использованы для оценки влияния относительной влажности на кинетику реакций окисления сажи с участием  $\text{O}_3$ ,  $\text{NO}_2$  и других газовых компонентов.

М. Посфай и др. [66] выполнили исследования частиц аэрозоля, содержащих агрегаты сажи, в условиях

морской атмосферы обоих полушарий от очень чистой до сильно загрязненной. Анализ данных наблюдений показал, что даже в чистой атмосфере удаленного региона южного полушария от 10 до 45% частиц сульфатного аэрозоля содержат включения сажи (часто подобный компонент называют также «черным углеродом» – BC), источниками которой могли быть продукты, обусловленные самолетными выбросами или сжиганием биомассы.

Можно считать, что внутренне перемешанные сажа и сульфаты составляют значительную часть атмосферного аэрозоля в глобальных масштабах. Подобный аэрозоль следует принимать во внимание в оценках как прямого, так и косвенного (через изменения свойств облаков) воздействия аэрозоля на климат.

Из лабораторных измерений следует, что гигроскопические свойства сажи определяются ее составом. Если находящиеся на поверхности частиц аэрозоля органические вещества могут усиливать адсорбцию воды, то такие металлы, как Fe, стимулируют каталитическую активность сажи. Как показали данные, полученные в ходе полевого эксперимента ASTEX/MAGE в Северной Атлантике, сажа представляет собой, как правило, включения в сульфатных частицах. Аналогичные результаты получены и над океанами южного полушария во время эксперимента ACE-1. Возможно, что наличие сажевых частиц, которые функционируют как гетерогенные ядра, усиливает образование сульфатного аэрозоля. Кроме того, сажевые частицы, покрытые пленкой воды, могут служить эффективными облачными ядрами конденсации (CCN).

Важное обстоятельство состоит в том, что при наличии частиц аэрозоля как внутренне перемешанной смеси сульфатов и сажи происходит существенное уменьшение обусловленного аэрозолем прямого радиационного возмущающего воздействия. Оценки показали, что каждый процент увеличения отношения масс сажа/сульфаты порождает положительное RF на уровне верхней границы атмосферы, равное  $0,034 \text{ Вт/м}^2$ . Подобное RF сильно зависит, однако, от альbedo подстилающей поверхности, возрастая с повышением альbedo.

Весьма сложно влияние сажевых частиц на оптические свойства облаков. С одной стороны, частицы, возникающие за счет сжигания биомассы, способствуют повышению альbedo облаков за счет уменьшения размеров облачных капель. Но, с другой стороны, наличие содержащих сажу сильно поголощающих облачных капель усиливает поглощение солнечной радиации облаками. Для решения этой проблемы необходимы дальнейшие исследования.

Следствием происходящего в возрастающих масштабах сжигания ископаемых топлив и древесины является поступление в атмосферу большого количества разнообразных оптически активных малых газовых компонентов и частиц аэрозоля. Важным компонентом образующегося в ходе процессов сгорания аэрозоля является суммарный углеродный аэрозоль (TC), включающий черный углерод и органический

углерод (OC), или аэрозольное органическое вещество (POM), если учесть также влияние реакций с участием кислорода и водорода (в связи с этим принято соотношение для трансформации массы  $\text{POM} = 1,3 \text{ POM}$ ). Оба компонента TC характеризуются различными оптическими и химическими свойствами. Если доминирующей особенностью BC являются его поглощательные свойства, то в случае POM главной спецификой служат характеристики рассеяния, сходные с типичными для сульфатов.

Важное значение сжигания биомассы и ископаемых топлив как источников парниковых газов определило большой интерес также к оценкам бюджетов таких продуктов сгорания, поступающих в атмосферу, как BC и POC. В глобальных масштабах и в среднем за год выбросы BC и POC и аэрозоля за счет сжигания ископаемых топлив сравнимы по величине, причем главным компонентом выбросов является POC, что требует особого внимания, в частности, к оценкам выбросов в атмосферу за счет лесных пожаров в средних и высоких широтах.

В этой связи Д. Лавуе и др. [50] получили оценки, позволившие построить первые карты распределения месячных выбросов в атмосферу углеродных частиц, обусловленные пожарами в лесах, кустарниках и травяном покрове. Наряду с этим приведены статистические данные о площадях выгоревших территорий, массе сгоревшей органики, характеристиках пожаров и коэффициентах выбросов. Анализ данных за период 1960–1997 гг. выявил наличие значительной межгодовой изменчивости.

В целом доля поступления в глобальную атмосферу продуктов сгорания растительности в средних и высоких широтах составляет около 4%, но в отдельные годы может возрастать до 12% при вкладах BC и POM, составляющих 9 и 20% соответственно. Абсолютные уровни соответствующих выбросов за счет пожаров в бореальных лесах Северной Америки (Канада и Аляска) варьируют в пределах 4–122 ГгC/год (BC) и 0,07–2,4 Тг/год (POM), тогда как в случае евразийского континента (Россия и северная Монголия) возможны интервалы изменчивости, характеризующиеся значительной неопределенностью, равны 16–474 ГгC/год (BC) и 0,3–9,4 Тг/год (POM).

Что касается выбросов за счет лесных пожаров в средних широтах, то суммарно для США (имеется в виду континентальная часть территории США южнее границы с Канадой) и Европы они значительно меньше и составляют в среднем 11 ГгC/год (BC) и 0,2 Тг/год (POM). Значительны масштабы травяных пожаров в Монголии: 62 ГгC/год (BC) и 0,4 Тг/год (POM). Среднегодовые выбросы BC за счет кустарниковых пожаров Монголии и Калифорнии (суммарно) составляют 20 ГгC/год, а выбросы POM – 0,1 Тг/год. Табл. 1 содержит суммарные данные о выбросах, обусловленных сгоранием растительности. В работе [50] построены также карты географического распределения выбросов при разрешении  $1^\circ$  широты  $\times$   $1^\circ$  долготы.



Т а б л и ц а 1

## Выбросы углеродных частиц за счет сгорания растительности

Объект пожаров	Сгоревшая биомасса, Тг	Черный углерод, ТгС	Органический углерод, Тг
Леса в высоких и средних широтах	66–700	0,07–0,54	1,01–10,70
Саванны, тропические леса, сельскохозяйственные и домашние пожары (по данным Lioussse и др., 1966 г.)	5375	5,63	44,50
Глобальное сгорание биомассы	5441–6075	5,70–6,17	45,51–55,20
Вклад лесов в средних и высоких широтах, %	1,2–11,5	1,3–8,8	2,2–19,4

#### 1.4. Круговорот серы и сульфатный аэрозоль

Особо важное значение биогеохимического круговорота серы в контексте природных и антропогенных изменений климата определяет ключевую роль соединений серы как компонента состава атмосферы. Хотя в северном полушарии антропогенные выбросы соединений серы уже давно превосходят природные источники, в южном полушарии вклад природных источников все еще в два раза и более превосходит вклад антропогенных выбросов, причем наиболее существенный природный источник – поступление в атмосферу диметилсульфида из океана. В условиях Антарктики сера является распространенным элементом, который всегда обнаруживается в составе атмосферного аэрозоля, составляя до 80–90% массы аэрозоля, осаждающегося на Антарктическом плато. Даже зимой вклад серы занимает место после Na и Cl, отображая воздействие интенсивных вторжений морского воздуха (солевых штормов) в такие периоды времени, когда другие источники серы незначительны или вообще отсутствуют.

Первоначально предполагалось, что соединения серы попадают в Антарктику в результате переноса из стратосферы или вулканической активности. Дальнейшие исследования привели, однако, к выводу, что местные вулканические источники способны объяснить не более 10% бюджета серы. Второстепенное значение имеет и поступление серы из стратосферы, за исключением случаев мощных вулканических извержений. Оказалось, что главным природным источником серы для антарктической атмосферы являются выбросы DMS океаном. Была обнаружена корреляция между цветением фитопланктона *Phaeocystis* в окружающих Антарктику морях и многими параметрами, связанными с DMS, откуда стало ясным, что годовой ход содержания соединений серы в антарктической тропосфере отображает биодинамику морей.

Упомянутые выводы побудили гляциологов к поискам возможного влияния сульфатного аэрозоля на климат путем анализа кернов морских донных осадочных пород. С целью дальнейших исследований был разработан проект SCATE, направленный на изучение химических процессов, определяющих окис-

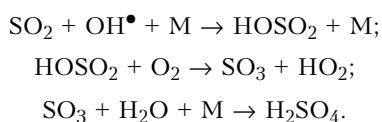
ление DMS. В рамках этого проекта на антарктической станции Палмер в период с 18 января до 25 февраля 1994 г. были впервые выполнены измерения концентрации таких малых газовых компонентов, как метаносульфоновая кислота в газовой фазе MSA(g), диметилсульфид, DMSO(g), SMSO<sub>2</sub>(g) и H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>(g) при разрешении по времени менее 15 мин [26].

Анализ полученных результатов привел к выводу, что главным источником DMSO является реакция между DMS и OH, которая ответственна также и за образование MSA(g) при последовательном окислении продуктов DMSO и MSA. Возможно, что реакция OH/DMS, а также последующая реакция с учетом OH/DMSO являются главными источниками SO<sub>2</sub>. Не было обнаружено данных, которые свидетельствовали бы о том, что существенным источником H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> (помимо SO<sub>2</sub>) оказываются какие-либо другие промежуточные соединения (например, SO<sub>3</sub>). Несомненно, что в условиях станции Палмер значительная часть цикла окисления DMS осуществляется выше пограничного слоя атмосферы (ПСА) в слое, который был назван буферным (БС).

Главный результат, полученный при выполнении наблюдений и численного моделирования по проекту SCATE, состоит в установлении тесной взаимосвязанности химических процессов и динамики атмосферы. Данные наблюдений выявили частые эпизоды быстрого вертикального переноса из очень мелкого морского ПСА в расположенный над ним БС. Благодаря сочетанию большого фотохимического времени жизни DMS и частого явления интенсивной конвекции в ПСА, значительная доля выброшенного океаном DMS поступает в БС, оставаясь в неокисленном состоянии. В условиях БС, где имеет место повышенная концентрация OH и слабо проявляется вымывание аэрозоля, происходит накопление окисленной серы, достигающей высокой концентрации. Отдельные порции воздуха из БС могут время от времени попадать обратно в ПСА, оказывая воздействие на содержание в нем SO<sub>2</sub>, DMSO и DMSO<sub>2</sub>. Кроме того, поскольку SO<sub>2</sub> и DMSO являются главными предшественниками H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> и MSA, химические процессы в буферном слое, в сочетании с вертикальным переносом, контролируют содержание H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> и MSA в ПСА.

В работе [26] подчеркнуто, что неполнота информации о химических процессах в антарктической тропосфере определяет предварительность сделанных выводов. Это обусловлено прежде всего отсутствием данных о содержании  $\text{SO}_2$  в ПСА, а также полным отсутствием результатов прямых измерений концентрации в БС как DMS, так и всех окисленных соединений серы. Недостаточно ясны детали вертикального переноса между ПСА и БС, эпизодических вторжений воздуха из БС в ПСА. Неясно также, является ли станция Палмер достаточно репрезентативной.

