

К.Я. Кондратьев

От нано- до глобальных масштабов: свойства, процессы образования и последствия воздействий атмосферного аэрозоля.

3. Процессы образования (нуклеации) аэрозоля

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

Поступила в редакцию 7.07.2004 г.

Сделан обзор процессов образования (нуклеации) аэрозоля.

Введение

Обсужденные ранее данные наблюдений иллюстрируют большие усилия, прилагавшиеся за последние годы с целью получения более полной информации о глобальной пространственно-временной изменчивости свойств аэрозоля [3–10]. Одним из ярких примеров подобных усилий является продолжающийся с 1999 г. полевой наблюдательный эксперимент АРЕХ по изучению свойств и воздействий аэрозоля на климат [43] (эта программа осуществляется под руководством проф. Т. Nakajima из Центра исследований климатической системы Токийского университета). Интенсивное развитие исследований аэрозоля диктует необходимость краткого упоминания результатов новейших исследований до обращения к основной теме этого обзора.

Streets и др. [49] составили детальную сводку выбросов в атмосферу в Азии малых газовых компонентов (МГК) и аэрозоля по данным наблюдений за 2000 г. Оценки антропогенных выбросов получены с учетом всех главных источников (включая сжигание биомассы) в 64 регионах Азии. Суммарные уровни выбросов различных МГК (в Тг/год)

составили (в скобках указан соответствующий компонент): 34,3 (SO₂); 26,8 (NO_x); 9870 (CO₂); 279 (O); 107 (CH₄); 52,2 (NMVOC); 2,54 (аэрозольный «черный углерод» BC); 10,4 (органический углерод OC) и 27,5 (NH₃). Помимо этого рассмотрены 19 субкатегорий неметановых летучих органических соединений NMVOC, классифицированных в соответствии с их функциональной спецификой и химической активностью. Это позволяет считать, что в обсуждаемой сводке достаточно полно учтены главные источники и типы антропогенных выбросов МГК и аэрозоля в регионах осуществления полевых наблюдательных экспериментов TRACE-P и ACE-Asia.

Доминирующий вклад в формирование поля концентрации антропогенных МГК и аэрозоля вносил Китай, что характеризуют следующие уровни выбросов (Тг/год): 20,4 (SO₂); 11,4 (NO_x); 3820 (CO₂); 116 (CO); 38,4 (CH₄); 17,4 (NMVOC); 1,05 (BC); 3,4 (OC) и 13,6 (NH₃). В работе [49] осуществлено картирование выбросов при различном пространственном разрешении от 1° широты × 1° долготы и выше. Данные таблицы характеризуют уровни выбросов различных соединений.

Уровни выбросов различных МГК и аэрозоля (PM-10, PM-2,5 и морской солевой)

Компонент	Природные источники	Внутреннее сгорание	Открытое сжигание	Все источники
SO ₂	2,0	5,6	0,2	7,8
NO _x	0,005	4,0	1,1	5,1
CO ₂	—	1453,0	459,6	1912,6
CO	—	34,7	27,8	62,5
CH ₄	—	16,5	1,3	17,8
NMVOC	18,3	6,7	5,0	30,0
BC	—	0,3	0,2	0,5
OC	—	1,2	1,4	2,6
NH ₃	—	4,7	0,4	5,1
PM-10	107,7	—	—	116,0
PM-2,5	26,2	—	—	31,2
Морской солевой	41,6	—	—	41,6

Сравнение данных обсуждаемой сводки и наблюдений в период TRACE-P (февраль–апрель 2001 г.) выявило достаточно близкое согласие средних величин. Погрешности рассмотренной инвентаризации (на уровне 95%-й статистической значимости) изменяются в пределах от очень небольших ($\pm 16\%$ для SO_2) до очень высоких ($\pm 450\%$ в случае ОС).

Alfaro и др. [11] обсудили результаты наблюдений химического состава и оптических свойств аэрозоля, выполненных в Zhenbeitai (ZBT), расположенном поблизости от г. Yulin ($38^\circ 17'$ с.ш.; $109^\circ 43'$ в.д., провинция Шанхай, Китай), в апреле 2002 г. Годом раньше ZBT служил одним из главных континентальных пунктов наблюдений в рамках международной программы ACE-Asia исследований свойств аэрозоля в Азии. Весной этот пункт наблюдений, находящийся на юго-западном краю пустыни Mu Us, оказывается «перекрестком», через который происходит дальний перенос пылевого аэрозоля (ПА) из расположенных в китайских пустынях главных источников ПА.

Аппаратура, использованная для измерений микроструктуры аэрозоля, обеспечивала измерения счетной и массовой концентрации, элементного состава и рассеивающих свойств аэрозоля PM-9 (частиц диаметром меньше 9 мкм). Солнечный фотометр служил для измерений аэрозольной оптической толщины (АОТ) атмосферы и альbedo однократного рассеяния (АОР). В течение рассматриваемого периода наблюдений случилось несколько пылевых бурь, причем в одном из таких случаев массовая концентрация аэрозоля PM-9 достигала 4650 мкг/м^3 , а коэффициент аэрозольного рассеяния составлял $2800 \text{ M}(10^{-6}) \text{ м}^{-1}$. В промежутках между событиями пылевых бурь существенный (а иногда доминирующий) вклад принадлежал антропогенному аэрозолю местного происхождения. В такие периоды массовая концентрация аэрозоля была значительно ниже (меньше 100 мкг/м^3) при массовой концентрации черного углерода в пределах $0,9\text{--}6,7 \text{ мкг/м}^3$ и аэрозольном коэффициенте рассеяния в интервале $7\text{--}800 \text{ Mм}^{-1}$.

Химический состав аэрозоля в периоды пылевых бурь оставался практически неизменным. Измеренные значения отношения концентраций Fe/Al ($0,63 \pm 0,04$) и Mg/Al ($0,32 \pm 0,03$) согласуются с предположением об источниках ПА, находящихся в регионе северо-западных пустынь Китая. Справедливость подобного предположения подтверждают и результаты вычисления «обратных» траекторий воздушных масс. Достигавшие пункта наблюдений частицы ПА включали захваченные в процессе дальнего переноса антропогенные углеродные компоненты. Микроструктура такого рода аэрозоля, являющегося продуктом дальнего переноса, была сравнительно неизменной и характеризовалась преобладанием частиц с средним диаметром в пределах $1\text{--}2 \text{ мкм}$. Массовый коэффициент рассеяния составлял $(1,05 \pm 0,13) \text{ м}^2/\text{г}$, а экспонента Ангрстрема была близкой к $0,19$. Имело место возрастание АОР с увеличением длины волны от $0,89$ (на

длине волны 441 нм) до $0,95$ (873 нм). Относительно высокие значения альbedo однократного рассеяния свидетельствуют о том, что регулярной особенностью формирования аэрозоля было образование смеси минерального природного и антропогенного аэрозоля, причем аэрозоль не был очень сильно поглощающим даже в периоды наиболее интенсивных пылевых бурь.

Iwasaka и др. [28, 29] проанализировали результаты лидарных зондирований вертикального профиля концентрации аэрозоля в тропосфере в Dunhuang (Китай: $40^\circ 00'$ с.ш.; $94^\circ 30'$ в.д.) над пустыней Taklamakan летом 2002 г. Данные о вертикальном профиле отношения обратного рассеяния $(\text{BSC}_1 + \text{BSC}_2)/\text{BSC}_1$, где $\text{BSC}_{1,2}$ – коэффициенты обратного рассеяния за счет молекулярного и аэрозольного рассеяния на длине волны 532 нм , свидетельствуют о том, что аэрозоль был сконцентрирован в нижнем 6-км слое атмосферы, выше которого начиналось быстрое убывание рассматриваемого отношения от $2\text{--}5$ до 1 . Подобным же образом изменялось и отношение деполяризации $P_1/(P_1 + P_2)$ ($P_{1,2}$ – ортогональные компоненты степени поляризации) при наличии резкого изменения вблизи 6 км. Электронно-микроскопический анализ проб аэрозоля, взятых при помощи аэростатного импактора, показал, что большие значения фактора деполяризации обусловлены влиянием частиц пылевого аэрозоля, имеющих неправильную форму. Подобные несферические частицы поступают с подстилающей поверхности в свободную тропосферу при наличии преобладающего западно-восточного переноса, достигая высот около 6 км.

Jordan и др. [31] выполнили анализ химического состава и физических свойств атмосферного аэрозоля по данным проб, взятых с самолета-лаборатории DC-8 на различных высотах в нижней тропосфере весной 2001 г. в период осуществления полевого эксперимента TRACE-P. В зависимости от типа рассчитанных «обратных» траекторий воздушных масс (т.е. от направлений дальнего переноса) рассматриваемые данные наблюдений классифицированы на четыре группы, соответствующие дальнему переносу с запада (WSW); воздействию региональной циркуляции над западным сектором Тихого океана и Юго-Восточной Азией (SE Asia); переносу загрязненного воздуха с севера Азиатского континента, особенностью которого было наличие в нижней части пограничного слоя атмосферы (ПСА) значительного количества морского солевого аэрозоля (NNW); поступлению преимущественно пылевого аэрозоля (Channel).

Для условий WSW были характерны малые значения отношения смеси аэрозоля в средних и высоких широтах, причем основным компонентом состава аэрозоля были растворимые в воде несолевые (неморские) неорганические соединения. Малые значения отношения смеси типичны и для условий SE Asia в нижней тропосфере, как и доминирование несолевого аэрозоля, но при наличии значительного вклада сажевого компонента. Отличительной особенностью условий NNW являлся

наиболее высокий уровень концентрации морского солевого аэрозоля при приблизительно одинаковом вкладе в массу аэрозоля на высотах меньше 2 км морского солевого, несолевого и пылевого компонентов. В секторе Channel на высотах < 2 км наиболее значительной была доля воднорастворимых ионов и сажевого компонента. Основная масса аэрозоля, поступающего из Азии, сконцентрирована в этом секторе в низких и средних широтах за счет преобладания пылевого аэрозоля (по сравнению с другими регионами).

В условиях Channel и NNW счетная концентрация аэрозоля определяется главным образом мелкодисперсным компонентом, тогда как объем частиц — морским солевым и пылевым аэрозолем. На малых высотах в секторе Channel наблюдались наиболее высокая счетная концентрация ядер конденсации (CN), а также повышенные (по сравнению с другими регионами) значения коэффициентов рассеяния. В средних широтах на высотах 2–7 км в регионах загрязненной атмосферы (Channel, NNW) малые значения CN сочетались с высокой долей ($\geq 65\%$) нелетучих частиц, что можно объяснить влиянием вымывания из атмосферы гигроскопических частиц ядер конденсации. Наличие в секторе SE Asia малых значений альbedo однократного рассеяния отображает влияние повышенного содержания сажевого компонента аэрозоля на его оптические свойства.

В результате прогрессирующего иссушения внутренних регионов азиатского континента, происходившего под воздействием ступенеобразного подъема Тибетского плато в конце ценозойской эры, значительно усилилось поступление в атмосферу пылевого аэрозоля из песчаных пустынь, который претерпевал затем дальний перенос, причем главным центром аккумуляции ПА служило лёссовое плато (ЛП). Стратографические исследования показали, что подобная аккумуляция ПА началась не менее 7–8 тыс. лет тому назад в основной части ЛП и еще 22 тыс. лет тому назад в его западном регионе. Согласно имеющимся палеоклиматическим данным процесс аккумуляции, происходивший в течение последних 2,5 тыс. лет, характеризовался наличием интервалов интенсивного осаднения ПА и слабого химического выветривания (педогенеза) в периоды оледенений, которое перемежалось с умеренным осаднением ПА и сильным педогенезом в течение межледниковых периодов. Зависимость процесса осаднения ПА от динамики палеомуссонов определяет возможность восстановления по стратиграфическим данным.

Sun и др. [50] предприняли анализ проб ПА, полученных в точках ЛП в периоды 1995–1996 гг. и 2000 г. Для состава ПА было типично наличие минеральных зерен в сочетании с большим количеством органического вещества, особенно в летнее время года. Значение магнитной восприимчивости проб оказалось, как правило, выше, чем в случае гляциального лёсса. Более отчетливым был годовой ход с максимумом концентрации ПА летом и минимумом зимой. Если не учитывать влияние загряз-

нений на современный ПА, то можно думать, что высокая магнитная восприимчивость палеозоля четвертичного периода была обусловлена либо прямым воздействием климата, либо дальнейшим усилением постдепозиционного педогенеза. Особенности годового хода потока ПА позволяют заключить, что суммарное годовое осаднение ПА определяется главным образом происходящим в течение года непрерывным осаднением, но не вкладом пылевых бурь в течение ограниченных промежутков времени. При этом поток ПА характеризуется наличием отчетливого годового хода с максимумом весной или ранним летом, особенно в северной части ЛП.

Для распределения частиц по размерам типична асимметрия, аналогичная наблюдаемой в случае четвертичного лёсса. Главной особенностью годового хода микроструктуры ПА является повышение доли крупнодисперсных частиц весной и летом, но противоположная тенденция — осенью и зимой. В различных пунктах взятия проб специфика микроструктуры ПА в сильной степени зависела от высоты и нелинейно изменялась с ростом высоты. Данные о вертикальных профилях концентрации ПА, трендах и годовом ходе потока ПА и микроструктуры ПА указывают на то, что дальний перенос современного ПА (как и четвертичного лёсса) происходил главным образом в нижней тропосфере в течение всего года при интенсификации осаднения ПА весной и ранним летом. В настоящее время в составе ПА обнаруживаются признаки присутствия антропогенного компонента.

Тропики Индийского океана являются, по-видимому, единственным регионом на земном шаре, где находящиеся в северном полушарии мощные источники антропогенных загрязнений входят в соприкосновение с чистой атмосферой южного полушария в результате пересечения экватора муссонным потоком. Именно поэтому акватория Индийского океана, расположенная к западу и к югу от Индийского субконтинента (10° с.ш. — 11° ю.ш., 55° в.д. — 75° в.д.), была выбрана как основной регион для осуществления полевого наблюдательного эксперимента INDOEX, главная цель которого состояла в исследовании распространяющейся ежегодно (в ноябре–апреле) индо-азиатской аэрозольной дымки. В ходе выполнения фазы интенсивных полевых наблюдений (IFP) в январе–марте 1999 г. были использованы различные средства спутниковых, самолетных, корабельных и наземных наблюдений.

В этой связи Franke и др. [25] обсудили результаты аэрозольного зондирования атмосферы с использованием уникального аэрозольного шести-канального рамановского лидара, выполненного в Хулхуле на Мальдивских о-вах (4° с.ш., 73° в.д.) в период с февраля 1999 по март 2000 г. Полученные вертикальные профили аэрозольного коэффициента экстинкции (АКЭ) на длинах волн 355 и 532 нм относятся к условиям сильно загрязненной атмосферы. Среднее значение аэрозольной оптической толщины на длине волны 532 нм составило около 0,3, а максимальные значения достигали 0,7.

Над загрязненным морским пограничным слоем атмосферы было обнаружено присутствие шлейфов дымки на высотах до 4 км. В среднем вклад слоев аэрозоля в свободной тропосфере в формирование АОТ варьировал в пределах 30–60%. Типичный диапазон изменений объемного АКЭ на длине волны 532 нм в «приподнятых» слоях аэрозоля составлял 25–175 М/м.

В работе [25] охарактеризованы свойства аэрозольных шлейфов j , наблюдавшихся в воздушных массах, поступавших из Юго-Восточной Азии, Северной Индии и Южной Индии. Отношение АКЭ к обратному рассеянию (лидарное отношение) изменялось, как правило, в пределах 30–100 ср, а в случае сильно поглощающих частиц из Северной Индии составляло 50–80 ср. Более высокие значения (примерно на 20 ср) лидарного отношения для аэрозоля из Северной Индии по сравнению с европейским аэрозолем согласуются с предположением, что индийский аэрозоль характеризуется высоким (до 20%) содержанием черного углерода. В случае частиц из Юго-Восточной Азии, Северной и Южной Индии экспонента Ангстрема для длин волн 355/400/532 нм варьирует в пределах соответственно 1–1,6; 0,8–1,4 и 0,6–1,0. Более низкие значения экспоненты для аэрозоля из Индии обусловлены, по-видимому, существенным вкладом продуктов сжигания биомассы на формирование аэрозоля в Индии. Анализ корреляционных связей между лидарным отношением, АЭК, экспонентой Ангстрема и относительной влажностью показал, что в большинстве случаев подобная корреляция проявляется слабо или отсутствует вообще.

В рамках программы периода интенсивных наблюдений, составлявшего часть полевого наблюдательного эксперимента ACE-Asia с целью исследований характеристик аэрозоля, 23 апреля 2001 г. вблизи от Токио Murauma и др. [42] предприняли наземные лидарные зондирования атмосферы, результаты которых были сопоставлены с данными самолетных измерений. Во время самолетных измерений на высотах до 6 км над заливом Сагали к юго-западу от Токио функционировали четыре наземных лидара. Комплекс самолетной научной аппаратуры включал солнечный фотометр и датчики, обеспечивавшие прямые (*in situ*) измерения оптических свойств аэрозоля, микроструктуры, ионного состава аэрозоля и концентрации CO_2 .

Согласно данным трех поляризационных лидаров наблюдавшаяся умеренная концентрация азиатского пылевого аэрозоля в свободной тропосфере зарегистрирована на высотах до 8 км. Имело место хорошее согласие данных различных лидаров и нефелометра по коэффициенту рассеяния на длине волны 532 нм. Сравнение выявило высокую устойчивость и мезомасштабную однородность аэрозольного слоя на высотах 1,6–3,5 км. Наблюдалось вполне удовлетворительное согласие между значениями коэффициента экстинкции ($\sigma_a \sim 0,03 \text{ км}^{-1}$), полученными по данным самолетного солнечного фотометра, и результатами лидарных зондирований над ПСА. Обнаружены значительные изменения

с высотой аэрозольного отношения деполяризации (δ_a) и отрицательная корреляция между δ_a и коэффициентом обратного рассеяния σ_{bsp} на высотах меньше 1,3 км.

Из результатов самолетных измерений оптических параметров, зависящих от размеров частиц (доли рассеяния за счет мелкодисперсного аэрозоля), и ионного состава аэрозоля следует, что главными факторами наблюдаемой изменчивости δ_a были значения отношений смеси частиц аккумуляционной моды и грубодисперсного (пылевого) аэрозоля. В период обсуждаемых сравнений атмосфера характеризовалась наличием трех специфических слоев: 1) ПСА (от подстилающей поверхности до высоты 1,2–1,5 км), где преобладал мелкодисперсный (главным образом сульфатный) аэрозоль при малых значениях δ_a ($< 10\%$); 2) промежуточный слой (между верхней границей ПСА и уровнем 3,5 км), где частицы мелкодисперсного и пылевого аэрозоля находились в состоянии умеренной внешней перемешанности при небольших значениях δ_a ; 3) верхний слой (выше 3,5 км), где доминировал пылевой аэрозоль, что обусловило высокий уровень δ_a (30%). По данным самолетных наблюдений к западу от Японии был замечен значительный слой пылевого аэрозоля на высотах 4,5–6,5 км, где лидарное отношение составляло $(50,4 \pm 9,4)$ ср. Этот результат хорошо согласуется с результатами ночных наблюдений при помощи рамановского лидара, которые были сделаны позднее в том же пылевом слое, когда он проходил над Токио и лидарное отношение составляло $(46,5 \pm 10,5)$ ср.

Следствием быстрого промышленного развития и роста численности населения в Восточно-Азиатском регионе явилось сильное возрастание антропогенных загрязнений атмосферы за счет промышленных и сельскохозяйственных источников, к которому добавляются еще и мощные выбросы в атмосферу пылевого аэрозоля во время возникновения пылевых бурь в Северо-Западном Китае, особенно весной. Возникающие в тропосфере загрязнения за счет различных малых газовых компонентов, а также антропогенного, пылевого, вулканического и морского аэрозолей претерпевают трансформацию и дальний перенос в западный сектор Тихого океана. Carrico и др. [18] проанализировали результаты наблюдений концентрации МГК и аэрозоля в тропосфере над Тихим океаном, сделанных на борту НИС «Ronald H. Brown» в период с 15 марта по 20 апреля 2001 г.

Использование данных нефелометрических измерений позволило определить значения коэффициентов рассеяния (σ_{sp}) и обратного рассеяния (σ_{bsp}) на различных длинах волн в зависимости от относительной влажности RH для частиц с аэродинамическим диаметром d_p в пределах 1–10 мкм. В течение первых 10 сут рейса, начавшегося вблизи Гавайских о-вов в условиях доминирования незагрязненных воздушных масс, коэффициент рассеяния на длине волны 550 нм $\sigma_{\text{sp}} = (23 \pm 13) \cdot 10^{-6} \text{ Мм}^{-1}$, коэффициент поглощения $\sigma_{\text{ap}} = (0,5 \pm 0,3) \text{ Мм}^{-1}$

(относительная влажность была равна соответственно 19 и 55%, $d_p < 10$ мкм). Морской аэрозоль характеризовался сильной гигроскопичностью и обнаруживал отчетливые признаки растворимости и гистерезиса. По мере приближения к побережью Восточной Азии усиливались проявления загрязненности воздушных масс, которые отображались значениями $\sigma_{sp} = (64 \pm 30) \text{ Мм}^{-1}$, $\sigma_{ap} = (6,6 \pm 4,4) \text{ Мм}^{-1}$ и сильным вкладом субмикронного аэрозоля в формирование σ_{sp} . Аэрозоль был в таких случаях менее гигроскопичным и характеризовался широким диапазоном изменчивости растительности.

Сильное рассеяние было типичным и для аэрозоля вулканического происхождения:

$$\sigma_{sp} = (114 \pm 66) \text{ Мм}^{-1} \text{ и } \sigma_{ap} = (11,7 \pm 5,6) \text{ Мм}^{-1},$$

как и существенная роль субмикронной фракции аэрозоля. Этот аэрозоль был сильно гигроскопичным. Наиболее интенсивное рассеяние типично для пылевого аэрозоля: $\sigma_{sp} = (181 \pm 82) \text{ Мм}^{-1}$; $\sigma_{ap} = (12,1 \pm 6,4) \text{ Мм}^{-1}$ при наличии значительного вклада в формирование оптических свойств как супер-, так и субмикронных частиц.

Наиболее важные особенности наблюдавшегося над Тихим океаном в северном полушарии аэрозоля состояли в доминировании рассеяния за счет таких свойств аэрозоля, как растворимость, гистерезис и существование метастабильных капель. Средние значения RH , при которых происходили растворение и кристаллизация, составляли соответственно (77 ± 2) и $(42 \pm 3)\%$. Среднее значение отношения $R = \sigma_{sp} (RH \text{ соответствует условиям окружающей атмосферы}) / \sigma_{sp} (RH = 19\%)$ варьировало в пределах от 1,25 (пылевой аэрозоль) до 2,88 (вулканический аэрозоль). Значения коэффициента рассеяния назад изменялись от 0,077 (морской аэрозоль) до 0,111 (пылевой аэрозоль), тогда как альbedo однократного рассеяния варьировало от $0,94 \pm 0,03$ (пыль и загрязнения) до $0,99 \pm 0,01$ (морской аэрозоль). Значения экспоненты Ангстрема характеризовались слабой зависимостью от RH , но сильно отличались для аэрозоля различных типов, варьируя от $0,16 \pm 0,60$ (морской аэрозоль) до $1,49 \pm 0,29$ (вулканический аэрозоль).

Доминирующим фактором чувствительности обусловленного аэрозодем радиационного возмущающего воздействия (РВВ) к химическому составу аэрозоля является, по-видимому, зависимость альbedo однократного рассеяния от содержания поглощающих коротковолновую радиацию компонентов аэрозоля (в первую очередь это относится к сажевому компоненту). В связи с этим в течение трех недель марта–апреля 2001 г. в Yasaka (Япония: $35,37^\circ$ с.ш.; $135,81^\circ$ в.д.), расположенном на побережье Японского моря, Höller и др. [27] предприняли исследования зависимости оптических свойств аэрозоля от размеров и состава частиц аэрозоля в рамках полевой наблюдательной программы ACE-Asia. С другой стороны, оптические свойства аэрозоля рассчитаны по заданным характеристикам химического состава и микроструктуры

аэрозоля, включая его поглощающий компонент, с целью последующего сравнения с данными наблюдений. Непрерывные измерения коэффициентов аэрозольного рассеяния и рассеяния назад в зависимости от размеров частиц сделаны на длинах волн 450, 550 и 700 нм. Измерения микроструктуры аэрозоля осуществлены при помощи каскадных импакторов три раза в течение всего периода измерений, причем каждая серия подобных измерений продолжалась 3–4 дня. Один из этих периодов измерений (20–25 марта 2001 г.) отмечен наличием желтого ПА, возникшего на Азиатском континенте, тогда как в других случаях влияние пылевого аэрозоля было несущественным.