Аэрозольный сульфат является главной конечной формой соединений серы в атмосфере, возникающей в процессе окисления серы. Как правило, восстановленные соединения серы проходят в процессе их химических превращений стадию окисления (до трансформации в сульфат) как  $\text{SO}_2$ . Окисление сернистого газа является наиболее важным антропогенным источником сульфата в свободной тропосфере, причем процесс окисления осуществляется как в водной фазе (гетерогенный процесс), так и в газообразной фазе (гомогенные реакции). Гомогенное окисление определяется, в основном, реакциями с участием гидроксила:



Что касается процесса гетерогенного окисления, то возможны различные варианты трансформации  $\text{S(IV)} (\equiv \text{SO}_2, \text{HSO}_3^- \text{ и } \text{SO}_3^{2-})$  в  $\text{S(VI)}$ , причем наиболее эффективными оксидантами служат  $\text{H}_2\text{O}_2$ ,  $\text{O}_3$  и  $\text{O}_2$ . Д. Саварино и др. [74,75] получили оценки относительной значимости различных гетерогенных реакций окисления на основе анализа изотопного состава ( $^{16}\text{O}$ ,  $^{17}\text{O}$  и  $^{18}\text{O}$ ) образующихся в ходе этих реакций сульфатов. С этой целью были выполнены лабораторные исследования обусловленного  $\text{H}_2\text{O}_2$ ,  $\text{O}_3$  и  $\text{O}_2$  окисления серы, катализируемого  $\text{Fe(III)}$  и  $\text{Mn(II)}$ . В случае процесса окисления в газовой фазе рассмотрены лишь упомянутые выше реакция  $\text{SO}_2 + \text{OH}$  и ее заключительная фаза  $\text{SO}_3 + \text{H}_2\text{O}$ .

Согласно полученным результатам ни одна из гетерогенных или гомогенных реакций окисления не способна объяснить наблюдаемый не зависящий от массы кислородный изотопный состав сульфата. Поскольку  $\text{H}_2\text{O}_2$  и  $\text{O}_3$  обладают независимой от массы изотопной сигнатурой, проанализированы возможности переноса подобной аномалии на сульфаты. Изотопный анализ показал, что оба атома кислорода из  $\text{H}_2\text{O}_2$  обнаруживаются в  $\text{H}_2\text{SO}_4$  как в конечном продукте окисления, но в случае  $\text{O}_3$  только один атом кислорода переходит в сульфат. На этом основании можно считать, что независимый от массы изотопный состав кислорода в сульфате может быть обусловлен лишь гетерогенным окислением. Этот результат позволяет, в частности, получить количественные оценки вкладов в образование сульфата, обусловленных гомогенными реакциями с участием  $\text{OH}$  и гетероген-

ным процессом, осуществляющимся с участием  $\text{H}_2\text{O}_2$  и  $\text{O}_3$ . Полученные результаты могут оказаться полезными также для проверки адекватности моделей химических процессов в атмосфере с учетом переноса.

Особое внимание привлекает проблема осаждения сульфатного аэрозоля на леса, что можно проиллюстрировать результатами некоторых разработок, выполненных в США [22] (см. также [48]). После принятия в 1970 г. в США Акта о чистом воздухе в большинстве штатов произошло снижение выбросов сернистого газа, за небольшими исключениями, включающими штат Джорджия, где выбросы  $\text{SO}_2$  возросли за период 1975–1985 гг. почти вдвое (на 88%) и сейчас занимают по своему уровню седьмое место в США. В связи с серьезной опасностью этих выбросов для экосистем на суше и в водных бассейнах возникла необходимость исследований процессов сухого и влажного локального осаждения соединений серы (особенно это касается лесов) и последующих оценок воздействий подобных отложений.

Будучи выброшенным в атмосферу, сернистый газ может затем выпадать на леса как в газообразном состоянии, так и форме образовавшихся путем газофазных реакций субмикронных  $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$  и более крупных  $(\text{CaSO}_4)$  частиц аэрозоля. Влажное осаждение серы, которое обуславливает, в основном, кислотность осадков, происходит в форме  $\text{SO}_4^{2-}$  и может быть достаточно надежно оценено количественно, тогда как в случае сухого осаждения это сделать трудно ввиду сложности и изменчивости этого процесса. Существенно, однако, что сухое осаждение соединений серы на лесные экосистемы (особенно в форме газообразного  $\text{SO}_2$ ) составляет значительную часть осадений закисляющих компонентов (очень часто более 50%).

Поскольку осаждение S не является лимитирующим фактором для роста лесов, оно до недавнего времени не привлекало такого большого внимания как в случаях других биогенов. Однако рост выбросов соединений серы в атмосферу требует интенсификации такого рода исследований. В связи с этим Р. Каппеллато и др. [22] предприняли изучение процессов сухого и влажного осаждения S в расположенных по соседству хвойных и лиственных лесах на ключевом участке в бассейне водосбора в горах Панола (штат Джорджия, США).

Согласно полученным результатам суммарное (сухое и влажное) осаждение за период с октября 1987 г. по ноябрь 1989 г. составило 12,9 и 12,7 кг/га год соответственно для лиственных и хвойных лесов. Вклад сухого осаждения (главным образом за счет  $\text{SO}_2$ ) достигал более 40%. Поступление S под пологом леса оказалось (в среднем за год) на 37% больше в лиственных, чем в хвойных лесах, что можно объяснить влиянием значительного сухого осаждения. Хотя поступление S путем процесса осаждения превосходит потребности роста деревьев, более 95% осаждавшегося S удерживалось в пределах водосбора, причем удержание S было обусловлено преимущественно адсорбцией  $\text{SO}_2^{2-}$  окислами железа и гидроксидными,

содержащимися в почвах. Содержание S в белом дубе и в стволах скипидарной сосны за последние 20 лет возросло на 200% (вероятно, за счет роста выбросов).

Сложность количественных оценок влияния аэрозоля на климат диктует необходимость получения более надежной информации по ряду мало изученных аспектов проблемы. Один из таких аспектов – гигроскопический рост частиц аэрозоля. При помощи дифференциального анализатора, зависящего от относительной влажности RH роста частиц (H-TDMA), О. Берг и др. [18a] выполнили судовые измерения гигроскопических свойств субмикронного аэрозоля в морском пограничном слое над Тихим и другими океанами южного полушария в рамках программы ACE-1. Результаты измерений характеризуют изменение диаметра отдельной частицы при постепенной ее эволюции от сухого состояния до значений RH, равных 89–90%.

Исходные значения «сухого» диаметра частиц составляли 35, 50, 75 и 150 (или 165) нм. Природный фоновый аэрозоль в МПСА состоит из частиц двух типов с совершенно различными гигроскопическими свойствами: морского солевого и несолевого (NSS) аэрозоля. Поскольку применение аппаратуры H-TDMA обеспечивает надежное различение этих двух типов аэрозоля, оказалось возможным определение их вкладов в формирование наблюдаемого смешанного аэрозоля.

Во время наблюдений над океаном к югу от Австралии обнаружено возрастание диаметра частиц от «сухих» значений, равных 35, 50 и 150 нм, соответственно в 1,62; 1,66 и 1,78 раза, что значительно превосходит возрастание размеров частиц в условиях загрязнений континентальной воздушной массы. Для «внешне» перемешанных солевых частиц коэффициент роста был еще больше: 2,12 и 2,14 для первоначального диаметра 50 и 150 нм соответственно. Наблюдения над Тихим океаном (при RH = 89%) дали значения коэффициента роста, равные 1,56; 1,59; 1,61 и 1,63% соответственно для первоначальных диаметров 35, 50, 75 и 165 нм. Случаи растворения частиц и RH-гистерезиса наблюдались лишь в интервале RH = 68–90% в воздушных массах севернее южно-тихоокеанского круговорота и только для частиц мод Айткена (диаметр частиц в пределах 20–80 нм). Формирование «внешне» перемешанных солевых частиц могло быть связано с большой скоростью ветра, обусловленной прохождением фронтов или систем низкого давления. Следует, однако, заметить, что счетная концентрация «внешне» перемешанных частиц диаметром 150 нм слабо коррелировала с локальной скоростью ветра (по-видимому, это происходило из-за большого времени жизни подобных субмикронных частиц). Частицы, обладающие значительно меньшим коэффициентом роста, чем для NSS-частиц (они были названы менее гигроскопичными частицами), наблюдались только в периоды проявления антропогенного воздействия.

Поскольку особенно важное значение в контексте проблемы влияния аэрозоля на климат имеет сжигание биомассы [14], это определило возникновение

эксперимента VIBEX, главная цель которого – оценка поступления газов и аэрозоля в атмосферу за счет сжигания биомассы, а также влияния подобных выбросов на химический состав глобальной атмосферы и климат. Соответствующие международные полевые эксперименты для достижения упомянутой цели были выполнены в первую очередь в тропическом поясе Атлантического океана в южном полушарии (бассейн р. Амазонки, тропики Атлантики, Южная Африка), где проявляется влияние пожаров в тропических лесах и саванне. Было предпринято, в частности, осуществление американско-бразильской программы TRACE-A, направленной на изучение биогенных выбросов в Бразилии, их последующего переноса и фотохимической трансформации. На основе кооперации стран Африки, Европы и Америки были начаты исследования выбросов в атмосферу за счет лесных пожаров и процессов в почве в Южной Африке, которые первоначально назывались программой SAFARI, но после договоренности о координации с разработками в рамках программы TRACE-A получили название STARE (региональный эксперимент в тропической Атлантике южного полушария). Эти многодисциплинарные полевые исследования начались во второй половине 1992 г. и опирались на использование самых разнообразных средств наблюдений (наземных, судовых, самолетных, спутниковых).

### **1.5. Высокоширотный атмосферный аэрозоль**

А. Полиссар и др. [64,65] выполнили анализ результатов измерений химического состава аэрозоля по данным расположенных на Аляске (в пределах Национального парка) семи пунктов за период 1986–1995 гг. Результаты элементного анализа по концентрации сажевого («черного») углерода и общей массы аэрозоля получены с использованием проб, содержащих частицы диаметром меньше 2,5 мкм. В предположении, что источником всей элементной серы являются сульфаты  $\text{SO}_4^{2-}$ , были сделаны расчеты избыточной (неморской) концентрации сульфатов ( $\text{XSO}_4^{2-}$ ) путем вычитания доли массы морских солевых сульфатов  $\text{SO}_4^{2-}$ .

Массовая концентрация  $\text{XSO}_4^{2-}$  варьировала в пределах 0,01–3,9 мкг/м<sup>3</sup>, а массовая концентрация BC изменялась от 0,01 до 5 мкг/м<sup>3</sup>. Почти во всех пунктах наблюдался годовой ход концентрации  $\text{XSO}_4^{2-}$  с максимумом зимой–весной и минимумом летом. Подобный годовой ход отсутствовал, однако в случае BC и мелкодисперсного аэрозоля. Амплитуда годового хода  $\text{XSO}_4^{2-}$  возрастала в северо-восточном регионе Аляски. Максимум концентрации сажевого углерода в центральной части Аляски имел место летом, что обусловлено выбросами BC в атмосферу за счет лесных пожаров.

В пределах изученного интервала времени наблюдался тренд спада концентрации Pb в центральной Аляске. Анализ полученных результатов свидетельствует о наличии в указанных случаях аэрозольных

загрязнений за счет дальнего переноса, а также региональных и местных источников. Годовой ход концентрации  $XSO_4^{2-}$  связан с годовым ходом дальнего переноса соединений серы за счет выбросов в средних широтах, а также с изменением скоростей фотохимического образования  $SO_4^{2-}$  в мелкодисперсном аэрозоле и удалением мелкодисперсного аэрозоля из атмосферы. Анализ пространственного распределения  $XSO_4^{2-}$  выявил наличие сильного отрицательного градиента с северо-запада на юго-восток, который может обусловлен влиянием дальнего переноса антропогенного аэрозоля из источников, расположенных к северу или северо-западу от Аляски.

Природа, происхождение и перенос арктического аэрозоля исследуются давно. Было установлено, в частности, что зимой и весной происходит значительный дальний перенос в Арктику антропогенного аэрозоля из различных источников. В период с 1986 до 1995 г. в семи точках Национального парка на Аляске были выполнены измерения состава мелкодисперсной (размер частиц меньше 2,5 мкм) фракции атмосферного аэрозоля [64]. Полученные результаты обработаны с использованием новой методики факторного анализа – так называемой положительной матричной факторизации (PMF). Эта методика обеспечивает более надежный учет такого рода данных, которые отсутствуют или находятся ниже предела обнаружения.

Анализ данных по методу PMF позволил выявить компоненты, обусловленные шестью источниками. Все данные отображают существование почвенного компонента аэрозоля при наличии максимума счетной концентрации летом и минимума зимой. В пяти точках был обнаружен солевой компонент. Во всех (за исключением одного) пунктах зарегистрировано наличие элементного углерода (BC), H<sup>+</sup> и K, источниками которых являются, по-видимому, лесные пожары. Универсальными компонентами состава аэрозоля служат S, BC–Na–S и Zn–Cu, а в трех пунктах – Pb и Br. Для содержания S, Pb и BC–Na–S характерно наличие годового хода с максимумом зимой–весной и минимумом летом, причем амплитуда годового хода усиливается с широтой. Особенности годового хода и элементный состав упомянутых компонентов свидетельствуют об их антропогенном происхождении из удаленных источников. Четырьмя главными компонентами аэрозоля являются: антропогенный аэрозоль, поступивший посредством дальнего переноса (арктическая дымка); морской солевой аэрозоль; местный аэрозоль почвенного происхождения; аэрозоль с высоким содержанием BC, генерируемый лесными пожарами.

В. Керминен и др. [44] выполнили анализ зависимости физико-химических свойств проб аэрозоля (изменений химического состава аэрозоля в зависимости от размера частиц), полученных в центральной части Гренландского ледника в 1993–1995 гг. Изучались мода Айткена (диаметр частиц меньше 0,1 мкм), одна или две моды аккумуляционного аэрозоля (0,1–1 мкм) и супермикронные частицы. Частицы моды Айткена характеризовались относительно небольшой

суммарной массой (меньше 5%), но наибольшей счетной концентрацией. Для аккумуляционной моды, как правило, типично наличие двух перекрывающихся мод при минимальном диаметре частиц около 0,4 мкм. Возможной причиной этой бимодальности была «переработка» частиц туманом, которая часто происходила над ледником в период летних ночей.

В составе частиц аккумуляционной моды преобладали сульфат, аммоний, метан, сульфоновая кислота и дикарбоксильная кислота, причем эти частицы представляли собой, по-видимому, внутреннюю смесь субмикронных частиц. Отношение концентраций MSA и сульфатов варьировало в зависимости от размера частиц в пределах диапазона аккумуляционной моды. Поэтому различные пути осаждения частиц на поверхность света должны приводить к изменениям соотношения MSA/сульфаты.

Супермикронные частицы обычно содержали менее 20% сульфатов и более 95% нитратов. Вероятно, сульфаты и нитраты являются продуктами реакций  $SO_2$  и  $HNO_3$  с частицами, возникшими из горных пород. Супермикронные сульфатные частицы обладают несколько меньшими размерами (менее 3 мкм), чем нитратные (2–3 мкм). Аэрозоль содержит лишь очень небольшое количество полелетучих кислотных соединений, за исключением тех случаев, когда в регион ледника поступают шлейфы продуктов сжигания биомассы. Подобные шлейфы характеризуются повышенными уровнями содержания низколетучих соединений, и в их состав могут входить субмикронные частицы нитрата и фермата аммония.

В период с июня 1993 по июнь 1994 г. на вершине Саммит Гренландского плато (72°35' с. ш.; 37°38' з. д., 3220 м над уровнем моря) была осуществлена непрерывная регистрация элементного состава атмосферного аэрозоля (фракций мелких и крупных частиц) при помощи рентгеновской аппаратуры PIXE [80]. Во многих образцах аэрозоля зарегистрирована превосходящая порог обнаружения концентрация Al, Si, S, Cl, K, Ca, Ti, Mn, Fe, Zn, Br, Sr и Pb, причем источниками перечисленных элементов были горные породы плато, морские соли и антропогенный компонент (в случае S и Br возможны и некоторые другие источники). Первый из упомянутых источников максимально проявлялся весной, тогда как мощность антропогенного источника была существенной в течение всего года, но особенно зимой и весной. Наличие морских солей в составе аэрозоля было, как правило, различить трудно, но наиболее заметным оно оказалось зимой.

Полученные в работе [80] результаты сопоставлены с данными наблюдений в южной части Гренландского ледяного щита (точка Дай-3) и на станции «Север», расположенной на северо-восточном побережье Гренландии. Во всех этих точках имел место максимум концентрации антропогенного компонента зимой и весной, когда сжигание топлив было наиболее интенсивным, в отличие от Арктики, где сильно выраженный максимум антропогенного компонента связан с образованием арктической дымки ранней весной.

Данные о химическом составе твердых осадков, аккумулярованных в прошлом полярными ледяными щитами, являются источниками информации о химическом составе доиндустриальной атмосферы и его изменениях в различных масштабах времени. Анализ ледяных кернов позволил, например, получить сведения о морском солевом и пылевом атмосферном аэрозоле, а также о сульфатном аэрозоле, являвшемся продуктом природных газофазных реакций в атмосфере. Интересные данные были получены об аммонии и легких карбоксильных кислотах, что позволило восстановить эволюцию биогенных выбросов.

Анализ гренландских ледяных кернов, характеризующих изменение климата за последние 15 тыс. лет, показал, что в период последней ледниковой эпохи значения фоновых концентраций аммония и паров муравьиной кислоты были значительно меньше современных. Это было вызвано, по-видимому, спадом биогенных выбросов в атмосферу почвами и растительностью, поскольку значительная часть суши Северной Америки была покрыта ледниками. С другой стороны, мониторинг содержания аммония и муравьиной кислоты в атмосфере обнаружил существенные спорадические вариации, обусловленные сжиганием биомассы в высоких широтах (лесными пожарами), продукты которого достигали Гренландии.

В связи с этим в работе [74] выполнен анализ растворимых примесей в твердых осадках, аккумулярованных в ледяном керне из Центральной Гренландии за период 1193–1767 гг. (ранее был осуществлен аналогичный анализ данных за период 1767–1980 гг.). Обнаружены 73 слоя льда с повышенной концентрацией аммония и муравьиной кислоты, обусловленные поступлением в регион Гренландии продуктов сжигания биомассы в высоких широтах. Химический состав слоев характеризуется наличием смеси аммония, муравьиной кислоты и нитрата с полярным отношением  $\text{NH}_4^+ / (\text{HCOO}^- + \text{NO}_3^-)$ , близким к единице. Различия химического состава можно объяснить неодинаковостью условий лесных пожаров (соотношения между горением и тлением) или метеорологических условий на пути переноса шлейфов пожаров к Гренландии.

Зарегистрированы три периода усиленного поступления продуктов сгорания биомассы: 1200–1350 гг., 1830–1930 гг. и, в меньшей степени, – 1500–1600 гг. Период 1200–1350 гг. совпадает с фазой теплого и сухого климата, характерного для средневекового потепления. После спада интенсивности поступления продуктов сгорания в течение Малого ледникового периода (1600–1850 гг.) она возросла на рубеже двух последних столетий, но уменьшилась в XX в. Замечен постепенный спад концентрации муравьиной кислоты, который можно, вероятно, объяснить деградацией бореальной растительности в Северной Америке.

Существуют три источника углеродного аэрозоля в атмосфере: природные первичные и вторичные выбросы органических газов растительностью; сжигание ископаемых топлив и сжигание биомассы. Имеющиеся данные позволяют считать, что два последних (преимущественно антропогенных) источника явля-

ются доминирующими в глобальном бюджете углеродного аэрозоля, причем основными регионами образования УА являются тропики (сжигание биомассы) и средние широты северного полушария (сжигание ископаемого топлива). Особый интерес представляет проблема формирования УА в регионах городов, тогда как наблюдения в удаленных регионах позволяют охарактеризовать фоновые условия.

Хотя для УА типично наличие нескольких форм, отличающихся по химическому составу, их общим свойством является очень высокая концентрация углерода. Обычно различают две группы углеродного аэрозоля: органический и сажевый («черный») углерод. Хотя последний составляет, как правило, лишь малую часть УА, его измерения наиболее многочисленны ввиду их простоты.

В работе [8] обсуждены результаты измерений концентрации ВС при помощи эталометра на антарктической станции Халли в 1992–1995 гг. Анализ полученных результатов выявил ряд эпизодов повышенной концентрации ВС, обусловленной локальными источниками. Подобные данные были, однако, достаточно надежно исключены из рассмотрения. Обработка отфильтрованных данных обнаружила отчетливый годовой ход концентрации ВС при диапазоне средних месячных значений в пределах 0,3–2 нг/м<sup>3</sup> (эти значения несколько превышают наблюдавшиеся на Южном полюсе). Максимум в годовом ходе имеет место летом при наличии вторичного (и общего) максимума в октябре (такая же изменчивость наблюдалась и на Южном полюсе, а также аналогична годовому ходу пылевого аэрозоля по данным для береговой станции Ноймайер). По-видимому, подобный годовой ход определяется процессом сжигания биомассы в тропиках, подвергающимся сильной модуляции за счет процессов переноса ВС в регионе Антарктики (соответствующие механизмы пока еще не были достоверно воспроизведены численным моделированием).

Концентрация ВС оказалась слишком низкой, чтобы повлиять на альbedo снежного покрова в Антарктике. Сходство данных наблюдений на станциях в Халли и на Южном полюсе свидетельствует о том, что анализ данных о ВС в ледяных кернах должен достоверно отображать палеоэволюцию ВС в Антарктике и, в частности, – служить индикатором сжигания биомассы в южном полушарии.

### **1.6. Пылевой аэрозоль пустынь**

Эта проблематика широко освещалась ранее в научной литературе [2]. Одним из мощных глобальных источников поступления пылевого аэрозоля в атмосферу является Сахара. В продолжение выполненных ранее исследований последствий переноса сахарского пылевого аэрозоля через Атлантический океан К. Ли-Джонс и Д. Просперо [51] обсудили результаты ежедневных фильтровых и импакторных измерений изменчивости концентрации и микроструктуры аэрозоля на о. Барбадос (13°15' с. ш., 59°30' з. д.)

в период с 5 апреля по 3 мая 1994 г., в течение которого наблюдались четыре эпизода переноса сахарской пыли, достигшей о. Барбадос.

Обработка результатов наблюдений обнаружила наличие высокой корреляции между концентрациями несолевого сульфатного аэрозоля ( $\text{NSS SO}_4^{2-}$ ) и пыли ( $r^2 = 0,93$ ). Значения массовой концентрации аэрозоля варьировали, соответственно, в пределах 0,5–4,2 и 0,9–257  $\text{мкг}/\text{м}^3$ . Межсуточные вариации микроструктуры аэрозоля обоих типов оказались незначительными. Однако доля концентрации больших частиц – CPF (с аэродинамическим диаметром больше 1  $\text{мкм}$ ) несолевого сульфатного аэрозоля варьировала существенно (от 21 до 73%).

Максимальные значения CPF  $\text{SO}_4^{2-}$  были связаны с поступлением сахарской пыли (об этом свидетельствуют данные спутниковых наблюдений), а минимальные – с приходом воздушных масс из центрального региона Северной Атлантики, где концентрация пыли была меньше 0,9  $\text{мкг}/\text{м}^3$ . Авторы [51] высказали предположение, что высокие значения CPF  $\text{SO}_4^{2-}$  являются следствием гетерогенных реакций между  $\text{SO}_2$ , содержащимся в загрязненном воздухе из Западной Европы, и сахарской пылью, которые происходят в атмосфере над Северной Африкой.

Взаимодействие между загрязнениями и пылью не всегда проявляется, однако, в возникновении высокой концентрации CPF. Их наблюдаемая низкая концентрация указывает на функционирование процесса окисления  $\text{SO}_2$  до  $\text{SO}_4^{2-}$ , происходящего до поступления запыленного воздуха. В такие дни доминирующим источником  $\text{NSS SO}_4^{2-}$  служит, по-видимому, океанский диметилсульфид и, в этих условиях, доля CPF остается близкой к 20%. Поскольку эпизоды выбросов сахарской пыли порождают сильные изменения микроструктуры  $\text{NSS SO}_4^{2-}$ , необходимо учитывать влияние минеральной пыли на микроструктуру  $\text{NSS SO}_4^{2-}$  при оценках воздействия несолевого аэрозоля на пернос излучения в атмосфере.