Согласно полученным результатам ПА сопровождался наличием мелкодисперсной фракции аккумуляционной моды. Проанализировано влияние ПА на оптические и химические свойства аэрозоля, а также сопоставлены данные наблюдений при наличии и отсутствии возникавшего в пустынях ПА. До осуществления сравнений вычисленных оптических характеристик аэрозоля с измеренными осуществлен покомпонентный контроль оценок суммарной массовой концентрации аэрозоля и влияния погрешностей неполного учета компонентов аэрозоля на результаты вычислений оптических характеристик (наиболее существенные погрешности связаны с учетом летучего и поглощающего компонентов аэрозоля). В целом согласие рассчитанных и наблюдаемых значений коэффициентов рассеяния и поглощения оказалось вполне удовлетворительным, тогда как в случае коэффициента рассеяния назад имели место существенные расхождения, особенно для грубодисперсной моды аэрозоля. Наблюдалось отчетливое различие зависимости АОР от длины волны при наличии и в отсутствие пылевого аэрозоля в атмосфере. В первом случае, когда массовая концентрация аэрозоля была максимальной, наблюдалось увеличение АОР с ростом длины волны, тогда как в течение третьего периода наблюдений (минимального содержания аэрозоля) имело место уменьшение АОР по мере роста длины волны.

Bahreini и др. [14] рассмотрели результаты наблюдений микроструктуры и химического состава атмосферного аэрозоля, выполненных в период полевого наблюдательного эксперимента ACE-Asia с использованием установленного на борту самолета-лаборатории Twin Otter аэрозольного масспектрометра Aerodyne (AMS). Совершенные в период 31 марта – 1 мая 2001 г. полеты охватывали регион $127\text{--}135^\circ$ в.д.; $32\text{--}38^\circ$ с.ш., причем надежные данные получены для 15 полетов из 19. Согласно данным аппаратуры AMS в течение рассматриваемого периода наблюдений в толще атмосферы между пограничным слоем и высотой около 3,7 км имели место отчетливые слои субмикронного аэрозоля, состоявшие главным образом из сульфата, аммония и органических соединений. Между этими слоями располагались слои с существенно более низкой концентрацией аэрозоля. В некоторых аэрозольных слоях массовая концентрация сульфата и органики достигала соответственно 10 и 13 мкг/м^3 .

Анализ «обратных» траекторий воздушных масс показал, что слои аэрозольных загрязнений формировались в городских и промышленных регионах Китая и Кореи. Микроструктура мелкодисперсного аэрозоля (взвешенное по массе распределение частиц по размерам) оказалась мало изменчивой (день ото дня и от слоя к слою) при типичных значениях аэродинамического диаметра частиц в пределах 0,4–0,5 мкм и при ширине распределения (по половинному значению по отношению к максимуму) около 0,45 мкм. При отсутствии выносов пылевого аэрозоля с Азиатского континента наблюдалась корреляция массовой концентрации непреломляющего аэрозоля с его суммарной концентрацией.

Выполненные в период с 28 марта по 6 мая 2001 г. самолетные измерения (самолет-лаборатория С-130) радиационных характеристик аэрозоля при помощи нефелометров и датчиков PSAP для определения обусловленного аэрозолем поглощения солнечной радиации позволили получить богатую информацию об оптических свойствах атмосферного аэрозоля. Осуществленный Anderson и др. [13] анализ результатов наблюдений выявил наличие доминирующих мод мелкодисперсного аэрозоля, связанного с загрязнением атмосферы, и крупнодисперсного минерального пылевого аэрозоля. Мелкодисперсный аэрозоль оказался умеренно поглощающим при среднем значении альбеда однократного рассеяния на длине волны 550 нм в условиях низкой относительной влажности RH , равном $\omega = 0,88 \pm 0,03$ (на 95 %-м уровне статистической значимости). Этот компонент аэрозоля обладает умеренной гигроскопичностью, и при относительной влажности в пределах 40–85% происходит усиление рассеяния с повышением RH , тогда как для крупнодисперсного компонента типично очень слабое поглощение ($\omega = 0,96 \pm 0,01$) и он является почти негигроскопичным. Рассматриваемые результаты могут быть использованы для обоснования оптических моделей азиатского аэрозоля и оценок аэрозольного радиационного возмущающего воздействия.

Zhang и др. [57] выполнили анализ проб аэрозоля, собранных в Кумамото – прибрежном городе, расположенном на юго-западе Японии ($32^{\circ}48'$ с.ш.; $130^{\circ}45'$ в.д.) в периоды трех пылевых бурь, возникших весной 2000 г. на Азиатском континенте. Изучены химический состав, микроструктура и состояние перемешанности частиц аэрозоля, включавшего такие компоненты, как морская соль, сульфат и нитрат, с использованием методик электронной микроскопии и рентгеновского дисперсионного анализа. Около 60–85% частиц ПА характеризовались состоянием внутренней перемешанности с морской солью. Анализ подобной ситуации в контексте условий погоды позволил предположить, что такого рода частицы сформировались в результате процессов столкновений и коагуляции частиц первоначального ПА и морской соли.

Данные о весовых соотношениях минеральных компонентов и морской соли в отдельных частицах показали, что состав смешанных частиц характеризуется преобладанием минерального компонента,

морской соли или обоих этих компонентов. Во всех рассмотренных случаях микроструктура аэрозоля оказалась сходной при диапазоне значений диаметра частиц в пределах 1–8 мкм (мода максимума счетной концентрации приходится на диаметр около 3 мкм). Частицы вне диапазона диаметра 1–8 мкм практически отсутствовали. Следствием сочетания частиц пыли и морской соли оказалось возрастание размеров частиц ПА. По-видимому, в условиях морской атмосферы происходит быстрое удаление частиц, диаметр которых превосходит 3 мкм, о чем свидетельствует уменьшение счетной концентрации подобных частиц.

Данные о химическом составе частиц указывают на то, что 91% частиц или более содержали сульфат, а 27% частиц или меньше включали нитрат. Сравнение данных об относительном весовом содержании натрия, серы и хлора в смешанных и в морских солевых частицах подтвердило тот установленный ранее факт, что наличие минерального вещества благоприятствует образованию аэрозольного сульфата и нитрата и ограничивает уменьшение содержания хлора в морских солевых компонентах частиц смешанного состава. Подчеркнуто, что рассмотренные результаты получены при отсутствии «переработки» аэрозоля облаками, которые обуславливают сильное изменение свойств аэрозоля.

В рамках программ полевых наблюдательных экспериментов APEX-E2 по изучению изменчивости свойств аэрозоля в окружающей среде и ACE-Asia (азиатский региональный эксперимент с целью исследований характеристик аэрозоля над Восточно-Китайским морем и Японией) Sano и др. [48a] выполнили исследования оптических свойств атмосферного аэрозоля при помощи солнечных многоканальных фотометров CE-318-1 и CE-2 и полиметра PSR-1000 в трех пунктах наблюдений: о-в Amami-Oshima в Восточно-Китайском море ($28,37^{\circ}$ с.ш.; $128,50^{\circ}$ в.д.), Noto ($37,33^{\circ}$ с.ш.; $137,13^{\circ}$ в.д.) и Shirahama ($33,68^{\circ}$ с.ш.; $135,35^{\circ}$ в.д.).

По данным радиометров восстановлены значения АОТ и экспоненты Ангстрема, а с использованием всей совокупности результатов измерений – микроструктура аэрозоля, комплексный показатель преломления (КПП) и некоторые другие характеристики. Анализ результатов наблюдений с целью распознавания источников аэрозоля осуществлен с использованием результатов вычислений «обратных» траекторий на основе методики HYPSLIT-4. Полученные результаты отображают целесообразность разделения данных наблюдений АОТ, микроструктуры и КПП на две типичные категории: 1) фоновый аэрозоль зимой; 2) аэрозоля почвенного происхождения, возникающего весной в периоды пылевых бурь в Китае. Данные по микроструктуре свидетельствуют о преобладании крупнодисперсного аэрозоля.

В марте–апреле 1999 г. был осуществлен четвертый полевой наблюдательный эксперимент PEM-Tropics В в рамках программы Глобального тропосферного эксперимента (GTE), состоявший

в исследовании газового и аэрозольного состава тропосферы при помощи аппаратуры, установленной на самолетах-лабораториях DC-8 и P-3. Во время полетов с о-ва Уоллопс самолета P-3 и наземных измерений с башни на о-ве Рождества с использованием фильтров получены пробы аэрозоля с целью изучения связанных с аэрозолем конечных продуктов круговорота серы — неморских сульфатов nss-SO_4^{2-} и метаносульфата MS^- , имея в виду проверку адекватности модели круговорота серы в морском пограничном слое атмосферы.

Выполненный Dibb и др. [22, 23] анализ результатов наблюдений показал, что концентрация большей части связанных с аэрозолем ионов быстро убывает с высотой над поверхностью океана, что затрудняет сравнение результатов измерений на уровне башни (30 м) и на минимальной высоте полетов P-3 (150 м). Согласно теоретическим представлениям должно наблюдаться экспоненциальное уменьшение отношения смеси частиц морского солевого аэрозоля с высотой. Наблюдаемые вертикальные градиенты концентрации Na^+ и Mg^+ , рассчитанные по данным наблюдений на башне и с самолета P-3 (на высотах меньше 1 км), подтверждают справедливость такого вывода, хотя следствием экспоненциальной аппроксимации оказывается занижение отношений смеси вблизи подстилающей поверхности на 25%.

Анализ проб, взятых с башни при помощи каскадного импактора, обнаружил, что более 99% массы Na^+ и Mg^+ приходится на долю супермикронной фракции аэрозоля, в том числе 65% — на частицы в диапазоне размеров 1–6 мкм и 20% — более 9 мкм. Эти результаты свидетельствуют о том, что датчики, установленные на самолете, должны обладать высокой эффективностью забора частиц размером, по крайней мере, до 6 мкм. Данные наблюдений указывают также на то, что концентрация доминирующих в аккумуляционной моде nss-SO_4^{2-} и NH_4^+ характеризуется тенденцией уменьшения в слое 150–1000 м, но часто оказывается, что она выше на минимальном уровне самолета, чем на башне. Причины подобной ситуации пока что не ясны. Возможно, что в данном случае сказывается уменьшение концентрации nss-SO_4^{2-} и NH_4^+ у поверхности океана в результате их конденсации на поверхности больших частиц, которые затем быстро вовлекаются в процесс сухого осаждения.

По данным измерений для 414 фильтровых проб, полученных весной 2001 г. на борту самолета-лаборатории DC-8, Dibb и др. [22, 23] проанализировали концентрацию связанных с атмосферным аэрозолем растворимых в воде ионов и радиоактивных трассеров ^7Be и ^{210}Pb . Сравнение результатов, относящихся к прибрежной зоне Тихого океана (Гонконг и Япония) и к удаленному региону океана, обнаружило наличие значительного возрастания концентрации NO_3^- , SO_4^{2-} , $\text{C}_2\text{O}_4^{2-}$, NH_4^+ , K^+ , Mg^{2+} и Ca^{2+} в полосе побережья. Здесь пограничный слой атмосферы и нижняя тропосфера находились под очень сильным воздействием поступле-

ния воздушных масс с континента, которое наиболее отчетливо проявилось в возрастании концентрации Ca^{2+} (трассера пылевого аэрозоля) и NO_3^- (индикатора усвоения HNO_3 пылевым аэрозолем). Сопоставление данных, полученных в период TRACE-P и во время выполненного в том же регионе ранее (1994 г.) полевого эксперимента PEM-West B, продемонстрировало возрастание концентрации большей части упомянутых ионов почти в два раза в период TRACE-P. В результате этого сопоставления также наиболее сильно проявилось увеличение концентраций Ca^{2+} и NO_3^- , которые более чем в 7 раз (в ПСА) и в 3 раза (нижняя тропосфера) превосходили значения, зарегистрированные ранее. Наиболее достоверное объяснение причин значительного роста концентрации рассматриваемых ионов состоит в том, что самолетные измерения в пределах региона поступления загрязненных воздушных масс с континента были сосредоточены в большей степени в период TRACE-P, чем во время PEM-West B. Нет, таким образом, оснований предполагать, что за период 1994–2001 г. произошло заметное усиление загрязнений атмосферы.

Обнаруженные недавно аномалии не зависящего от массы (MI) изотопного состава серы в пробах докембрийских горных пород были объяснены влиянием фотохимических процессов в атмосфере и использованы для определения уровня концентрации кислорода в ранней атмосфере Земли. В этой связи Romero и Thiemens [48] рассмотрели первые данные о MI-изотопном составе серы в современной атмосфере, полученные в результате анализа проб сульфатного аэрозоля, относящихся к северному полушарию. Анализ палео- и современных данных не обнаружил корреляции между MI-изотопным составом серы и сигнатурами кислорода, как это наблюдалось ранее. Оказалось, что почвенный сульфат из сухих долин Антарктики, который имеет атмосферное происхождение и характеризуется наличием MI-кислородной сигнатуры, является по отношению к сере зависящим от массы (MD). Необходимо поэтому учесть иного процесса, чем предложенного ранее для объяснения MI-кислородной сигнатуры в сульфате. В работе [48] обсуждены возможные причины подобной аномалии, а также значение полученных результатов с точки зрения исследований глобального климата, геологии архейской эры и состава ранней атмосферы Земли.