Обусловленное пылью удаление из атмосферы наиболее радиационно эффективной субмикронной фракции сульфатного аэрозоля должно приводить к значительному уменьшению радиационного возмущающего воздействия за счет сульфатного аэрозоля. Естественно, что подобная ситуация особенно существенна в тех регионах, где наиболее часты эпизоды пылевых выбросов (это значительная часть Азии и индийского субконтинента). Важное значение имеет также обусловленное пылью удаление  $\text{SO}_2$  из атмосферы, которое может проявляться далеко от источников пылевых выбросов, как это происходит, например, при переносе сахарской пыли через Атлантический океан или через Средиземное море (в направлении Западной Европы).

### 1.7. Модели аэрозоля

Адекватный учет воздействия атмосферного аэрозоля на климат требует рассмотрения всего разнообразия его типов и сильной пространственно-времен-

ной изменчивости свойств аэрозоля, обусловленной многочисленностью источников и коротким временем жизни аэрозоля [39, 47, 48]. Именно поэтому результаты локальных измерений свойств аэрозоля нельзя рассматривать как репрезентативные для больших пространственно-временных масштабов. Единственным надежным путем решения задачи является, с одной стороны, использование данных прямых (наземных, самолетных, аэростатных) измерений свойств аэрозоля и спутникового дистанционного зондирования, а с другой стороны, – результатов численного моделирования (верифицируемого данными наблюдений) переноса аэрозоля в атмосфере (с учетом его трансформации и образования из газовой фазы посредством газофазных реакций), обеспечивающего воспроизведение реалистичной пространственно-временной изменчивости свойств аэрозоля в глобальных масштабах. Только таким путем можно обеспечить адекватную информацию о глобальных полях свойств аэрозоля, необходимую для расчета обусловленного аэрозолем радиационного возмущающего воздействия и последующих оценок влияния аэрозоля на климат.

В этой связи И. Теген и др. [77, 78] предприняли численное моделирование глобального распределения содержания аэрозоля четырех типов (почвенного пылевого, сульфатного, морского солевого и углеродного) с использованием глобальной модели его переноса в атмосфере. При описании переноса пылевого аэрозоля (ПА) учтены зависимости поступления пыли в атмосферу от влажности и текстуры почвы, скорости ветра у поверхности и состояния поверхности почвы. Расчеты мощности источников и переноса ПА сделаны для восьми классов размеров частиц в диапазоне размеров от 0,01 до 10  $\text{мкм}$ . Информация о скорости ветра получена по данным Европейского центра среднесрочных прогнозов погоды на сетке 1,125° широты  $\times$  1,135° долготы при разрешении по времени, равном 6 ч (последнее позволяет обновлять данные о выбросах ПА через каждые 6 ч). Разработанная в Годдардовском институте космических исследований (GISS) трехмерная глобальная модель переноса пассивных примесей является 9-уровневой на сетке 4° широты  $\times$  5° долготы. ПА удаляется из атмосферы посредством процессов сухого и влажного осаждения. Время жизни частиц ПА в атмосфере варьирует в пределах от 230 ч для 0,15- $\text{мкм}$  частиц (они главным образом вымываются осадками) до 30 ч в случае 8- $\text{мкм}$  частиц (гравитационное оседание).

Модель обеспечивает вычисление глобальных полей не только счетной концентрации, но и микроструктуры аэрозоля. Подобным же образом выполнены и расчеты переноса морского солевого аэрозоля (MSA), но в этом случае вычислялись не выбросы аэрозоля (как в случае ПА), а его концентрация в атмосфере. Микроструктура характеризуется шестью интервалами размеров в пределах 2–16  $\text{мкм}$ . Основным процессом удаления MSA из атмосферы является его сухое и влажное осаждение. Около 70% массы MSA сконцентрировано в нижнем 5-км слое тропосферы.

Сравнение результатов численного моделирования годового хода концентрации MSA с данными наблюдений выявило вполне удовлетворительное согласие. Поскольку морская поверхность непрерывно функционирует как источник MSA (исключая полярные регионы), естественно, что для MSA характерна значительно более слабая пространственно-временная изменчивость, чем, например, для ПА. В случае сульфатного аэрозоля глобальная модель, разработанная в GISS, позволяет воспроизвести поле СА с учетом источников, стоков, а также газофазной трансформации сернистого газа SO<sub>2</sub>, диметилсульфида, метаносульфоната и SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>.

Имеющиеся оценки свидетельствуют о том, что сжигание ископаемых топлив ответственно (в глобальных масштабах) за 68% выбросов соединений серы, а вклад SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> составляет 49 МтS. Расчеты показали, что время жизни СА в атмосфере составляет 3,9 сут. Сравнение оценок выбросов и концентрации сульфатов выявило как определенные черты сходства, так и существенные расхождения. Численное моделирование глобального поля углеродного аэрозоля, включающего органический и сажевый аэрозоль, выполнено с использованием 12-уровневой модели GRANTOUR на сетке 4,5° широты × 7,5° долготы, в которой поля ветра и осадков заданы по данным для модели климата CCM-1, разработанной в Национальном центре исследований атмосферы (США). Были учтены выбросы за счет сжигания биомассы (сжигание древесного топлива, сжигание и производство древесного угля, лесные пожары, пожары в саванне и др.) и ископаемого топлива, а также получены оценки природных источников выбросов органического углерода.

Расчеты мощности глобальных источников УА привели к следующим значениям: сжигание биомассы – 45 Мт/год (в том числе 6 Мт/год сажевого углерода) и сжигание ископаемых топлив – 29 Мт/год (включая 7 Мт/год сажевого углерода). Вклад при-

родных источников составляет около 8 Мт/год органического вещества. Модельные выбросы аэрозоля за счет сжигания биомассы (ископаемого топлива) производились в нижний 2-км (1 км) слой атмосферы. Результаты расчетов находятся, в целом, в согласии с данными наблюдений, но очень сильно зависят от значений коэффициента вымывания и высоты уровня выбросов. Расчеты аэрозольной оптической толщины (АОТ)  $\tau$  требуют задания содержания (массы) аэрозоля в толще атмосферы  $m$ , эффективного радиуса частиц  $r_{\text{eff}}$  (или микроструктуры аэрозоля), показателя преломления частиц. Если  $Q_{\text{ext}}$  – зависящий от длины волны безразмерный коэффициент экстинкции, то приближенно  $\tau = 3Q_{\text{ext}} m / 4\rho r_{\text{eff}}$ , где  $\rho$  – плотность частиц, или  $\tau = Bm$ , где  $B = 3Q_{\text{ext}} / 4\rho r_{\text{eff}}$  – так называемый удельный поперечник экстинкции.

Важное значение (в контексте оценки влияния аэрозоля на климат) имеют сведения о вертикальном распределении аэрозоля (особенно это касается поглощающего аэрозоля). В табл. 2 приведены значения мощности источников аэрозоля и вычисленных оптических характеристик аэрозоля различных типов.

При этом дифференциация аэрозоля на природный и антропогенный не производилась. Как видно из табл. 2, вклад почвенного пылевого аэрозоля в формирование среднеглобального АОТ сравним с вкладом сульфатов и углеродного аэрозоля (около 85% сульфатного аэрозоля образуется за счет происходящего в облаках процесса окисления в тех регионах, где наиболее интенсивны осадки, что определяет доминирующую роль влажного осаждения как механизма стока аэрозоля).

Применение обсужденной методики расчетов позволило построить глобальные карты распределения АОТ в различное время года. Эти карты достоверно воспроизводят такие, например, закономерности, как годовой ход местоположения Сахельского максимума АОТ (которая определяется здесь вкладами ПА и УА);

Таблица 2

Средние глобальные значения мощности выбросов, общего содержания и оптические характеристики аэрозоля различных типов

Тип аэрозоля	Мощность источника, Тг/год	Среднее содержание, мг/м <sup>2</sup>	B, м <sup>2</sup> /г	Оптическая толщина (средняя)	Оптическая толщина (максимальная)
Морской солевой	5900	22,4	0,2–0,4 (0,3) <sup>а)</sup>	0,007	0,02
Почвенный пылевой (1–10 мкм)	1000	21,6	0,2–0,4 (0,3)	0,007	0,59
Почвенный пылевой (< 1 мкм)	250	14,7	1–2 (1,5)	0,022	0,85
Сульфатный (H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> ) <sup>б)</sup>	150	3,0	5–12 (8,0) <sup>в)</sup>	0,025	0,26
Углеродный <sup>г)</sup>	81	2,5	5–12 (8,0)	0,019	0,25
Сажевый	12	0,3	8–12 (9,0)	0,003	0,05

Примечания: <sup>а)</sup> число в скобках указывает значение, принятое для вычислений АОТ (все данные относятся к длине волны 0,55 мкм);

<sup>б)</sup> предполагается, что сульфатный аэрозоль состоит из H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>;

<sup>в)</sup> над сушей и океаном получены значения, соответственно равные 5–8,6 (6,0) и 7–14 (10) м<sup>2</sup>/г;

<sup>г)</sup> углеродный аэрозоль включает и сажевый компонент.

максимумы содержания аэрозоля в регионе Китая (весной) и в Саудовской Аравии (летом), обусловленные пылевым аэрозолем. Заниженным (ввиду систематической заниженности расчетной максимальной скорости ветра) оказался вынос пылевого аэрозоля из Северной Африки на акваторию Северной Атлантики. В южном полушарии повышенные значения АОТ имеют место над Тихим океаном, окружающим Австралию, что по-видимому, связано с выносом пылевого аэрозоля. Шлейф выноса аэрозоля, образовавшегося от сжигания биомассы, отчетливо выявляется над Атлантическим океаном к востоку от Южной Америки.

Сравнение рассчитанных глобальных полей АОТ с данными наблюдений на сети солнечных фотометров (эти данные представляют особый интерес, поскольку восстановление АОТ по спутниковым наблюдениям осуществляется только над океаном) подтвердило, в целом, реалистичность результатов численного моделирования, хотя и выявило многочисленные существенные расхождения (понятно, что различные масштабы пространственно-временного осреднения и другие обстоятельства серьезно осложняют подобное сравнение). Более корректным можно считать сравнения с данными спутниковых наблюдений над океаном при ясном небе, хотя в этом случае определенные ограничения вносит несовершенство алгоритмов восстановления АОТ. С этой целью использованы результаты восстановления АОТ по данным установленного на спутниках NOAA усовершенствованного радиометра очень высокого разрешения (AVHRR). Однако использование этих результатов позволяет получить лишь качественную оценку соответствия расчетных полей АОТ наблюдаемым ввиду несовершенства как данных наблюдений, так и результатов численного моделирования.

Расчетные данные достоверно воспроизводят годовой ход АОТ, но, с другой стороны, обнаруживаются значительные количественные расхождения. Рассмотренные выше результаты свидетельствуют о том, что любая аппроксимация глобального аэрозоля какой-либо единичной моделью или даже совокупностью статистических моделей («городской», «сельский», «фоновый» аэрозоль и т.п.), фиксированных в пространстве и во времени, неприемлема для численного

моделирования влияния аэрозоля на климат. Глобальные поля свойств аэрозоля следует рассматривать по отдельности применительно к основным типам аэрозоля, имея в виду, что последующее комплексирование моделей обеспечит учет вариаций состава аэрозоля. Реалистичная глобальная климатология аэрозоля, необходимая для численного моделирования климата, может быть обоснована лишь путем совместного анализа данных наземных и спутниковых наблюдений, а также результатов численного моделирования.