Происхождение вулканического сульфатного аэрозоля обычно связывается с газофазным механизмом его образования в процессе медленного окисления сернистого газа SO_2 . Allen и др. [12] рассмотрели результаты новых наблюдений выбросов вулкана Масайя (Masaya) в Никарагуа, из которых следует, что сульфатный аэрозоль может выбрасываться в атмосферу и непосредственно. Одновременные пробы аэрозоля, а также газообразных соединений SO_4^{2-} , Cl и F получены на краю кратера вулкана в мае 2001 г. Средние значения концентрации ионов SO, Cl⁻ и F⁻ в пределах шлейфа выбросов вулкана составили соответствен-

но 83; 1,2 и 0,37 мкг/м³ (в случае мелкодисперсной фракции аэрозоля с размером частиц < 2,5 мкм) и 16; 2,5 и 0,56 мкг/м³ (крупнодисперсная фракция, > 2,5 мкм).

Аэрозоль оказался в сильной степени кислотным при pH < 1,0 (мелкодисперсный аэрозоль). Сульфат был сконцентрирован главным образом в мелких частицах (около 80% массы составлял мелкодисперсный аэрозоль). Главная масса сульфата выбрасывалась в атмосферу непосредственно через магматические венты. Кислотность аэрозоля определялась главным образом наличием серной кислоты и, в меньшей степени, гидрофтористой кислоты при значениях отношения концентраций $[H^+]/[SO_4^{2-}]$ в пределах 0,5–0,8 и 0,3–3 для мелко- и крупнодисперсного аэрозоля соответственно. Значения отношения масс газообразной и аэрозольной фаз различных компонентов составили, в среднем, 458 (S), 330 (F) и 186 (Cl) при диапазонах изменчивости соответственно 95–1178; 37–659 и 43–259.

По данным наблюдений при помощи каскадного импактора на ст. Halley в Антарктике, расположенной на побережье моря Уэдделла, Rankin и Wolff [47] проанализировали зависимость состава атмосферного аэрозоля от размеров частиц. Согласно полученным в течение целого года (с двухнедельными интервалами) результатам, главным компонентом аэрозоля является морская соль, причем около 60% соли поступает за счет источников, расположенных на поверхности морского ледяного покрова («пятна» рассола на поверхности и «морозные цветы»), но не на открытой поверхности океана. Частицы морской соли характеризуются летом пониженной концентрацией хлорида по сравнению с натрием, что согласуется с представлением о том, что при взаимодействии частиц морских солей с малыми газовыми кислотными компонентами происходит потеря HCl, но повышение содержания HCl в больших частицах зимой за счет фракционирования, происходящего при образовании нового морского ледяного покрова.

Концентрация сульфатов неморского солевого происхождения ($nss-SO_4^{2-}$) достигает максимума летом, причем подобные сульфаты сосредоточены преимущественно в мелкодисперсном аэрозоле, что отображает их газофазное происхождение. Распределение метаносульфониной кислоты (MSA) следует за вариациями $nss-SO_4^{2-}$. Максимум содержания MSA достигается летом главным образом за счет субмикронного аэрозоля. По-видимому, основным источником как $nss-SO_4^{2-}$, так и MSA является газофазное окисление диметилсульфида. Отношение массовой концентрации MSA к $nss-SO_4^{2-}$ возрастает с увеличением размеров частиц.

Зимой, как правило, возникает дефицит $nss-SO_4^{2-}$, особенно в случае крупнодисперсного аэрозоля. Из этого следует, что зимой главным источником морских солей служит поверхность морского ледяного покрова, но не открытая поверхность воды. Для аэрозольных нитратов типично формиро-

вание максимума содержания весной и летом, что демонстрирует их связь с частицами морской соли. Распределение содержания нитратов по размерам сходно с соответствующим натрия, а возникают они, вероятно, в результате реакции паров азотной кислоты с частицами морского солевого аэрозоля (этот процесс вносит, по-видимому, и главный вклад в спад содержания хлорида).

Естественно, что сильная пространственно-временная изменчивость свойств аэрозоля диктует необходимость использования не только обычных, но и спутниковых средств наблюдений. Вполне объяснима поэтому длительная история развития спутникового дистанционного аэрозольного зондирования [1–3, 32].

Одним из успешных примеров использования спутникового аэрозольного мониторинга являются наблюдения эволюции сжигания биомассы в региональных и глобальных масштабах. В зависимости от таких факторов, как изменчивость осадков и решение о вырубке лесов, имела место очень сильная межродовая изменчивость масштабов сжигания биомассы, обусловленная как природными (лесные пожары), так и антропогенными причинами. К числу драматических событий принадлежали, например, лесные пожары в Индонезии (1997–1998 гг.) и Мексике (1998 г.), связанные с явлением Эль Ниньо/Южное Колебание (ЭНЮК), которые породили засухи. Хотя подобные события происходят главным образом в тропиках, крупные лесные пожары случались также в средних и высоких широтах северного полушария (такого рода примером могут служить лесные пожары в Западной Европе летом 2003 г.).

Duncan и др. [24] предложили методику для оценки сезонной и межгодовой изменчивости сжигания биомассы, предназначенную для получения соответствующей информации, необходимой для глобальных моделей переноса и трансформации МГК в атмосфере. По данным спутникового радиометра ATSR со сканированием вдоль траектории спутника за 4 года и данным усовершенствованного радиометра очень высокого разрешения AVHRR за 1–2 года получена информация о годовом ходе числа лесных пожаров. Были рассчитаны значения аэрозольного индекса AI с использованием результатов наблюдений при помощи спектрометра TOMS для картирования общего содержания озона, которые служат для оценки условий сжигания биомассы в шести регионах: Юго-Восточная Азия, Индонезия и Малайзия, Бразилия, Центральная Америка и Мексика, Канада и Аляска, азиатская часть России.

Обсуждаемая методика применена для анализа осредненного годового хода и межгодовой изменчивости обусловленных сжиганием биомассы выбросов окиси углерода. Полученные результаты не выявили какого-либо долговременного тренда выбросов за два десятилетия (1979–2000 гг.), но обнаружили наличие отчетливой межгодовой изменчивости. Годовой объем выбросов CO в упомянутых регионах изменяется от 20 (азиатская часть

России и Китай) до 170 Тг/год (Индонезия и Малайзия в 1997–1998 гг.) при средних глобальных суммарных выбросах, равных 437 Тг/год (ежегодные значения варьировали от 429 до 565 Тг/год).

Wang и др. [53] выполнили анализ совмещенных (в пространстве и во времени) результатов восстановления АОТ атмосферы на длине волны 670 нм, включающий использование следующих источников информации: 1) наземные наблюдения на сети 12 станций AERONET при помощи солнечных фотометров; 2) 6-канальный солнечный фотометр AATS-6 на борту самолета-лаборатории C-130; 3) 14-канальный самолетный (Twin Otter) солнечный фотометр AATS-14; 4) корабельный солнечный фотометр (НИС «Ronald H. Brown»); 5) сканирующий радиометр для видимой и инфракрасной областей спектра (VISSR), установленный на геостационарном спутнике GMS-5. Помимо этого, использовались данные наземных наблюдений микроструктуры аэрозоля на станции Gosan (о-в Чежу, Южная Корея). Главное внимание было уделено анализу данных GMS-5 через каждые полчаса за 30 сут (апрель 2001 г.) и сравнению данных наблюдений с результатами расчетов АОТ на основе использования методики DISORT.

Обсуждаемые результаты получены в период осуществления программы полевого наблюдательного эксперимента ACE-Asia по изучению характеристик аэрозоля и относятся к западному региону Тихого океана (20°–45° с.ш.; 110°–150° в.д.). Сравнение спутниковых и наземных (AERONET) данных по АОТ выявило хорошее согласие при значениях коэффициента линейной корреляции R для четырех наземных пунктов, равных 0,86; 0,85; 0,86 и 0,87. Такое же хорошее согласие получилось и при сравнении с самолетными данными ($R = 0,87$) и с судовыми данными ($R = 0,98$). Средняя погрешность восстановления АОТ составила около 0,08 при максимальной величине 0,15, что связано главным образом с погрешностями калибровки ($\pm 0,05$), неопределенностями задания альbedo подстилающей поверхности (от $\pm 0,01$ до $\pm 0,03$) и мнимой части комплексного показателя преломления ($\pm 0,05$). Анализ среднемесячного распределения АОТ (по данным GMS-5) выявил наличие дальнего переноса аэрозоля при максимальных значениях АОТ вблизи побережья Азии и минимальных — над открытым океаном. Важное преимущество данных геостационарных спутников состоит в том, что они позволяют получить информацию о дневном ходе АОТ.

Включение в состав комплекса научной аппаратуры спутников «Terra» и «Aqua» видеоспектро-радиометра умеренного разрешения MODIS (7-канальный сканирующий радиометр для диапазона длин волн 470–2100 нм обеспечивает пространственное разрешение в пределах 250–500 м) открыло новые возможности исследований атмосферного аэрозоля. Данные MODIS позволяют осуществлять восстановление не только общего содержания аэрозоля, но и доли его мелкодисперсной фракции. Перспективность аппаратуры MODIS определяется

также широкими возможностями мониторинга загрязнений атмосферы в локальных, региональных и глобальных масштабах. Подобные возможности проиллюстрированы Chu и др. [19] результатами обработки данных, относящихся к регионам северной Италии, Лос-Анджелеса и Пекина, с целью восстановления аэрозольной оптической толщины τ_a , имея в виду анализ условий локальных и региональных загрязнений атмосферы с учетом погрешностей восстановления, равных $\Delta\tau_a = \pm(0,05 \pm 0,2)\tau_a$.

В условиях застойной атмосферы (и, соответственно, накопления аэрозоля) возможно достижение $\tau_a > 1$ (на длине волны 550 нм) до наступления удаления аэрозоля из атмосферы под воздействием ветра или влажного осаждения. Согласно результатам наблюдений в Италии корреляция между среднесуточными значениями τ_a по данным AERONET (солнечных фотометров) и массовой концентрацией PM-10 частиц диаметром больше 10 мкм достигала 0,82. Определение PM по данным спутниковых наблюдений возможно лишь при наличии детальной информации о вертикальном профиле концентрации аэрозоля. Перспективы получения подобной информации (и, следовательно, данных о концентрации аэрозоля вблизи подстилающей поверхности) связаны с использованием результатов спутникового лидарного зондирования (аппаратуры лазерного высотомера GLAS, запущенной в 2003 г., и «облачно-аэрозольного» лидара CALIPSO, запуск которого был запланирован на 2004 г.).

Для сравнения сведений об общем содержании аэрозоля в двух различных регионах земного шара Chu и др. [19] проанализировали данные, относящиеся к двум наиболее населенным регионам (Восточный Китай и Индия) и к двум наиболее промышленно развитым регионам (восточная часть США/Канады и Западная Европа). Рассмотрение временных рядов средних месячных значений τ_a за период с июля 2000 г. по май 2001 г. выявило наличие сильного годового хода с максимумами весной/летом и минимумами зимой. Существование четкого различия между данными для восточной части США/Канады и Западной Европы и, с другой стороны, для Восточного Китая и Индии определяется тем фактом, что во втором случае значения τ_a оказались от 50% до 2–3 раз больше, чем в первом случае. Наблюдавшееся возрастание общего содержания аэрозоля было обусловлено дымом от лесных пожаров в штатах Монтана/Айдахо (США), претерпевшими дальний перенос в регион восточной части США в конце августа 2000 г., а также дальним переносом пылевого аэрозоля в Восточный Китай из пустынь Таклимакан и Гоби и дымового аэрозоля из Юго-Восточной Азии и с юга Китая в феврале–апреле 2001 г.

Подводя итоги анализа данных наблюдений свойств атмосферного аэрозоля, следует подчеркнуть ту очевидную истину, что необходимы разработки и реализация глобальной системы наблюдений с использованием как обычных, так и спутниковых средств наблюдений, а также регулярное осуществление скоординированной совокупности

проблемно-ориентированных комплексных полевых наблюдательных экспериментов.

Процессы образования (нуклеации) аэрозоля

Многообразие процессов образования аэрозоля определяет необходимость ограничения анализа этих процессов рассмотрением наиболее существенных и изученных процессов [3, 35, 36, 39, 41, 46]. Центральной является в этом контексте проблема нуклеации частиц. K ulm al a [36] справедливо отметил, что многое в изучении процессов нуклеации остается неясным с точки зрения обоснования приоритетов, но бесспорные успехи достигнуты за последние годы в разработке методик измерений, которые позволили проследить за развитием процессов нуклеации и роста частиц во всех диапазонах их размеров, начиная от наночастиц, причем не только у земной поверхности, но и в свободной атмосфере, включая нижнюю стратосферу. Новые важные данные о неожиданно высокой концентрации ультрамелких частиц в верхней тропосфере и нижней стратосфере получили Lee и др. [39]. Они обнаружили особую роль в этом случае ионно-индуцированной нуклеации как глобально проявляющегося механизма образования частиц аэрозоля. Особое внимание привлекли за последние годы исследования процессов нуклеации в прибрежных регионах.

Выполненные ранее исследования выявили наличие в различных регионах земного шара (особенно это относится к бореальным лесам и прибрежным полосам морского дна, обнаженным во время отлива) биогенных источников образования аэрозоля в пограничном слое атмосферы. По-видимому, в прибрежных полосах морей и океанов, как правило, регулярно возникают события нуклеации. Это относится, по крайней мере, к Западной Европе, где возникновение нуклеационного аэрозоля (НА) часто наблюдалось на шотландских, ирландских, английских и французских побережьях. Образование НА зарегистрировано и в южном полушарии вблизи береговой линии Антарктики и в Тасмании.

Наблюдения повышенной концентрации частиц аэрозоля в прибрежном ПСА начались еще в 1880-х гг., когда Д. Айткен обнаружил значительное возрастание счетной концентрации аэрозоля вблизи западного побережья Шотландии с $200\text{--}300\text{ см}^{-3}$ до более 10^4 см^{-3} . Современные исследования обнаружили регулярности эпизодов повышенной концентрации НА, достигавшей иногда 10^6 см^{-3} и более при преобладавших размерах частиц в интервале $0,003\text{--}0,01\text{ нм}$. В период 1998–1999 гг. на станции исследований атмосферы в Мэйс Хэд (западное побережье Ирландии) была осуществлена полевая наблюдательная программа PARFORCE, цель которой состояла в детальном изучении образования новых частиц аэрозоля в прибрежном ПСА. В течение двух лет производились непрерывные измерения образования новых

частиц аэрозоля, причем во время двух специальных периодов наблюдений в сентябре 1998 и в июне 1999 гг. выполнялись программы существенно расширенных наблюдений.

Осуществленный O'Dowd и др. [44] анализ полученных результатов показал, что события образования новых частиц имели место примерно в 90% всех дней наблюдений, в течение года и во всех наблюдавшихся воздушных массах. Как правило, продолжительность эпизодов образования НА составляла несколько часов, но иногда превосходила 8 ч. Подобные эпизоды возникали днем во время отлива, когда происходило обнажение прибрежной полосы дна. В это время счетная концентрация аэрозоля часто превышала 10^6 см^{-3} (в условиях чистой безоблачной атмосферы), а скорость образования частиц диаметром $d > 0,003\text{ мкм}$ варьировала в пределах $10^4\text{--}10^5\text{ см}^{-3}\cdot\text{с}^{-1}$, когда концентрация паров серной кислоты в ПСА была больше $2\cdot 10^6\text{ молекул/см}^3$. При этом корреляция между максимальной концентрацией H_2SO_4 , возникновением отливов и событиями нуклеации отсутствовала.

Согласно теории тройной нуклеации для системы $\text{H}_2\text{SO}_4\text{--H}_2\text{O--NH}_3$ скорость нуклеации вполне может превышать $10^6\text{ см}^{-3}\cdot\text{с}^{-1}$ при упомянутой концентрации H_2SO_4 . Однако из расчетов скорости роста размеров частиц следует, что подобный уровень концентрации H_2SO_4 недостаточен для обеспечения роста размеров первоначально образовавшихся частиц диаметром $0,001\text{ мкм}$ до обнаруживаемых размеров около $0,003\text{ мкм}$. Анализ гигроскопически обусловленного роста частиц до размера $0,008\text{ мкм}$ показал, что в этом случае частицы должны содержать некоторое количество компонентов, обладающих значительно меньшей растворимостью, чем сульфатный аэрозоль.

Согласно данным о НА при отсутствии выбросов летучих органических соединений прибрежной биотой, но при наличии интенсивных биогенных выбросов галогенуглеродных соединений и при трассерном содержании йода во вновь образовавшихся частицах диаметром $0,007\text{ мкм}$ наиболее вероятным компонентом, благоприятствующим росту новых частиц аэрозоля, является окись йода (это предположение подтверждается результатами лабораторных экспериментов). Остается, однако, открытым вопрос о том, осуществляется ли нуклеация как «самонуклеация» соединений йода и производных галогенуглеродных соединений или сначала возникают устойчивые кластеры посредством тройной нуклеации в системе « $\text{H}_2\text{SO}_4\text{--H}_2\text{O--NH}_3$ » с последующим конденсационным ростом частиц до обнаруживаемых размеров путем конденсации соединений йода.

Из данных самолетных наблюдений следует, что нуклеация происходит вдоль всей береговой линии и прибрежный шлейф биогенного аэрозоля может простираться на многие сотни километров от источника первичного аэрозоля. В процессе эволюции прибрежного шлейфа наблюдается рост размеров частиц аэрозоля до $0,1\text{ мкм}$, когда существенно проявляется оптическая активность аэрозоля.

Оценки возрастания счетной концентрации облачных ядер конденсации свидетельствуют о возможности ее увеличения, достигающего 100%. Если учесть вероятность образования новых частиц аэрозоля за счет биогенных источников, расположенных по меньшей мере вдоль западного побережья Европы, а также и вдоль других побережий, то становится ясным, что возникающий в полосе побережий аэрозоль вносит значительный вклад в формирование природного фоновго аэрозоля. Хотя результаты, полученные в ходе осуществления программы PARFORCE, имеют важное значение, они все еще не позволяют раскрыть реальные механизмы нуклеации и роста частиц аэрозоля в прибрежных зонах.

Одним из наиболее эффективных средств изучения образования в атмосфере новых частиц аэрозоля являются многокаскадные счетчики конденсируемых частиц (CPC), обладающие различными порогами обнаружения. Так, например, аппаратура TST-3025 позволяет измерять суммарную счетную концентрацию частиц NS диаметром больше 0,003 мкм (при относительной влажности 50%), тогда как при использовании аппаратуры TST-3010 порог обнаружения составляет 0,01 мкм (счетная концентрация N_{10}). Разность значений N_3-N_{10} определяет счетную концентрацию частиц НА, имеющих диаметр в пределах 0,003–0,01 мкм. Малая инерционность аппаратуры (порядка 1 Гц) обеспечивает возможности слежения за быстрыми изменениями свойств аэрозоля, а также различения частиц НА, мод Айткена и аккумуляционной.

Намерг и др. [26] обсудили результаты наблюдений при помощи четырех счетчиков для измерений N_3 , размещенных на расстоянии около 100 м друг от друга в углах треугольника (два счетчика на высоте 3 м, а два других на высотах 10 и 20 м). Счетчики, находящиеся на высотах 10 и 20 м, обеспечивали пороги измерения, равные 0,005 и 0,01 мкм. Анализ результатов, полученных в периоды событий образования новых частиц, показал, что максимальная счетная концентрация частиц достигала $1,8 \cdot 10^5 \text{ см}^{-3}$. Осуществление полевой калибровки аппаратуры привело к выводу, что при счетной концентрации выше 10^5 см^{-3} имеет место систематическое занижение концентрации, измеряемой при помощи счетчиков CPC, по сравнению с действительной концентрацией в 5–6 раз. Сравнение дополнительных данных о суммарной счетной концентрации счетчика и данных, полученных с использованием сверхчувствительного дифференциального анализатора подвижности частиц (DMPS), подтвердило, что во время эпизодов «вспышек» образования новых частиц их счетная концентрация может достигать $1,2 \cdot 10^6 \text{ см}^{-3}$. Оценки скорости образования частиц N_3 дали значения больше $10^5 \text{ см}^{-3} \cdot \text{с}^{-1}$. Анализ пространственной неоднородности распределения концентрации выявил существование многочисленных микрошлейфов повышенной концентрации с пространственными масштабами порядка 10–100 м. Вдали от прибрежного источника НА эти микрошлейфы сливались

в единый прибрежный шлейф нуклеационного аэрозоля.

Непосредственное воздействие атмосферного аэрозоля на перенос излучения в атмосфере и косвенное влияние через изменение микрофизических и радиационных свойств облаков в результате их перемешивания с аэрозолем принадлежат к числу важных климатообразующих факторов. В контексте проблемы косвенного влияния аэрозоля на радиационное возмущающее воздействие критически важную роль играет адекватное понимание таких процессов взаимодействия аэрозоля и облаков, которые связаны с коагуляцией, конденсацией, химическими реакциями в водной фазе и осаждением, порождающими изменения микроструктуры как аэрозоля, так и облаков. Особое место занимают в этой связи исследования образования новых частиц аэрозоля в условиях незагрязненной атмосферы. В этом контексте O'Dowd и др. [45] обсудили результаты изучения в рамках осуществленной в период с сентября 1998 г. по июнь 1999 г. полевой наблюдательной программы PARFORCE формирования нуклеационной моды аэрозоля в атмосфере на побережье м. Хэд (Ирландия).

События нуклеации возникали почти каждый день при наличии низкого прилива и инсоляции. Согласно данным, полученным в сентябре 1998 г., средняя счетная концентрация частиц нуклеационной моды составляла 8600 см^{-3} (2200 см^{-3}) в условиях чистой (загрязненной) атмосферы, тогда как в июне 1999 г. соответствующие значения достигали 27000 см^{-3} (3350 см^{-3}). В периоды наиболее интенсивного образования новых частиц нуклеационной моды, продолжавшиеся 2–8 ч (в среднем 4,5 ч) уровень счетной концентрации поднимался до $5 \cdot 10^5 - 1 \cdot 10^6 \text{ см}^{-3}$. Мощность источников частиц обнаруживала размер (диаметром более 0,003 мкм) варьировала в пределах $10^4 - 10^6 \text{ см}^{-3} \cdot \text{с}^{-1}$, а первоначальная скорость роста размеров новых частиц (в зоне прилива) изменялась от 10^{-4} до $3,5 \cdot 10^{-4} \text{ мкм/с}$. Возникавшие частицы размером 0,008 мкм претерпевали затем гигроскопически обусловленный рост при факторе роста, равном 1,0–1,1, когда уровень относительной влажности был равен 90%. Малые значения фактора роста свидетельствуют о наличии конденсируемого газообразного компонента с очень низкой растворимостью. Остается неясным, однако, сопровождается ли существование подобного газообразного компонента процессом однородной нуклеации.

Измеренные значения концентрации паров серной кислоты и аммиака указывают на то, что вероятным является образование термодинамически устойчивых кластеров сульфата посредством тройной нуклеации. В условиях чистой атмосферы значительный уровень образования частиц ($> 10^5 \text{ см}^{-3}$) наблюдался при концентрации газообразной серной кислоты, составлявшей всего $2 \cdot 10^6 \text{ молекул/см}^3$, а в случае загрязненной атмосферы – при $1,2 \cdot 10^8 \text{ молекул/см}^3$. Наблюдавшийся уровень концентрации паров серной кислоты был достаточным для образования частиц нуклеационной моды,

но слишком низким для возникновения новых частиц измеряемых размеров. Для формирования частиц наблюдавшихся размеров важно наличие дополнительного биогенного источника МГК, обладающего низкой растворимостью. Наиболее вероятным МГК такого рода является окись йода, образующаяся в результате фотодиссоциации CH_2I_2 .

Необходимы дальнейшие исследования для выяснения того, является ли наблюдаемая концентрация паров H_2SO_4 достаточной для образования необходимого количества устойчивых кластеров, или данные наблюдений образования частиц на м. Хэд можно интерпретировать только как следствие процессов нуклеации и конденсационного роста окиси йода.

Согласно теории нуклеации газообразная серная кислота является непосредственным предшественником и главным источником субмикронных частиц сульфатного атмосферного аэрозоля. Подобные частицы диаметром 0,1–1 мкм вносят существенный вклад в ослабление поступления солнечной радиации к земной поверхности как непосредственно, так и косвенно — через обусловленное аэрозолем повышение альбеда облаков. В связи с нерешенностью многих вопросов, связанных с образованием *in situ* новых частиц аэрозоля путем газофазной трансформации H_2SO_4 и недостаточной надежностью соответствующих оценок изменений аэрозольно обусловленного радиационного возмущающего воздействия, Berresheim и др. [15] предприняли измерения концентрации в морском пограничном слое атмосферы (МПСА) газообразной серной кислоты, метаносульфоничной кислоты и радикалов гидроксила (ОН) с помощью химического ионизационного масс-спектрометра (CIMS).

Наблюдения выполнены в рамках полевого наблюдательного эксперимента PARFORCE, осуществленного на побережье м. Хэд (Ирландия) в июле 1999 г. Средние измеренные значения концентрации перечисленных компонентов в морской фоновой атмосфере составили 1,5; 1,2 и $0,12 \cdot 10^6 \text{ см}^{-3}$ соответственно. Наличие в МПСА H_2SO_4 было зарегистрировано также ночью, что отображает наличие нефотохимических источников H_2SO_4 . Обнаружена высокая корреляция между значениями концентрации ОН и H_2SO_4 в условиях чистого морского воздуха, которую можно объяснить наличием быстрого локального образования H_2SO_4 из ее газовых предшественников. Результаты вычислений стационарного уровня концентрации H_2SO_4 согласуются с данными наблюдений, если предположить, что либо коэффициент «слипания» молекул H_2SO_4 является низким (0,02–0,03), либо существует дополнительный источник H_2SO_4 , помимо реакции $\text{SO}_2 + \text{OH}$.