К сожалению, комплексная система глобальных наблюдений свойств аэрозоля пока что не только не осуществлена (поэтому все имеющиеся данные наблюдений являются фрагментарными), но еще и не обоснована. Особую озабоченность вызывает преувеличенное значение, придававшееся за последнее время чисто рассеивающему аэрозолю, тогда как реальный аэрозоль (с учетом его сложного состава) всегда является поглощающим, что несомненно осложняет его учет в теории климата. Согласно среднеглобальным оценкам вклад поглощающего аэрозоля в формирование АОТ варьирует в пределах 24–53%. Над океаном эти вариации заключены в пределах 9–46%, а в промышленных регионах США и Европы варьируют в интервале 17–34%. В условиях Западной Европы вклад только сажевого аэрозоля может достигать 20%. Из данных наблюдений следует, что органический компонент аэрозоля составляет около половины всей массы аэрозоля вблизи северо-восточного побережья США, тогда как, согласно модельным данным (см. табл. 2), доля этого компонента равна примерно половине от вклада сульфатного аэрозоля. В регионах Китая и Сахели вклад поглощающего аэрозоля достигает 37–71%. Сильная пространственно-временная изменчивость свойств аэрозоля определяет необходимость разработки интерактивного «аэрозольного блока» для моделей климата, обеспечивающего воспроизведение реальной динамики свойств атмосферного аэрозоля.

Уточненные оценки мощности глобальных источников (газов-предшественников) аэрозоля и выбросов аэрозоля в атмосферу содержатся в главе 5 Отчета МГЭИК-2001 [39] и частично воспроизведены в табл. 3, 4.

Таблица 3

**Мощность современных источников выбросов малых газовых компонентов (МГК) – предшественников аэрозоля в атмосферу (Tg N, S или C в год). СП – северное полушарие, ЮП – южное полушарие**

МГК	СП	ЮП	Земной шар	Возможный диапазон
1	2	3	4	5
<b>NO<sub>x</sub>, TgN/год:</b>				
Сжигаемые топлива	19,9	1,1	21,0	–
Авиация	0,43	0,03	0,46	–
Сжигание биомассы	3,3	3,1	6,4	–
Почвы	3,5	2,0	5,5	–
Сельскохозяйственные почвы	–	–	2,2	0–4
Природные почвы	–	–	3,2	3–8
Молниевые разряды	3,7	2,4	7,0	2–12



1	2	3	4	5
<b>NH<sub>3</sub>, TgN/год:</b>				
Домашние животные	17,5	4,1	21,6	–
Сельское хозяйство	11,5	1,1	12,6	–
Люди	2,34	0,31	2,6	–
Сжигание биомассы	2,5	2,2	5,7	–
Сжигание ископаемых топлив и промышленность	0,29	0,01	0,3	–
Природные почвы	1,36	1,07	2,4	–
Дикие животные	0,10	0,02	0,1	–
Мировой океан	3,65	4,50	8,2	–
<b>SO<sub>2</sub>, TgS/год:</b>				
Сжигание ископаемых топлив и промышленность	68	8	76	–
Авиация (1992 г.)	0,04	0,003	0,04	–
Сжигание биомассы	1,2	1,0	2,2	–
Вулканы	6,3	3,0	9,3	–
<b>DMS или H<sub>2</sub>S, TgS/год:</b>				
Мировой океан	11	13	24	–
Биота суши и почвы	0,6	0,4	1,0	0,4–5,6
<b>Летучие и органические соединения, TgC/год:</b>				
Антропогенные	–	–	109	–
Терпены	67	60	127	–

Таблица 4

**Первичные выбросы частиц аэрозоля в атмосферу по данным на 2000 г., Tg/год;**  
**d – диаметр частиц**

Тип аэрозоля	СП	ЮП	Земной шар		
			Среднее	Минимум	Максимум
<i>Органическое вещество (0–2 мкм)</i>					
Сжигание биомассы	28,0	26,0	54,3	45	80
Ископаемое топливо	28,4	0,4	28,8	10	30
<i>Черный углерод (0–2 мкм)</i>					
Сжигание биомассы	2,9	2,7	5,6	5	9
Ископаемое топливо	6,5	0,1	6,6	6	8
Авиация	0,005	0,0004	0,006	–	–
Промышленная пыль и др.	–	–	100	–	–
<i>Биогенный аэрозоль (0–2 мкм)</i>					
–	–	–	50	10	100
<i>Морские соли</i>					
d < 1 мкм	23	31	54	18	100
d = 1–16 мкм	1420	1870	3290	1000	6000
Суммарно	1440	1900	3340	1000	6000
<i>Минеральная (почвенная) пыль</i>					
d < 1 мкм	90	17	110	–	–
d = 1–2 мкм	240	50	290	–	–
d = 2–20 мкм	1470	282	1750	–	–
Суммарно	1800	349	2150	1000	3000

## 2. Дальний перенос и вертикальная диффузия

Атмосфера играет главную роль в переносе различных веществ природного и антропогенного происхождения с суши в регионы Мирового океана. В частности, частицы аэрозоля диаметром от <0,1 до >10 мкм могут переноситься на расстояние до 10 тыс. км. При этом количество переносимого вещества оказыва-

ется весьма значительным. В глобальных масштабах перенос в океан различных трассовых элементов может превосходить поступление за счет речного стока. Поскольку атмосферный аэрозоль, как правило, сохраняет в процессе переноса состав трассерных компонентов, химический состав аэрозоля и его микроструктура содержат важную информацию об источниках и путях дальнего переноса аэрозоля. Можно, в частности, рассчитать соответствующие природный и

антропогенный вклады. Проиллюстрируем некоторые полученные в связи с этим результаты.

С целью распознавания источников и выявления путей переноса аэрозоля в период осуществления полевого эксперимента AEROCE по изучению химических процессов в атмосфере и океане С. Хуанг и др. [37] исследовали временную изменчивость содержания трассовых элементов в пробах аэрозоля, взятых на Бермудских островах в период с 1988 по 1994 г. Для элементов, имеющих своим источником земную кору (например, Al) или морского происхождения (например, Na), типичен годовой ход с максимумами летом и зимой соответственно. В противоположность этому элементы, связанные с антропогенными источниками загрязнений (например, Sb), характеризуются наличием необычного полугодового хода с сильными максимумами весной и более слабыми осенними максимумами, которые ранее не были обнаружены. Годовой ход трассерных элементов определяется главным образом влиянием особенностей их дальнего переноса. Так, например, весенний максимум аэрозольных загрязнений порожден быстрым западно-восточным переносом из региона Северной Америки, а осенний максимум обусловлен медленным переносом северо-американского воздуха в сторону Бермудских о-вов под воздействием квазистационарных антициклонов над Атлантическим океаном.

Низкая концентрация аэрозольных загрязняющих компонентов зимой является следствием распространения на юго-запад систем высокого давления из региона Бермудских–Азорских островов, которые обеспечивают поступление влажного воздуха в район Бермудских о-вов с востока или с северо-востока, препятствуя, с другой стороны, переносу из Северной Америки и Африки. Летний максимум загрязняющих компонентов связан с переносом воздушных масс из восточной Атлантики и Африки. Вариации содержания  $O_3$  и  $CO$ , а также двух радионуклидов природного происхождения ( $^{210}Pb$  и  $^7Be$ ) характеризуются наличием полугодового хода, похожего на цикличность содержания загрязняющих компонентов.

Состав аэрозоля в средиземноморской атмосфере определяется главным образом тремя источниками: 1) антропогенными источниками, расположенными на севере и северо-западе; 2) выносами почвенного аэрозоля из Северной Африки, особенно при возникновении пылевых бурь (ежегодно возникает 15–20 эпизодов подобных выносов); 3) поступлением морского аэрозоля над Средиземным морем. Г. Гюллю и др. [33] обсудили в связи с этим результаты анализа элементного и ионного состава более 600 проб аэрозоля, взятых в период с марта 1992 г. по декабрь 1993 г. на турецком побережье Средиземного моря, в 20 км к западу от г. Анталии ( $36,47^\circ$  с.ш.;  $30,34^\circ$  в.д.).

Концентрация элементов почвенного происхождения оказалась более низкой, чем в западном регионе Средиземного моря, что обусловлено более дальним переносом частиц почвенного аэрозоля из Сахары. Концентрация изменялась со временем в масштабах от дней до сезонов. Кратковременные вариации

концентрации аэрозоля, обусловленного промышленными загрязнениями, были связаны с изменением условий переноса аэрозоля из его источников, а в случае морского солевого и почвенного аэрозоля главную роль играла эпизодическая природа его поступления в атмосферу под воздействием ветра.

Попытки объяснить долговременные изменения состава аэрозоля влиянием динамики дальнего переноса не увенчались успехом ввиду отсутствия учета годового хода дальнего переноса. Годовой ход концентрации элементов антропогенного происхождения определяется прежде всего изменчивостью процесса влажного осаждения. Что же касается долговременных вариаций состава морского и почвенного аэрозоля, то для них основное значение имеет мощность источников.

В течение одного года Л. Пирьола и др. [63] выполнили измерения микроструктуры аэрозоля на станции Варрио ( $67^\circ 46'$  с.ш.;  $29^\circ 35'$  в.д.), расположенной на высоте 400 м над уровнем моря поблизости от границы с Россией. Обычно атмосфера в этом регионе является очень чистой, но иногда возникают эпизоды ее загрязнения за счет расположенных на расстоянии меньше 200 км металлургических заводов в Мончегорске и Никеле. В этой связи обсуждены данные наблюдений для двух случаев поступления загрязненного промышленного воздуха и одного случая переноса воздуха с юга, а также результаты численного моделирования изменений свойств аэрозоля с учетом дальнего переноса и химических процессов.

Одна из целей численного моделирования состояла в анализе обоснованности предположения, согласно которому наблюдаемую концентрацию частиц нуклеационной моды можно объяснить влиянием лишь гомогенной нуклеации паров серной кислоты и водяного пара ( $H_2SO_4/H_2O$ ). В рассматриваемых трех эпизодах поступления загрязненного воздуха рассчитанные значения счетной концентрации частиц оказались превосходящими наблюдаемые примерно на порядок величины. Можно поэтому предположить, что в реальных условиях образование частиц происходило в результате нуклеации  $H_2SO_4/H_2O$ .

Завышенность модельных оценок может быть обусловлена либо преувеличением скорости нуклеации (в рамках классической теории), либо предположением об отсутствии облачности. В случае переноса воздушной массы с юга рассчитанные значения концентрации оказались меньше наблюдаемых, но и в этом случае нельзя исключить возможности нуклеации  $H_2SO_4/H_2O$ . Для двух морских воздушных масс рассчитанная концентрация частиц нуклеационной моды близка к нулю, и поэтому подобные частицы должны были образовываться посредством какого-то другого механизма по сравнению с частицами промышленного происхождения.

Следствием происходившего за последние два десятилетия быстрого экономического развития Южной Кореи и Китая является значительное ухудшение качества воздуха, причем особенно важный вклад внес дальний (трансграничный) перенос таких загрязняющих компонентов, как желтый песок,  $SO_2$  и

сульфаты. В связи с этим Д. Парк и С. Чо [61] приняли расчеты трансграничного переноса, трансформации и осаждения (сухого и влажного) загрязняющих компонентов с использованием модели STEM II (Эйлера модель II переноса серы). Численное моделирование осуществлено на срок 72 ч начиная с 9 ч утра (по местному времени) 25 ноября 1989 г., причем в течение последних 36 ч этого промежутка времени наблюдались легкие осадки.

Анализ результатов численного моделирования показал, что рассчитанные концентрации NO и SO<sub>2</sub> вполне удовлетворительно согласуются с данными наблюдений, но вычисленная концентрация O<sub>3</sub> оказалась заниженной ввиду ненадежности входных данных о летучих органических соединениях (VOC). Важное значение имело быстрое вымывание таких растворимых в воде компонентов, как H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> и HNO<sub>3</sub>. Наиболее сильное влажное осаждение наблюдалось в районах интенсивных осадков.