Как правило, изменения концентрации H_2SO_4 в МПСА не обнаруживают корреляции ни с циклом приливов, ни с концентрацией ультрамелких частиц (UFP). Однако в отдельные дни наблюдалась антикорреляция между уровнями концентрации H_2SO_4 и UFP, которая отображала наличие вклада H_2SO_4 в образование новых частиц аэрозоля и(или)

в увеличение их размеров. В случае газообразного MSA имела место отрицательная корреляция с температурой точки росы, которую можно интерпретировать как свидетельство высокой чувствительности равновесного распределения этого соединения между газообразной фазой и аэрозолем.

Анализ обсуждаемых результатов наблюдений порождает серьезные сомнения относительно возможности использования MSA как консервативного трассера, применяемого для оценки относительного вклада образования H_2SO_4 за счет окисления диметилсульфида (DMS). Как правило, отношение концентраций $\text{MSA}/\text{H}_2\text{SO}_4$ варьировало в морском воздухе у земной поверхности в пределах 0,06–1,0. Рассмотрение измеренных вертикальных профилей концентрации ОН обнаружило наличие значительных отклонений от одновременных вариаций частоты фотолиза озона. Данные наблюдений выявили также существование достигающих на один порядок величины более низких значений концентрации ОН, чем полученные с использованием простой фотохимической боксовой модели. Подобные расхождения были наиболее значительными в периоды событий образования новых частиц, происходящих в солнечные дни вблизи полудня при низком приливе. Полученные результаты позволяют считать, что как окислительная способность, так и процесс образования новых частиц в прибрежном МПСА существенно зависят от хода химических реакций с участием не известных пока что соединений.

Разработка новых видов высокочувствительной и малоинерционной аппаратуры для изучения свойств нуклеационного аэрозоля открыла новые возможности изучения детальной динамики свойств подобного аэрозоля. Väkevä и др. [52] обсудили результаты измерений характеристик НА, выполненных с использованием ультрачувствительного анализатора подвижности UF-TDMA и счетчика облачных ядер конденсации (ОЯК) в рамках программы PARFORCE. Полученные результаты включают информацию о химическом составе и состоянии перемешивания частиц аэрозоля. Данные UF-TDMA были использованы для оценки гигроскопического роста частиц, имеющих «сухой» диаметр в пределах 0,008–0,02 мкм, при относительной влажности 90%. Данные счетчика ОЯК служили источником информации об активации частиц НА в условиях пересыщенной атмосферы (при «сухом» диаметре от 0,015 до 0,15 мкм).

Анализ результатов наблюдений привел к выводу, что во время эпизодов образования новых частиц НА в чистых морских воздушных массах вновь образующимся частицам НА (0,008–0,01 мкм) соответствовали малые значения фактора роста (порядка 1,0–1,1), что было обусловлено низкой растворимостью частиц. На этом основании можно сделать вывод, что частицы нуклеационной моды состоят из нерастворимых или слабо растворимых компонентов при вероятном наличии небольшой растворимой части. Однако результаты наблюдений частиц НА за пределами эпизодов образования новых частиц привели к существенно более высоким

значениям фактора роста (1,3–1,4). Судя по данным наблюдений микроструктуры аэрозоля, частицы размером 0,02 мкм принадлежали моде Айткена и обладали гигроскопическими свойствами, сходными со свойствами, соответствующими некоторым солевым частицам (при факторе роста в пределах 1,4–1,5). Для всех исследованных с помощью аппаратуры UF-TDMA частиц (0,008, 0,01 и 0,02 мкм) фактор роста в условиях чистой атмосферы был близким к соответствующему $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$. Согласно полученным результатам связь между частицами моды Айткена и НА отсутствовала, что отображает различное происхождение этих частиц.

Определение скорости гигроскопического роста размеров частиц аэрозоля за счет конденсации водяного пара имеет важное значение по ряду причин, в частности с точки зрения воздействия облачных ядер конденсации на образование облачных капель. Предполагается, что сильным ограничителем конденсационного роста может служить наличие органической пленки на поверхности частиц аэрозоля. В этой связи Chuang [20] сделал обзор разработок, посвященных изучению влияния пленок на перенос воды, и предпринял лабораторные измерения масштаба времени для конденсационного роста частиц атмосферного аэрозоля. Измерения осуществлены в г. Мехико в периоды влажного (25–27 сентября 2000 г.) и сухого (16–17 ноября 2000 г.) сезонов для частиц диаметром 0,05 и 0,1 мкм. Полученные результаты указывают на то, что для большей части исследованных частиц время жизни $\tau_g < 2-3$ с. Однако очень небольшому числу частиц (от 0 до 2%) соответствуют более значительные величины τ_g . Подобные немногочисленные частицы характеризуются значениями коэффициента аккомодации в пределах $(1-4) \cdot 10^{-5}$, которые являются минимальными для исследованного в лабораторных условиях аэрозоля. Анализ данных наблюдений обнаружил наличие сильной зависимости встречаемости такого рода частиц от времени года и времени суток. Высказано предположение, что подобные частицы могут встречаться более часто, а это имеет важное значение с точки зрения оценок косвенного воздействия аэрозоля на климат.

За последнее время большое внимание привлекли исследования процессов нуклеации, т.е. образования новых наночастиц аэрозоля размером более 0,003 мкм и последующего роста до размеров порядка 0,1 мкм за 1–2 сут в пограничном слое атмосферы. Как уже отмечалось, наиболее вероятными механизмами нуклеации являются тройная с участием H_2O , NH_3 и H_2SO_4 , а также ионно-индуцированная нуклеация. Нуклеация происходит в атмосфере почти везде (по крайней мере днем) и приводит к формированию резервуара термодинамически устойчивых кластеров молекул (TSC) диаметром более 0,003 мкм, которые, при определенных условиях, увеличиваются в размерах до порога обнаружения. До сих пор остается, однако, открытым вопрос о том, какой малый газовый компонент ответствен за рост TSC. Ранее была обнаружена высокая корреляция между интенсивностью

коротковолновой солнечной радиации в интервале длин волн 300–340 нм и счетной концентрацией частиц нуклеационной моды размером 0,003–0,01 мкм. Радиация в области длин волн короче 330 нм порождает образование гидроксила OH через посредство возникновения возбужденных атомов кислорода и сопровождающего этот процесс появления конденсируемых паров. Именно в этом контексте была продемонстрирована необходимость учета реакций монотерпенов с O_3 , OH и NO_3 как механизмов роста частиц.

Воу и др. [16] выполнили анализ данных наблюдений, сделанных на станции Нуутиälä (Финляндия) в 2000–2001 гг. в рамках программы SMEAR II исследований взаимодействия атмосферы и лесных экосистем. Эти исследования включали два раздела: 1) изучение трендов и корреляционных связей между счетной концентрацией частиц диаметром $d_p = 0,003-0,006$ мкм и различными параметрами; 2) расчеты разнообразных характеристик аэрозоля. Результатом разработок явилось, в частности, обнаружение корреляции между интенсивностью солнечной радиации и уровнем конденсационного стока (в суточном ходе этих величин) со счетной концентрацией наночастиц нуклеационной моды. Имеет место также корреляция между среднесуточными (09–15 ч местного времени) значениями упомянутых параметров (по данным за два рассматриваемых года) и концентрацией мелких частиц. В случаях потока частиц, изменчивости скорости ветра с высотой и концентрации озона корреляционные связи с концентрацией частиц проявляются очень слабо в отдельные дни, но эти величины характеризуются общими с солнечной радиацией и конденсационным стоком особенностями годового хода. Расчеты изменчивости характеристик аэрозоля при задании наблюдавшихся значений концентрации монотерпенов и сернистого газа, а также сравнения с данными наблюдений счетной концентрации частиц привели к выводу, что учет продуктов окисления монотерпенов (карбокислотных дикислот, включая, в частности, пиничную кислоту) способен объяснить 8–50% наблюдаемого роста частиц аэрозоля. Оценки счетной концентрации частиц диаметром $d_p = 0,001-0,003$ мкм привели к выводу, что действительная концентрация подобных частиц может быть в 2–3 раза больше, чем наблюдаемая концентрация частиц $d_p = 0,003-0,006$ мкм.

Сложность газофазных процессов образования аэрозоля и несовершенство методик измерений являются главными причинами неадекватности существующих представлений об этих процессах. Все еще не разработано, например, достаточно убедительной теории и отсутствует необходимая термодинамическая информация для объяснения процесса многокомпонентной нуклеации. Что касается измерений, то проблема состоит в том, что продуктом нуклеации являются частицы диаметром порядка 0,001 мкм, тогда как современная аппаратура способна обнаруживать лишь частицы диаметром около 0,003 мкм и более. Поэтому события нуклеации

могут быть зарегистрированы только спустя некоторое время после образования частиц. Существование корреляции между концентрациями паров серной кислоты и наночастиц диаметром 0,003–0,004 мкм позволило предположить в качестве возможного механизма образования частиц аэрозоля бинарную однородную нуклеацию $\text{H}_2\text{SO}_4\text{--H}_2\text{O}$. Однако наблюдавшееся образование частиц оказалось невозможным воспроизвести на основе классической теории бинарной нуклеации, что побудило предложить гипотезу тройной нуклеации. Лабораторные эксперименты показали, что добавление NH_3 к системе « $\text{H}_2\text{SO}_4\text{--H}_2\text{O}$ » обуславливает усиление скорости нуклеации.

В качестве одного из вариантов Weber и др. [54] предложили механизм нуклеации, регулируемой ионами. Важное значение имели исследования процессов нуклеации в условиях городской окружающей среды. Одна из важных задач полевого наблюдательного эксперимента TRACE-P, осуществленного весной 2001 г., состояла в изучении образования новых частиц в регионе шлейфа загрязнений, распространявшегося с территории Азиатского континента на акваторию северо-западного сектора Тихого океана, с использованием данных самолетных измерений. Наблюдения, выполненные в диапазоне широт 20–45° с.ш., привели к обнаружению высокого уровня концентрации частиц диаметром 0,003–0,004 мкм в наиболее загрязненной части шлейфа как внутри его, так и вблизи верхней границы. Анализ результатов наблюдений во время двух полетов привел к выводу, что счетная концентрация частиц диаметром 0,003–0,004 мкм коррелировала, как правило, с концентрацией паровой серной кислоты. Значения концентрации H_2SO_4 и удельной площади поверхности частиц в области их образования составляли соответственно $7 \cdot 10^6 \text{ см}^{-3}$ и $750 \text{ мкм}^2/\text{см}^3$. В отличие от антропогенных шлейфов, в условиях чистой (фоновой) атмосферы наблюдалась лишь незначительная счетная концентрация частиц диаметром 0,003–0,004 мкм. Подобная ситуация имела место даже в шлейфах вулканических выбросов, где наблюдалась наиболее высокая концентрация H_2SO_4 ($> 10^8 \text{ см}^{-3}$). По-видимому, главным фактором нуклеации была повышенная (в пределах 2–7 млрд⁻¹) концентрация SO_2 и, возможно, другие газовые компоненты.

Образование в атмосфере новых частиц аэрозоля является предметом серьезного внимания в области современных наук об атмосфере. Связанные с этим процессы порождают возрастание счетной концентрации частиц субмикронного аэрозоля, что имеет важное значение с точки зрения влияния на климат и на здоровье человека. В этом контексте Komppu и др. [33] обсудили результаты продолжавшихся с июня 2000 по август 2002 г. непрерывных наблюдений характеристик аэрозоля в Национальном Парке Pallas-Ounastunturi, расположенном на севере Финляндии, где отсутствуют какие-либо значительные источники загрязнений атмосферы. Наблюдения были сделаны в двух точках, распо-

ложенных на различной высоте над уровнем моря (340 и 560 м), причем одна из них находилась в лесу, а другая (верхняя) – на вершине холма над лесом. Измерялась микроструктура аэрозоля в диапазоне размеров частиц 0,007–0,5 мкм. В 2001 г. средние значения счетной концентрации аэрозоля составили 700 см^{-3} (верхняя точка) и 870 см^{-3} (нижняя точка). Средние суточные значения варьировали в пределах 40–3500 см^{-3} .

В обеих точках наблюдался отчетливый и одинаковый годовой ход суммарной счетной концентрации аэрозоля с максимумом весной и летом и минимумом зимой. Идентичным для обеих точек оказался и суточный ход суммарной концентрации. Анализ данных о концентрации для отдельных мод аэрозоля привел к выводу, что в течение всего периода наблюдений произошло 65 событий образования новых частиц. Чаще всего эти события возникали в апреле и мае. Образование новых частиц начиналось в течение интервала времени 08:25–15:50 (UTC + 2 ч), а расчетное время процесса нуклеации (образования частиц аэрозоля размером 0,001 мкм) изменялось в пределах 04:50–14:20 ч. Оценки скорости роста размеров частиц аэрозоля дали значения в пределах 0,0014–0,0082 мкм/ч, а скорость образования частиц размером 0,007 мкм варьировала в пределах 0,06–0,40 частиц/($\text{см}^3 \cdot \text{с}$). Различия времени начала образования новых частиц в двух рассматриваемых точках не превосходили 30 мин и не могли быть объяснены влиянием скорости и направления ветра. Одна из возможных причин – обусловленные турбулентностью вертикальные перемещения воздушных масс. Что касается преобладающего направления ветра, то в дни образования новых частиц оно изменялось в пределах от западного до северного, свидетельствуя о полярном или арктическом происхождении воздушных масс.

Со времени начала промышленной революции произошло существенное возрастание концентрации в атмосфере антропогенного аэрозоля различных типов, включая прежде всего частицы аэрозоля в субмикронном диапазоне размеров, состоящие из сульфатов, нитратов и вторичных органических соединений. Подобный антропогенный аэрозоль оказывает существенное воздействие на формирование климата, кислотных осадков, качества воздуха и здоровья человека. За последние годы особое внимание привлекали процессы формирования сульфатного аэрозоля, особенно его субмикронной фракции. Хотя события образования новых частиц в атмосфере *in situ* наблюдаются часто, микрофизические механизмы нуклеации остаются малоизученными. Как уже отмечалось, чаще всего предполагалось, что главным является механизм бинарной нуклеации молекул серной кислоты и воды. Однако данные полевых наблюдений указывают на то, что скорость нуклеации нередко превосходит вычисленную на основе принятия подобной гипотезы, а также с учетом данных лабораторных измерений. Причиной подобных расхождений могло быть участие в процессе нуклеации третьего компонента, которым, вероятнее всего, является аммиак.

С целью проверки проведено обоснованно-численное моделирование процесса нуклеации с использованием новой схемы параметризации бинарной нуклеации воды и серной кислоты и тройной нуклеации с участием этих двух компонентов и аммиака. Сравнение с результатами, полученными на основе ранее разработанной методики (параметризации, в сочетании с данными о динамике аэрозоля), привело к выводу, что новые данные о суммарной счетной концентрации аэрозоля отображают различие между новыми и старыми данными по скорости нуклеации, достигающее одного-двух порядков величины. Сравнение схем параметризации бинарной и тройной нуклеации показало, что при температуре выше 240 К вклад тройной нуклеации в образование новых частиц превышает вклад бинарной нуклеации на десять порядков величины, т.е. в большинстве случаев процесс тройной нуклеации оказывается в нижней тропосфере доминирующим.

Korhonen и др. [34] выполнили анализ функционирования моделей динамики аэрозоля с учетом различной «секционной» микроструктуры по сравнению с моделью, описывающей процессы на молекулярном уровне. Подобный анализ привел к выводу, что с точки зрения результатов вычислений суммарной счетной концентрации аэрозоля имеет место сходимость результатов численного моделирования на основе учета микроструктуры к «молекулярным» вычислениям при увеличении детальности описания микроструктуры. При наличии сильного конденсационного роста проявляется, однако, вычислительная проблема «численной диффузии». Как правило, функционирование «микрофизического» («секционного») подхода не было адекватным при отсутствии достаточной детальности описания микроструктуры. Очень хорошие результаты дало применение модели многомодального монодисперсного аэрозоля (по крайней мере, при вычислении суммарной счетной концентрации), если моды фоновых аэрозолей обеспечивали достоверное воспроизведение конденсационных стоков для соответствующих логнормальных мод. На основании полученных результатов можно считать, что многомодальная монодисперсная модель может составить основу параметризации свойств аэрозоля в крупномасштабных численных моделях атмосферы.

Несмотря на осуществленные за последние десятилетия интенсивные исследования первоначальных процессов образования атмосферного аэрозоля, до сих пор остается плохо изученным проявляющийся повсеместно механизм формирования ультрамелких частиц аэрозоля. Обычно предполагается, что главную роль играет бинарная однородная нуклеация (BHN) H_2SO_4 и H_2O . Подобное предположение оказалось, однако, неадекватным, что стимулировало рассмотрение тройной однородной нуклеации (THN) в системе « H_2SO_4 – H_2O – NH_3 », а также нуклеации, регулируемой ионами (IMN), в системе « H_2SO_4 – H_2O –ионы». Согласно теории THN сильное возрастание скорости нуклеации связано с обусловленной аммиаком стабилизацией за-

родышей аэрозоля за счет уменьшения их размеров. Из теории IMN следует, что вокруг находящихся в атмосфере ионов образуются заряженные молекулярные кластеры, которые значительно более устойчивы и могут увеличиваться в размерах гораздо быстрее, чем нейтральные кластеры и, таким образом, могут достигать устойчивых наблюдаемых размеров. Одно из главных различий между теорией IMN и классической теорией нуклеации состоит в том, что при заданной концентрации $[\text{H}_2\text{SO}_4]$ теория IMN позволяет воспроизвести кинетику эволюции кластеров, начиная со стадии мономеров, тогда как классическая теория предполагает наличие мгновенной псевдоустойчивой концентрации эмбрионов аэрозоля (обоснованность подобного предположения вызывает сомнения). Хотя обе упомянутые теории (TNN и IMN) основаны на учете новых компонентов, в процессе нуклеации (NH_3 и ионов) ключевую роль играет по-прежнему H_2SO_4 .

На основе использования модели кинетики процессов Yu [55] получил оценки времени t_0 , необходимого для достижения псевдоустойчивого состояния нуклеации, когда происходит внезапное возрастание концентрации паров H_2SO_4 до определенного фиксированного уровня. Показано, что t_0 приближенно пропорционально H_2SO_4 . Используемое в классической теории предположение о мгновенном обеспечении псевдоустойчивой концентрации кластеров неприемлемо, если t_0 превосходит промежуток времени, необходимый для достижения постоянства $[\text{H}_2\text{SO}_4]$. В рассмотренных условиях нижних слоев морской атмосферы результаты вычислений скорости нуклеации на основе теории IMN очень чувствительны к H_2SO_4 , если концентрация H_2SO_4 мала ($\leq 7 \cdot 10^6 \text{ см}^{-3}$), но такого рода чувствительность значительно ослабляется по мере роста H_2SO_4 . Этот вывод радикально отличается от результатов, соответствующих классической теории и THN.

Хорошо известно, что однородная нуклеация является одним из механизмов образования новых частиц аэрозоля в атмосфере. Иногда частицы образуются как продукт бинарной нуклеации серной кислоты и воды, но существуют и различные другие механизмы (например, тройной однородной нуклеации серной кислоты, аммония и воды). Как один из возможных механизмов образования частиц в прибрежных регионах был предложен фотолиз диiodометана (CH_2I_2) в присутствии O_3 . В этой связи Jimenez и др. [30] обсудили результаты лабораторных исследований в камере, которые обнаружили наличие быстрой однородной нуклеации при концентрации CH_2I_2 , изменяющейся в пределах трех порядков величины — до уровня 15 трил^{-1} ($\sim 4 \cdot 10^8 \text{ молекул/см}^3$). Подобная концентрация соответствует наблюдаемой концентрации газообразных соединений йода в прибрежных регионах.

После первоначальной «вспышки» нуклеации в камере наблюдался процесс, определявшийся доминированием конденсации дополнительного количества паров на существующих частицах и коагуляции частиц. Частицы, образовавшиеся в условиях сухого воздуха, представляли собой фрактальные

агломераты с фрактальным массовым размером $D_f \sim 1,8-2,5$. Наличие более высокой относительной влажности (65%) не изменяет режима процесса нуклеации или роста частиц по сравнению с условиями сухого воздуха, но приводит к образованию более компактных и плотных частиц ($D_f \sim 2,7$).

Учитывая известные газофазные химические реакции, можно рассматривать ОЮ как наиболее вероятный газообразный компонент, ответственный за наблюдавшийся процесс нуклеации и роста частиц. Современные представления о химических реакциях с участием ОЮ являются, однако, не вполне адекватными. Масс-спектрометрические измерения химического состава аэрозоля обнаружили, что частицы состоят главным образом из окислов йода, но содержат также воду и(или) оксикислоты йода. Исследования процессов в камере позволили вполне реалистично воспроизвести события нуклеации, наблюдаемые в условиях прибрежной окружающей среды. Сравнение процессов, протекающих в камере и в реальных условиях, дает основание считать, что главным механизмом образования новых частиц на западном побережье Ирландии является фотоокисление $\text{C}_2\text{H}_2\text{I}_2$ с возможным участием других органических соединений йода.

Важную роль в происходящих в атмосфере химических процессах и как климатообразующий фактор играет морской солевой аэрозоль (МСА), который образуется в результате испарения брызг, возникающих при морском волнении, и при взрывании пузырьков воздуха. Претерпевая дальний перенос, МСА попадает на сушу, где он может взаимодействовать с загрязняющими компонентами городской атмосферы. Существует и обратный процесс поступления загрязнений из прибрежных городов на акватории. Именно поэтому проблематика взаимодействий между МСА и загрязняющими компонентами континентальной атмосферы привлекает большое внимание. В этой связи Cai и Griffin [17] описали современные модели образования вторичного органического аэрозоля (SOA) путем поглощения полуплетучих продуктов окисления (SVOC) смесью органического аэрозоля и(или) их растворения в водном аэрозоле.

В условиях прибрежных регионов происходит поглощение только что образовавшимся морским солевым аэрозолем продуктов окисления полуплетучих органических соединений, что приводит к образованию поверхностного органического слоя. Численное моделирование такого рода процесса продемонстрировало формирование равновесия между газообразной фазой, континентальным первичным органическим аэрозолем, органическим слоем морского солевого аэрозоля и континентальным водным аэрозолем также, как и равновесия между органическим слоем МСА и ядром его частиц из рассола морских солей.

В работе [17] рассмотрены диссоциация кислотных компонентов в водной фазе и процессы, определяющие уровень рН. Описан молекулярный состав шести полуплетучих продуктов окисления органических соединений, являющихся компонен-

тами вторичного органического аэрозоля; восемь компонентов первичного органического аэрозоля, характеризующих состав городского аэрозоля; пять соединений, входящих в состав органического поверхностного слоя частиц морского солевого аэрозоля и четыре органических компонента морского рассола, составляющего ядра частиц МСА. Применена итерационная методика решения системы нелинейных уравнений с целью вычисления концентрации каждого из упомянутых компонентов в аэрозольной и газовой фазах, а также значений рН для соответствующих жидких фаз.

Полученные результаты показали, что жидкий аэрозоль и содержащиеся в МСА ядра из рассола являются наиболее благоприятными средами для поглощения газообразных соединений, наличие поверхностных слоев органики способствует образованию ядер из рассола, а вторичные органические кислоты вносят существенный вклад в закисление содержащихся в частицах морского солевого аэрозоля ядер из рассола морских солей.

Согласно целому ряду упомянутых выше исследований нуклеация частиц атмосферного аэрозоля в тройной системе «пары серной кислоты — аммоний — водяной пар» служит эффективным механизмом образования новых частиц в условиях леса, морского пограничного слоя атмосферы, прибрежной окружающей среды, удаленной (фоновой) тропосферы, а также в среде выбросов, обусловленных двигателями внутреннего сгорания.

Выполненные ранее разработки показали, что, хотя концентрация газообразной серной кислоты может быть достаточной для возникновения новых частиц, она не является достаточной для обеспечения роста частиц до наблюдаемых размеров или для быстрого роста ядер с последующим их «вымыванием» из атмосферы еще на той стадии, когда они не достигают обнаруживаемых размеров ($\leq 0,003$ мкм). Должны поэтому существовать компоненты химического состава атмосферы (помимо серной кислоты), которые благоприятствуют увеличению размеров ядер до наблюдаемых размеров. Zhang и Wexler [56] отметили, что одним из такого рода компонентов могут быть пары органических соединений.

Главным процессом роста размеров частиц могут в таком случае служить гетерогенные химические реакции, а функционирование этого процесса зависит от трех характерных масштабов времени: 1) τ_{heter} — для гетерогенных реакций между серной кислотой и органическими соединениями; 2) τ_{coag} — для коагуляции новых ядер; 3) τ_{alkenes} — для алкенов, с учетом их главного стока в атмосфере через посредство реакции с участием радикала гидроксила и приземного озона. Условием эффективного роста частиц является $\tau_{\text{heter}} < \tau_{\text{coag}}$ и τ_{sink} (характерное время стока алкенов). В противном случае концентрация алкенов или новых ядер будет уменьшаться до того, как гетерогенные реакции смогут внести вклад в увеличение размеров ядер. Приведены примеры, иллюстрирующие эти соображения.