В случае сульфатов отчетливо распознавалось перемещение очагов их высокой концентрации, но это оказалось невозможным для SO<sub>2</sub>. В работе [61] обоснован индекс переноса загрязнений воздуха, характеризующий влияние дальнего переноса на качество воздуха, и показано, что при некоторых метеорологических условиях дальний перенос SO<sub>2</sub> и сульфатов из Восточного Китая преобладает по сравнению с местными выбросами.

На основе использования одномерной лагранжевой модели, включающей блок, который описывает химические реакции образования соединений серы и гетерогенные эффекты взаимодействия с частицами сульфатного аэрозоля и облачных капель, К. Мари и др. [52] сделали расчеты вертикальных профилей концентрации шести компонентов: 1) выбрасываемого океаном DMS; 2) SO<sub>2</sub>, образующегося в результате окисления DMS; 3) вторичного субмикронного несульфатного (NSS) аэрозоля в сухом воздухе, возникающего при окислении SO<sub>2</sub> с участием OH или путем окисления SO<sub>2</sub> в частицах морского солевого аэрозоля; 4) вторичных NSS-сульфатов в облачной воде (SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> C), образующихся в результате гетерогенного окисления SO<sub>2</sub> в каплях облаков или посредством усвоения NSS-сульфатов сухого воздуха при образовании облаков; 5) субмикронного аэрозоля из сульфоната метана (MS) в сухом воздухе, возникающего при окислении DMS; 6) сульфоната метана в облачной воде (MSS), производимого усвоением MS сухого воздуха во время конденсации облачных капель.

Рассматриваемая модель позволяет предвычислить скорость вовлечения, характерные значения высоты перемешивания и частоту встречаемости облаков при задании поля геострофического ветра и крупномасштабного оседания по данным объективного анализа, выполненного в Европейском центре среднесрочных прогнозов погоды, и поля температуры поверхности океана по данным судовых наблюдений. В модели учтены процессы газофазного и гетерогенного окисления SO<sub>2</sub> до NSS-сульфатов в облаках и наличие морского солевого аэрозоля.

Сравнение результатов численного моделирования с данными наблюдений эволюции динамических переменных модели в толще атмосферы выявило хорошее согласие. Модель адекватно описывает 82% наблюдаемой изменчивости концентрации DMS, если предположить, что единственным окислителем является OH. Однако неопределенности скорости окисления DMS и судовых данных о региональной изменчивости концентрации DMS в морской воде слишком велики для надежного определения скорости переноса DMS из океана в атмосферу. Вычисленные значения отношения смеси SO<sub>2</sub> согласуются с наблюдаемыми при задании эффективности преобразования DMS в SO<sub>2</sub>, составляющей около 70%.

Расчеты выявили доминирующую роль окисления SO<sub>2</sub> в частицах морского солевого аэрозоля как процесса, контролирующего время жизни SO<sub>2</sub>, по крайней мере в пределах хорошо перемешанного нижнего слоя атмосферы. Неучет гетерогенных потерь SO<sub>2</sub> порождает существенное снижение достоверности численного моделирования. При наличии облачности примерно одинаковый вклад в гетерогенные потери вносят облачные капли и морской солевой аэрозоль. Вполне удовлетворительно согласуются с наблюдаемыми рассчитанные значения содержания метаносульфоната в частицах аэрозоля. Некоторые систематические погрешности возникают при вычислениях концентрации NSS-сульфатов, которые выявляют только около одной трети наблюдаемой изменчивости. При отсутствии облаков и слабом ветре NSS-сульфаты образуются за счет фотохимических процессов, но в присутствии облаков главную роль играют процессы окисления в облачных каплях и в частицах морского солевого аэрозоля.

За последние годы достаточно широкое развитие получило численное моделирование глобального поля аэрозоля с учетом дальнего переноса и химических реакций, в особенности применительно к сульфатному аэрозолю. В настоящее время роль сульфатного аэрозоля в формировании облачности, кислотных осадков и климата является общепризнанной. Согласно современным оценкам в атмосферу выбрасывается ежегодно около 67 Тг антропогенной серы (на 98% в виде SO<sub>2</sub>) и 15–23 Тг серы, имеющей биогенное происхождение. Из более ранних оценок следовало, что относительный вклад антропогенных источников в глобальный бюджет серы составляет 35–75%. На основе использования глобальной модели климата ССМ-3, разработанной в Национальном центре исследований атмосферы (США), М. Барт и А. Черч [15] выполнили расчеты пространственно-временной изменчивости полей содержания сульфатов в двух регионах сильно загрязненной атмосферы г. Мехико и юго-восток Китая.

Хотя уровень выбросов сульфатов в г. Мехико (19° с.ш., 99° в.д., 2,2 км над уровнем моря) не является необычно высоким (по сравнению с другими крупными промышленными центрами), важное значение имеют два следующих обстоятельства: 1) специфика метеорологических условий в этом субтропическом

регионе (слабый ветер, характерное сочетание сухого и влажного сезонов); 2) необходимость учета также компонентов, подобных органическому и углеродному («черному») аэрозолю и тропосферному озону. Существенной особенностью юго-восточного Китая является наличие не только антропогенных выбросов сульфатов, но также углеродного аэрозоля и таких малых газовых компонентов, как  $\text{NO}_x$  и тропосферный озон в условиях доминирования зимнего и летнего муссонов, сопровождаемых интенсивными осадками и, следовательно, – вымыванием сульфатного аэрозоля из атмосферы.

Интерактивная спектральная T42 ( $2,8^\circ$  широты  $\times$   $2,8^\circ$  долготы) 18-уровневая химико-климатическая модель ССМ-3 содержит блок, описывающий кинетику реакций, которые определяют поле концентрации сульфатного аэрозоля с учетом как антропогенных, так и биогенных источников. Модель, охватывающая толщу атмосферы до уровня 5 гПа, реализована с шагом по времени, равным 20 мин.

Анализ результатов численного моделирования показал, что сульфаты, выбрасываемые в атмосферу в регионе г. Мехико, претерпевают перенос преимущественно на запад и север, а из юго-восточного Китая – на восток (совершая перемещение вокруг всего земного шара летом и осенью). Вклад Мехико в глобальные антропогенные выбросы сульфатов составляет около 1% при доле в глобальном бюджете сульфатов, также равной примерно 1%. Для юго-восточного Китая соответствующие значения составляют 11,6 и 9% при наличии нелинейного соотношения между выбросами и бюджетом сульфатов. В случае удвоения выбросов сульфатов в Мехико происходит удвоение и их доли в бюджете, тогда как в условиях юго-восточного Китая подобная доля возрастает более чем вдвое. В этих условиях довольно значительную роль играет газофазный механизм образования СА и, таким образом, аэрозоль менее подвержен влажному осаждению.

Качественные оценки привели к выводу, что гидрофильный углеродный аэрозоль имеет примерно такое же время жизни, как и сульфатный аэрозоль в обоих рассматриваемых регионах. Если же происходят выбросы гидрофобного углеродного аэрозоля и время его трансформации в гидрофильную форму равно 1,9 сут (примерно таково же и время жизни СА), то время жизни гидрофильного углеродного аэрозоля оказывается на 3,5 сут дольше, чем СА. В том случае, когда время трансформации достигает 5 сут, гидрофильный углеродный аэрозоль может быть обнаружен в регионах с незначительной облачностью, где его время жизни возрастает до 10 сут и более.

К. Рестади и др. [69] осуществили численное моделирование трехмерного глобального поля концентрации в тропосфере диметилсульфида, сернистого газа и сульфатов с использованием модели OSLO CTM-1, допускающей описание не только переноса, но и химической трансформации рассматриваемых компонентов. Учетная совокупность химических реакций, позволяющих описать пространственно-временную изменчи-

вость этих компонентов, предусматривает приближенную параметризацию гетерогенного окисления и вполне удовлетворительно согласуется с данными наблюдений, особенно в условиях загрязненной атмосферы.

Анализ полученных результатов показал, что значительное количество сульфатов переносится зимой в Арктику (об этом свидетельствуют и наблюдения). Согласно расчетам высокий уровень концентрации сульфатов характерен для верхней тропосферы севернее  $20^\circ$  с.ш. (особенно летом), что обусловлено малой интенсивностью стоков. Имеют место расхождения расчетов с наблюдениями в условиях морской фоновой атмосферы (систематическая завышенность концентрации  $\text{SO}_2$ , но заниженность концентрации  $\text{SO}_4^{2-}$  в тропиках и летом в высоких широтах), которые могут быть связаны с приближенностью учета процессов гетерогенного окисления, хотя не исключено и влияние неадекватности воспроизведения «траектории» окисления  $\text{DMS} \rightarrow \text{SO}_2 \rightarrow \text{SO}_4^{2-}$ . Рассмотренные результаты свидетельствуют о необходимости получения более полных данных наблюдений выбросов, а также дальнейшего изучения процессов химической трансформации природных соединений серы в  $\text{SO}_2$  и сульфаты.

Большое внимание, проявляемое в настоящее время к исследованиям воздействий атмосферного аэрозоля на химические процессы в атмосфере и климат, связано, в частности, с анализом роли гидрофильного аэрозоля как облачных ядер конденсации. Важно при этом, что на континентах в средних широтах около 20–50% мелкодисперсного аэрозоля состоит из органических соединений, а в покрытых лесом тропических регионах эта доля может достигать 90%. Значительная часть органического компонента аэрозоля состоит из растворимых в воде и, вероятно, многофункциональных соединений.

Согласно имеющимся оценкам в результате образования органического аэрозоля (ОА) посредством окисления биогенных соединений в глобальных масштабах может возникать от 30 до 270 Тг/год, что сравнимо по величине с масштабами образования биогенного и антропогенного сульфатного аэрозоля [41]. Однако пока не изучена возможная эволюция источника вторичного ОА, функционирующего после наступления эры промышленной революции. Вопрос об антропогенном воздействии на образование вторичного ОА требует тем не менее серьезного внимания ввиду происходящего повышения уровня концентрации оксидантов (озон, нитрат, радикалы гидроксила). Именно вторичный органический аэрозоль (ВОА) мог быть главным компонентом ЯК и ОЯК над континентами в постиндустриальную эпоху.

В этой связи М. Канакиду и др. [41] получили оценки вклада в формирование глобального поля концентрации ОА вторичного органического аэрозоля, образующегося в результате озонолиза биогенных летучих органических соединений (БЛОС) и эволюции ВОА после наступления индустриальной эпохи с использованием трехмерной глобальной модели тропосферы MOGUNTIA, в которой учтены как процессы

переноса, так и химические реакции. В частности, приняты во внимание реакции окисления окиси углерода, метана и неметановых углеродных соединений  $C_2-C_5$  (NMHC), включая изопрен. Расчеты сделаны на срок, равный 1 году (при «разгоне» модели в течение 1 мес). БЛОС охарактеризованы как смесь  $\alpha$ - и  $\beta$ -пиненов с использованием данных лабораторных измерений скоростей соответствующих реакций (включая газофазное образование аэрозоля). Важным фактором образования ВОА является осаждение сконденсированных продуктов окисления аэрозоля на частицы ОА, существовавшие ранее (влияние этого фактора учтено в модели).

Оценки мощности глобального источника ВОА привели к значениям, возросшим от 17–28 Тг/год в доиндустриальную эпоху до 61–79 Тг/год в настоящее время. Подобное 3–4-кратное усиление образования органического аэрозоля из природных БЛОС можно объяснить антропогенно обусловленным ростом содержания в тропосфере озона и органического аэрозоля. Наиболее важными источниками погрешностей полученных результатов являются недостоверность данных о составе выбросов БЛОС, а также приближенность параметризации газофазных процессов образования аэрозоля. Неизбежное в будущем дальнейшее развитие экономики в странах, расположенных в тропиках и субтропиках, приведет к усилению выбросов в атмосферу окислов азота  $NO_x$ , а также органического вещества, образующегося при сжигании ископаемых топлив и биомассы, что, несомненно, окажет существенное воздействие на концентрацию органического аэрозоля атмосферы, химические процессы и, в конечном счете, – на климат.

### Заключение

Главный итог обзора можно сформулировать предельно кратко: имеющиеся в настоящее время данные наблюдений отображают многообразие свойств и пространственно-временной неоднородности глобального распределения аэрозоля лишь очень схематично, что существенно ограничивает и возможности получения необходимой информации посредством численного моделирования.

1. Аршинов М.Ю., Белан Б.Д. Суточный ход концентрации микродисперсной фракции аэрозоля // Оптика атмосфер. и океана. 2000. Т. 13. № 11. С. 983–990.
2. Григорьев А.А., Кондратьев К.Я. Экологические катастрофы. СПб.: Научный центр РАН, 2001. 350 с.
3. Ильин А.П., Громов А.А., Попенко Е.М. Тиксотропные металлические аэрозоли приземного слоя // Оптика атмосфер. и океана. 2000. Т. 13. № 11. С. 991–995.
4. Козлов А.С., Анкилов А.Н., Бакланов А.М., Власенко А.Л., Еременко С.И., Малышкин С.Б. Исследование механических процессов образования субмикронного аэрозоля // Оптика атмосфер. и океана. 2000. Т. 13. № 6–7. С. 664–666.
5. Кондратьев К.Я., Васильев О.Б., Ивлев О.С., Никольский Г.А., Смоткий О.И. Влияние аэрозоля на перенос излучения: Возможные климатические последствия. Л.: Изд-во ЛГУ, 1973. 266 с.

6. Кондратьев К.Я., Москаленко Н.И., Поздняков Д.В. Атмосферный аэрозоль. Л.: Гидрометеоздат, 1983. 224 с.
7. Кондратьев К.Я. (ред.) Аэрозоль и климат. Л.: Гидрометеоздат, 1991. 542 с.
8. Кондратьев К.Я. Биогенный аэрозоль в атмосфере // Оптика атмосфер. и океана. 2001. Т. 14. № 3. С. 171–179.
9. Кондратьев К.Я., Демирчан К.С. Глобальный климат и Протокол Киото // Вестн. РАН. 2001. Т. 71. № 11.
- 9а. Куценогий К.П., Куценогий П.К. Аэрозоли Сибири. Итоги семилетних исследований // Сиб. экол. ж. 2000. Т. 7. № 1. С. 11–20.
10. Оболкин В.А., Потемкин В.Л., Ходжер Т.В. Сравнительные данные о химическом составе аэрозолей континентальных и арктических районов Восточной Сибири // Оптика атмосфер. и океана. 1998. Т. 11. № 6. С. 632–635.
11. Пененко В.В., Панченко М.В. Междисциплинарные исследования переноса и трансформации примесей в атмосфере: предварительные итоги и перспективы // Оптика атмосфер. и океана. 2000. Т. 13. № 6–7. С. 694–700.
12. Романкевич Е.А., Ветров А.А. Цикл углерода в арктических морях России. М.: Наука, 2001. 303 с.
13. Хуторова О.Г., Тенкин Г.М., Латыпов А.Ф. Эмпирическая модель взаимодействия аэрозоля и химических примесей в урбанизированных условиях // Оптика атмосфер. и океана. 2000. Т. 13. № 6–7. С. 678–680.
14. Andrea M.O., Fishman J., Lindesay J. The Southern Tropical Regional Experiment (STARE): Transport and Atmospheric chemistry near the Equator-Atlantic (TRACE-A) and Southern African Fire-Atmosphere Research Initiative (SAFARI): An introduction // J. Geophys. Res. D. 1996. V. 101. № 19. P. 23519–23520.
15. Barth M.C., Church A.T. Regional and Global distributions and lifetime of sulfate aerosols from Mexico City and southeast China // J. Geophys. Res. D. 1999. V. 104. № 23. P. 30231–30240.
16. Barth M.C., Rasch P.J., Kiehl J.T., Benkovitz C.M., Schwartz S.E. Sulfur chemistry in the National Center for Atmospheric Research Community Climate Model: Description, evaluation, features, and sensitivity to aqueous chemistry // J. Geophys. Res. D. 2000. V. 105. № 1. P. 1387–1416.
17. Bates T.S., Huebert B.J., Gras J.L., Criffiths F.B., Durkee P.A. International Global Atmospheric Chemistry (IGAC) Project's First Aerosol Characterization Experiment (ACE-1): Overview // J. Geophys. Res. D. 1998. V. 103. № 13. P. 16297–16318.
18. Bates T.S. First Aerosol Characterization Experiment (ACE-1). Pt. 2. Preface // J. Geophys. Res. D. 1999. V. 104. № 17. P. 21645–21647.
- 18a. Berg O.H., Swietlicki E., Krejci R. Hygroscopic growth of aerosol particles in the marine boundary layer over the Pacific and Southern Oceans during the First Aerosol Characterization Experiment (ACE-1) // J. Geophys. Res. D. 1988. V. 103. № 13. P. 16535–16545.
19. Berresheim H., Huey J.W., Thorn R.P., Eisele F.L., Tanner D.J., Jefferson A. Measurements of dimethyl sulfide, dimethyl sulfoxide, dimethyl sulfone, and aerosol ions at Palmer Station, Antarctica // J. Geophys. Res. D. 1998. V. 103. № 1. P. 1629–1637.
20. Birmili W., Wiedensohler A. New particle formation in the continental boundary layer: Meteorological and gas phase parameter influence // Geophys. Res. Lett. 2000. V. 27. № 20. P. 3325–3328.
21. Buzoriz G., Rannik U., Makela J.M., Keronen P., Vesala T., Kulmala M. Vertical aerosol fluxes measured by

- the eddy covariance method and deposition of nucleation mode particles above a Scots pine forest in southern Finland // *J. Geophys. Res. D.* 2000. V. 105. № 15. P. 19905–19916.
22. *Cappellato R., Peters N.E., Meyers T.P.* Above-ground sulfur cycling in adjacent coniferous and deciduous forest and watershed sulfur retention in the Georgia Piedmont, USA // *Water, Air, and Soil Pollut.* 1998. V. 103. № 1–4. P. 151–171.
  23. *Chin M., Rood R.B., Lin S.-J., Muller J.-F., Thompson A.M.* Atmospheric sulfur cycle simulated in the global model GOCART: Model description and global properties // *J. Geophys. Res. D.* 2000. V. 105. № 20. P. 24671–24688.
  24. *Chin M., Savoie D.L., Huebert B.J., Bandy A.R., Thornton D.C., Bates T.S., Quinn P.K., Saltzman E.S., De Bruyn W.J.* Atmospheric sulfur cycle simulated in the global model GOCART: Comparison with field observations and regional budgets // *J. Geophys. Res. D.* 2000. V. 105. № 20. P. 24689–24712.
  - 24a. *Chugthai A.R., Miller M.I., Smith D.M., Pitts J.R.* Carbonaceous particle hydration III // *J. Atmos. Chem.* 1999. V. 34. № 2. P. 259–279.
  25. *Collins W.D., Rasch P.J., Eaton B.E., Khattatov B.V., Lamarque J.-F.* Simulating aerosols using a chemical transport model with assimilation of satellite aerosol retrievals: Methodology for INDOEX // *J. Geophys. Res. D.* 2001. V. 106. № 7. P. 7313–7336.
  26. *Davis D., Chen G., Kasibhatla P., Jefferson A., Tanner D., Eisele F., Lenschow D., Neff W., Berrensheim H.* DMS oxidation in the Antarctic marine boundary layer: Comparison of model simulations and field observations of DMS, DMSO, DMSO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>(g), MSA(g) and MSA(p) // *J. Geophys. Res. D.* 1998. V. 103. № 1. P. 1657–1678.
  27. *Dibb J.E., Talbot R.W., Scheuer E.M., Blake D.R., Blake N.S., Gregory G.L., Sachse G.W., Thornton D.C.* Aerosol chemical composition and distribution during the Pacific Exploratory Mission (PEM) Tropics // *J. Geophys. Res. D.* 1999. V. 104. № 5. P. 5785–5800.
  28. *Feingold G., Kreidenweis S.M., Stevens B., Cotton W.R.* Numerical simulations of stratocumulus processing of cloud condensation nuclei through collision-coalescence // *J. Geophys. Res. D.* 1996. V. 101. № 16. P. 21391–21402.
  29. *Feingold G., Kreidenweis S.* Does cloud processing of aerosol enhance droplet concentrations? // *J. Geophys. Res. D.* 2000. V. 105. № 19. P. 24351–24362.
  30. *Fitzgerald J.W., Hoppel W.A., Gelbard F.* A one-dimensional sectional model to simulate multicomponent aerosol dynamics in the marine boundary layer. 1. Model description // *J. Geophys. Res. D.* 1998. V. 103. № 13. P. 16085–16102.
  31. *Fitzgerald J.W., Marti J.S., Hoppel W.A., Frick G.M., Gelbard F.* A one-dimensional sectional model to simulate multicomponent aerosol dynamics in the marine boundary layer. 2. Model application // *J. Geophys. Res. D.* 1998. V. 103. № 13. P. 16103–16117.
  32. *Guelle W., Balkanski Y.J., Schultz M., Martcorena B., Bergametti G., Moulin C., Arimoto R., Perry K.D.* Modeling the atmospheric distribution of mineral aerosol: Comparison with ground measurements and satellite observations for yearly and synoptic timescales over the North Atlantic // *J. Geophys. Res. D.* 2000. V. 105. № 2. P. 1997–2012.
  33. *Güllü G.H., Ölmez I., Aygün S., Tuncel B.* Atmospheric trace element concentrations over the eastern Mediterranean Sea: Factors affecting temporal variability // *J. Geophys. Res. D.* 1998. V. 103. № 17. P. 21943–21954.
  34. *Harrison R.M., Grenfell J.L., Savage N., Allen A., Clemitshaw K.C., Penkett S., Hewitt C.N., Davison B.* Observations of new particle production in the atmosphere of a moderately polluted site in eastern England // *J. Geophys. Res. D.* 2000. V. 105. № 14. P. 17819–17832.
  35. *Hobbs P.V.* Sulfate versus carbonaceous materials on the East Coast of the United States: Results from TARFOX // *IGACTivi. Newslett.* 1998. N 11. P. 3–5.
  36. *Houghton J.T.* The IPCC Report // *Proc. of the SOL-SPA Conf. Tenerife, 25–29 Sept., 2000.* ESA SP ISSN 0379–6566. № 463. Noordwijk. 2000. P. 255–259.
  37. *Huang S., Rahm K.A., Arimoto R., Graurtein W.C., Turekian K.K.* Semiannual cycles of pollution of Bermuda // *J. Geophys. Res. D.* 1999. V. 104. № 23. P. 30309–30317.
  38. *Huebert B.J., Howell S.G., Zhuang L., Heath J.A., Litichy M.R., Wylie D.J., Kreidler-Moss J.L., Cöppicus S., Pfeiffer J.E.* Filter and impactor measurements of anions and cations during the First Aerosol Characterization Experiment (ACE-1) // *J. Geophys. Res. D.* 1998. V. 103. № 13. P. 16493–16509.
  39. *IPCC, Climate Change 2001: The Scientific Basis / J.T. Houghton et al., Eds.* Cambridge University Press, 2001. 881 p.
  40. *Johansen A.M., Siefert R.L., Hoffman M.R.* Chemical composition of aerosols collected over the tropical North Atlantic Ocean // *J. Geophys. Res. D.* 2000. V. 105. № 12. P. 15277–15312.
  41. *Kanakidou M., Tsigaridis K., Dentener F.J., Crutzen P.J.* Human-activity-enhanced formation of organic aerosols by biogenic hydrocarbon oxidation // *J. Geophys. Res. D.* 2000. V. 105. № 7. P. 9243–9254.
  42. *Kaneyasu N., Murayama S.* High concentrations of black carbon over middle latitudes in the North Pacific Ocean // *J. Geophys. Res. D.* 2000. V. 105. № 15. P. 19881–19890.
  43. *Kärcher B., Turco R.P., Yu E., Danilin M.Y., Weisenstein D.K., Miake-Lye R.C., Busen R.* A unified model for ultrafine aircraft particle emissions // *J. Geophys. Res. D.* 2000. V. 105. № 24. P. 29379–29386.
  44. *Kerminen V.-M., Hilliam R.E., Mäkelä T., Saffrezo J.-L., Maenhut W.* The physicochemical structure of the Greenland summer aerosol and its relation to atmospheric processes // *J. Geophys. Res. D.* 1998. V. 103. № 5. P. 5661–5670.
  45. *Kondratyev K.Ya.* *Climate Shocks: Natural and Anthropogenic.* New York: John Wiley & Sons, 1988. 296 p.
  46. *Kondratyev K.Ya., Galindo I.* *Volcanic Activity and Climate* // A. Deepak Publ. Hampton, VA. 1997. 382 p.
  47. *Kondratyev K.Ya.* *Multidimensional Global Change* // Wiley/PRAXIS. Chichester, U.K. 1998. 761 p.
  48. *Kondratyev K.Ya.* *Climate Effects of Aerosols and Clouds* // Springer/PRAXIS. Chichester, U.K. 1999. 264 p.
  49. *Krischke U., Staubes R., Brauers T., Gautrois M., Burkert J., Stobener D., Jaeschke W.* Removal of SO<sub>2</sub> from the marine boundary layer over the Atlantic Ocean: A case study on the kinetics of the heterogeneous S(IV) oxidation on marine aerosols // *J. Geophys. Res. D.* 2000. V. 105. № 11. P. 14413–14422.
  50. *Lavoué D., Lioussé C., Cachier H., Stocks B., Goldammer J.G.* Modeling of carbonaceous particles emitted by boreal and temperate wildfires at northern latitudes // *J. Geophys. Res. D.* 2000. V. 105. № 22. P. 26871–26890.
  51. *Li-Jones K., Prospero J.M.* Variation in the size distribution of non-sea-salt sulfate aerosol in the marine boundary layer at Barbados: Impact of African dust // *J. Geophys. Res. D.* 1998. V. 103. № 13. P. 16073–16084.

52. *Mari C., Suhre K., Rosset R., Bates T.S., Huebert B.J., Bandy A.R., Thornton D.C., Bussinger S.* One-dimensional modeling of sulfur species during the First Aerosol Characterization Experiment (ACE-1), Lagrangian B // *J. Geophys. Res. D.* 1999. V. 104. № 17. P. 21733–21749.
53. *Maring H., Savoie D.L., Izaguirre M.A., McCormick C., Arimoto R., Prospero J.M., Pilnis C.* Aerosol physical and optical properties and their relationship to aerosol composition in the free troposphere at Izaña, Tenerife, Canary Islands, during July 1995 // *J. Geophys. Res. D.* 2000. V. 105. № 11. P. 14677–14700.
54. *Mészáros E.* Fundamentals of Atmospheric Aerosol Chemistry // Akadémiai Kiadó, Budapest. 1999. 308 p.
- 54a. *Mészáros E., Molnár A.* A brief history of aerosol research in Hungary // *Időjaras.* 2001. V. 105. № 2. P. 63–80.
55. *Mishchenko M., Penner J., Anderson D.* Global Aerosol Climatology Project advances // *GEWEX News.* 2000. V. 10. № 4. P. 6.
56. *Moorthy K.K., Satheesh S.K.* Characteristics of aerosols over a remote island, Minicoy in the Arabian Sea: Optical properties and retrieved size characteristics // *Quart. J. Roy. Meteorol. Soc.* 2000. Part A. V. 126. № 562. P. 81–110.
57. *Murphy D.M., Anderson J.R., Quinn P.K., McInnes L.M., Brechtel F.J., Kreidenweis S.M., Middlebrook A.M., Pösfai M., Thomson D.S., Biseck P.R.* Influence of sea-salt on aerosol radiative properties in the Southern Ocean marine boundary layer // *Nature.* 1998. V. 392. № 6671. P. 62–65.
58. *Newell R.E., Evans M.J.* Seasonal changes in pollutant transport to the North Pacific: the relative importance of Asian and European sources // *Geophys. Res. Lett.* 2000. V. 27. № 16. P. 2500–2512.
59. *O'Dowd C.D., Geever M., Hill M.K., Smith M.H., Jennings S.G.* New particle formation: Nucleation rates and spatial scales in the clean marine coastal environment // *Geophys. Res. Lett.* 1998. V. 25. N 10. P. 1661–1664.
60. *O'Dowd C.D., Becker E., Mäkelä J.M., Kulmala M.* Aerosol physico-chemical characteristics over a boreal forest determined by volatility analysis // *Boreal Environ. Res.* 2000. V. 5. № 4. P. 337–348.
61. *Park J., Cho S.Y.* A long range transport of SO<sub>2</sub> and sulfate between Korea and East China // *Atmos. Environ.* 1998. V. 32. № 16. P. 2745–2756.
62. *Piketh S.J., Annegam H.J., Tyson P.D.* Lower tropospheric aerosol loadings over South Africa: The relative contribution of aeolian dust, industrial emissions, and biomass burning // *J. Geophys. Res. D.* 1999. V. 104. № 1. P. 1597–1607.
63. *Pirjola L., Laaksonen A., Kulmala M.* Sulfate aerosol formation in the Arctic Boundary Layer // *J. Geophys. Res. D.* 1998. V. 103. № 7. P. 8309–8321.
64. *Polissar A.V., Hopke P.K., Pantero P., Malm W.C., Sisler J.F.* Atmospheric aerosol over Alaska. 2. Elemental composition and sources // *J. Geophys. Res. D.* 1998. V. 103. № 15. P. 19045–19057.
65. *Polissar A.V., Hopke P.K., Malm W.C., Sisler J.F.* Atmospheric aerosol over Alaska. 1. Spatial and seasonal variability // *J. Geophys. Res. D.* 1998. V. 103. № 15. P. 19035–19044.
66. *Posfai M., Anderson J.R., Buseck P.R., Sievering H.* Soot and sulfate aerosol particles in the remote marine troposphere // *J. Geophys. Res. D.* 1999. V. 104. № 17. P. 21685–21694.
67. *Randall C.E., Bevilacqua R.M., Lumple J.D., Hopfel K.W., Rusch D.W., Shettle E.P.* Comparison of Polar Ozone and Aerosol Measurement (POAM) II and Stratospheric Aerosol and Gas experiment (SAGE) II aerosol measurements from 1994 to 1996 // *J. Geophys. Res. D.* 2000. V. 105. № 3. P. 3929–3942.
68. *Rasch P.J., Collins W.D., Eaton B.E.* Understanding the Indian Ocean Experiment (INDOEX) aerosol distribution with an aerosol assimilation // *J. Geophys. Res. D.* 2001. V. 106. № 7. P. 7337–7355.
69. *Restad K., Isaksen S.A., Bernsten T.K.* Global distribution of sulphate in the troposphere. A three-dimensional model study // *Atmos. Environ.* 1998. V. 32. № 20. P. 3593–3609.
70. *Reus M., Strom J., Curtius J., Pirjola L., Vignati E., Arnold F., Hansson H.C., Kulmala M., Lelievre J., Raes F.* Aerosol production and growth in the upper free troposphere // *J. Geophys. Res. D.* 2000. V. 105. № 20. P. 24751–24762.
71. *Rosen J., Young S., Laby J., Kjome N., Gras J.* Springtime aerosol layers in the free troposphere over Australia: Mildura Aerosol Tropospheric Experiment (MATE 98) // *J. Geophys. Res. D.* 2000. V. 105. № 14. P. 17833–17842.
72. *Rusch P.J., Barth M.C., Kiehl J.T., Schwartz S.E., Benkovitz C.M.* A description of the global sulfur cycle and its controlling processes in the National Center for Atmospheric Research Community Climate Model, Version 3 // *J. Geophys. Res. D.* 2000. V. 105. № 1. P. 1367–1386.
73. *Satheesh S.K., Ramanathan V., Li-Jones X., Lobert J.M., Podgorny I.A., Prospero J.M., Holben B.N., Loeb N.G.* A model for the natural and anthropogenic aerosols over the tropical Indian Ocean derived from Indian Ocean Experiment data // *J. Geophys. Res. D.* 1999. V. 104. № 22. P. 27421–27440.
74. *Savarino J., Legrand M.* High northern latitude forest fires and vegetation emissions over the last millennium inferred from the chemistry of a central Greenland ice core // *J. Geophys. Res. D.* 1998. V. 103. № 7. P. 8267–8279.
75. *Savarino J., Lee C.C.W., Thiemens M.H.* Laboratory oxygen isotopic study of sulfur (IV) oxidation: Origin of the mass-independent oxygen isotopic anomaly in atmospheric sulfates and sulfate mineral deposits on Earth // *J. Geophys. Res. D.* 2000. V. 105. № 23. P. 29079–29088.
76. *Takemura T., Okamoto H., Maruyama Y., Numaguti A., Higurashi A., Nakajima T.* Global three-dimensional simulation of aerosol optical thickness distribution of various origins // *J. Geophys. Res. D.* 2000. V. 105. № 14. P. 17853–17874.
77. *Tegen I., Hollrig P., Chin M., Fung I., Jacob D., Penner J.* Contribution of different aerosol species to the global aerosol extinction optical thickness: Estimates from model results // *J. Geophys. Res. D.* 1997. V. 102. № 20. P. 23895–23915.
78. *Tegen I., Koch D., Lacis A.A., Sato M.* Trends in tropospheric aerosol loads and corresponding impact on direct radiative forcing between 1950 and 1990: A model study

- // J. Geophys. Res. D. 2000. V. 105. № 22. P. 26971–26990.
79. *Teinilä K., Kerminen V.-M., Hillamo R.* A study of size-segregated aerosol chemistry in the Antarctic atmosphere // J. Geophys. Res. D. 2000. V. 105. № 3. P. 3893–3905.
80. *Wählin P.* One year's continuous aerosol sampling at Summit in Central Greenland // Chemical Exchange Between the Atmosphere and Polar Snow / Ed. by E.W. Wolff and R.C. Baler. NATO ASI Series I. Berlin; Heidelberg: Springer-Verlag, 1996. V. 43. P. 131–143.
81. *Wolff E.W., Cachier H.* Concentrations and seasonal cycle of black carbon in aerosol at a coastal Antarctic station // J. Geophys. Res. D. 1998. V. 103. № 9. P. 11033–11042.
82. *Wurzler S., Reisin T.G., Levin Z.* Modification of mineral dust particles by cloud processing and subsequent effects on drop size distributions // J. Geophys. Res. D. 2000. V. 105. № 4. P. 4501–4512.

***K. Ya. Kondratyev. Aerosol as a climate-forming component of the atmosphere. 1. Physical properties and chemical composition.***

A survey has been made of the studies of physical properties and chemical composition of atmospheric aerosol conducted during the recent years in the context of investigations of aerosol as a climate-forming component of the atmosphere. Special attention has been paid to the discussion of the results of the Aerosol Characterization Experiment (ACE). A brief analysis has been made of basic processes responsible for atmospheric aerosol formation. The results of new efforts for the substantiation of atmospheric aerosol models have been summarized. Basic problems of numerical modeling have been characterized to simulate spatio-temporal three-dimensional variability of aerosol number density and size distribution.