За последние годы было обнаружено образование в атмосфере (иногда в форме «взрывных» событий) нуклеационного аэрозоля с размером частиц около 0,003 мкм, механизмы образования которого остаются, однако, малоизученными. Одним из наиболее вероятных механизмов является тройная нуклеация, но не исключено и одновременное функционирование нескольких механизмов.

Laakso и др. [37] предприняли теоретический анализ возможной роли ионно-индуцированной нуклеации и динамики заряженных частиц аэрозоля, результаты которого позволили сделать вывод, что подобная нуклеация способна обусловить образование значительного числа частиц, если счетная концентрация существовавших ранее частиц была достаточно малой. Еще одно условие состоит в том, чтобы только положительные или отрицательные ионы обуславливали нуклеацию большого числа частиц наблюдаемых размеров. Показано также, что возможна непрерывная нуклеация частиц, размеры которых лежат за пределами обнаружения при помощи существующей аппаратуры, при низкой температуре и высокой концентрации ранее образовавшихся частиц. В некоторых случаях результаты численного моделирования вполне удовлетворительно согласуются с данными наблюдений в окружающей среде бореальных лесов. Согласно полученным результатам в определенных условиях ионно-индуцированная нуклеация обуславливает изменения распределения электрических зарядов частиц, что определяет возможность наблюдений ионно-индуцированной нуклеации в условиях реальной атмосферы.

Хотя в ряде недавних разработок было обнаружено наличие в атмосфере эпизодов «взрывной» нуклеации аэрозоля, механизм этого процесса остается загадочным. В качестве одной из возможностей был предложен упомянутый ранее механизм однородной тройной нуклеации с участием водяного пара, серной кислоты и аммиака. Принятие подобного предположения привело, однако, к значительному превышению рассчитанных значений скорости нуклеации по сравнению с наблюдаемыми. В этой связи было отмечено, что подобный механизм способен обеспечить образование и последующий рост термодинамически устойчивых молекулярных кластеров до измеримых размеров только при наличии «взрывного» повышения концентрации некоторых органических паров, чего, однако, не происходит. С другой стороны, если предположить в качестве обсуждаемого механизма ионно-индуцированную (или ионно-управляемую) нуклеацию (т.е. нуклеация происходит только на ионах, а сильное ускорение роста частиц определяется электростатическим взаимодействием между заряженными частицами и претерпевающими конденсацию молекулами, которые характеризуются дипольной электростатической природой), то это обеспечивает получение вполне реалистических результатов.

В таком контексте Laakso и др. [38] проанализировали влияние усиления конденсации, обусловленного кулоновыми силами, причем главная цель

состояла в оценке верхнего предела подобного воздействия и его значения для динамики роста частиц нуклеационной моды. Фактор усиления концентрации составляет, по-видимому, меньше 5 в случае роста заряженных частиц радиусом от 0,0015 до 0,01 мкм. Однако лишь ограниченная часть популяции частиц оказывается заряженной, и поэтому суммарный эффект характеризуется значениями коэффициента меньше 2. С учетом этого обстоятельства, а также того, что концентрация водяного пара составляет около 10^7 молекул/см³, т.е. примерно 0,001 мкм/ч, влияние усиления конденсации на наблюдаемую суммарную концентрацию аэрозоля рассчитано также с использованием модели динамики аэрозоля. Вычисления показали, что в условиях нейтральной нуклеации воздействие является незначительным при малых значениях фактора усиления (ЕЕ). В случае достаточно больших значений ЕЕ конечным результатом воздействия оказывается уменьшение концентрации аэрозоля. Если имеет место ионно-индуцированная нуклеация, то характер воздействия зависит от первоначальной концентрации частиц и фактора усиления. В таких условиях суммарная концентрация аэрозоля может увеличиваться в три раза.

В обширном диапазоне регионов земного шара от субарктической Лапландии до индустриализированных сельскохозяйственных областей Германии, в протяженных прибрежных районах наблюдались регулярные явления «вспышек» образования частиц НА размером 0,003–0,005 мкм в пограничном слое атмосферы и последующий рост частиц до размеров порядка 0,1 мкм за 1–2 сут. Dal Maso и др. [21] предприняли численное моделирование подобного процесса образования и роста новых частиц НА с учетом конденсации газообразных соединений и стока за счет коагуляции частиц, найденных с использованием данных наблюдений скорости образования частиц размером 0,003 мкм.

Оценки обусловленных конденсацией и коагуляцией стоков получены по данным наблюдений микроструктуры атмосферного аэрозоля и ее изменений. Эти оценки имеют целью воспроизведение образования и скорости роста частиц в периоды событий нуклеации в ПСА бореальных лесов и побережий. Расчеты показали, что типичные значения конденсационного стока составляют $(4-7) \cdot 10^{-3} \text{ с}^{-1}$ в лесах и $2 \cdot 10^{-3} \text{ с}^{-1}$ у побережий, тогда как нуклеационные стоки для частиц диаметром 0,0012 и 0,003 мкм, как правило, меньше в 1,5–2; 5–7 и 11–15 раз соответственно. Наблюденная скорость роста частиц была равна 0,002–0,010 мкм/ч (бореальные леса) и 0,015–0,180 мкм/ч (побережья) при концентрации газообразных компонентов, составляющей $(2-13) \cdot 10^7$ и 10^8 см^{-3} . Рассчитанная скорость выбросов газообразных компонентов достигала $(1-2) \cdot 10^5 \text{ см}^{-3} \cdot \text{с}^{-1}$ (леса) и $(2-5) \cdot 10^6 \text{ см}^{-3} \cdot \text{с}^{-1}$ (побережья), а скорость образования частиц диаметром 0,001 мкм была $8-20 \text{ см}^{-3} \cdot \text{с}^{-1}$ (леса) и $300-10000 \text{ см}^{-3} \cdot \text{с}^{-1}$ (побережье).

В условиях прибрежной окружающей среды значительное влияние на уровень конденсационного

стока оказывал грубодисперсный аэрозоль, но в ПСА над лесами существенным было лишь влияние частиц Айткена и аккумуляционной моды. Рассчитанные значения скорости нуклеации и счетной концентрации частиц размером 0,001 мкм оказались значительно более высокими в прибрежном ПСА, чем над лесом. Наличие высокой скорости роста частиц в прибрежном воздухе отображает существование более высокой концентрации конденсируемых газообразных компонентов в этих условиях, чем над лесом, а также и более интенсивных выбросов в атмосферу газообразных компонентов.

Хотя насчитываются сотни органических соединений, входящих в состав атмосферного аэрозоля, суммарная доля их массы в городском и сельском аэрозоле составляет меньше 10%. Главными компонентами континентального органического аэрозоля являются «гумусоподобные» вещества (HULIS), вклад которых в формирование воднорастворимого органического аэрозоля в условиях городской и сельской местности варьирует в пределах 20–50%. Это означает, что HULIS оказывает существенное влияние, воздействуя на гигроскопические свойства аэрозоля и образование облачных ядер конденсации и, таким образом, на климат. ИК-спектроскопические «фингерпринты» подобного аэрозоля указывают на то, что происхождение соответствующих макромолекулярных компонентов связано с процессами «сельскохозяйственного сжигания».

Однако, как отметили Limbeck и др. [40], высокая концентрация HULIS, наблюдавшаяся в условиях сельской местности в Венгрии в пробах аэрозоля с низким содержанием «черного углерода», отображает тот факт, что происхождение HULIS в этом случае не могло быть объяснено сжиганием биомассы. В этой связи обращает на себя внимание то обстоятельство, что наиболее существенным источником химически активных органических соединений на суше служат выбросы изопрена и терпенов. Если фотоокисление изопрена не вносит существенного вклада в образование аэрозоля, то в отношении терпенов имеет место совершенно другая ситуация. Это делает их возможным существенным источником образования вторичного аэрозоля.

Показано, что значительную роль в образовании вторичного органического аэрозоля может играть возникновение в атмосфере полимеров за счет гетерогенных реакций с участием выбросов изопrenoида или терпеноида в присутствии сернокислотного аэрозоля, служащего катализатором. Хотя такой конкурирующий оксидант, как озон, или влияние влажности могут снижать уровень образования HULIS, этот уровень остается значительным. В работе [40] получены количественные оценки, подтверждающие существенность упомянутого механизма образования HULIS в континентальном аэрозоле и роста частиц аэрозоля.

Образование новых частиц аэрозоля может происходить посредством однородной бимолекулярной нуклеации в процессе газозофазных реакций с участием паров серной кислоты и воды. Функ-

ционированию подобного механизма благоприятствуют высокие уровни концентрации сернистого газа и радикала гидроксила (из которых происходит образование паров серной кислоты), высокая концентрация водяного пара и низкая температура. Предполагается, кроме того, что образование новых частиц чаще происходит в чистом воздухе, когда пары серной кислоты легко конденсируются на существующих частицах. Хотя условия для однородной нуклеации действительно существуют в атмосфере, данные наблюдений указывают на то, что в некоторых случаях образование новых частиц происходит чаще, чем предсказывают модели однородной нуклеации с участием только паров серной кислоты и воды. Это означает, что в процессе нуклеации новых частиц могут играть роль другие компоненты, в том числе аммоний и пары органических соединений.

В связи с этим Twohy и др. [51] изучили процесс образования новых частиц в воздухе, «вытекающем» из мезомасштабной конвективной системы (MCS), наблюдавшейся на Среднем Западе США. С этой целью были выполнены самолетные измерения ядер конденсации (ЯК), площади поверхности частиц аэрозоля, концентрации водяного пара и других малых газовых компонентов. Анализ результатов измерений выявил наличие повышения концентрации ЯК над облаками и по направлению от «наковальни» перистых облаков при максимальных значениях счетной концентрации до 45 тыс./см³. Согласно данным о летучести и результатам электронно-микроскопического анализа большую часть частиц составляли, по-видимому, мелкие сульфатные частицы. Упомянутое возрастание концентрации частиц аэрозоля происходило в регионе размером не менее 600 км.

Из результатов многопараметрического статистического анализа следует, что высокая концентрация ЯК была связана с влиянием элементов MCS и поступлением фонового аэрозоля. Благодаря конвекции происходит поступление газообразных предшественников аэрозоля (как продукта газозофазных реакций) с уровня подстилающей поверхности в зону вытекающего из шторма воздуха, где процессу нуклеации благоприятствует очень низкая температура воздуха. Результаты приближенных оценок продемонстрировали, что системы проникающей конвекции вносят существенный (до 20%) вклад в формирование фонового аэрозоля в верхней тропосфере средних широт.

Заключение

Главный вывод, который следует сделать на основе анализа современных представлений о механизмах образования и свойствах атмосферного аэрозоля, состоит в том, что эти представления все еще далеки от адекватности. Подобная ситуация особенно существенна в контексте учета аэрозоля как одного из важнейших климатообразующих факторов. С одной стороны, очевидно, что необходим интерактивный учет аэрозоля как климатооб-

разующего компонента атмосферы, но, с другой стороны, не вызывает сомнений, что высокая степень неопределенности относительно данных о глобальной пространственно-временной изменчивости свойств аэрозоля и механизмов его образования не позволяет обеспечить адекватную параметризацию динамики аэрозоля в моделях климата. Более детальное рассмотрение этой проблемы дано в следующих частях обзора.

1. *Исследование природной среды с пилотируемых орбитальных станций.* Л.: Гидрометеонздат, 1972. 400 с.
2. *Кондратьев К.Я., Григорьев Ал.А., Покровский О.М., Шалина Е.В.* Космическое дистанционное зондирование атмосферного аэрозоля. Л.: Гидрометеонздат, 1983. 216 с.
3. *Кондратьев К.Я.* Глобальный климат. СПб.: Наука, 1992. 359 с.
4. *Кондратьев К.Я.* Аэрозоль как климатообразующий компонент атмосферы. 1. Физические свойства и химический состав // *Оптика атмосф. и океана.* 2002. Т. 15. № 2. С. 123–146.
5. *Кондратьев К.Я.* Аэрозоль как климатообразующий компонент атмосферы. 2. Прямое и косвенное воздействие на климат // *Оптика атмосф. и океана.* 2002. Т. 15. № 4. С. 301–320.
6. *Кондратьев К.Я.* Атмосферный аэрозоль как климатообразующий компонент атмосферы. 1. Свойства аэрозоля различных типов // *Оптика атмосф. и океана.* 2004. Т. 17. № 1. С. 5–24.
7. *Кондратьев К.Я.* Атмосферный аэрозоль как климатообразующий компонент атмосферы. 2. Дистанционное зондирование глобальной пространственно-временной изменчивости аэрозоля и его воздействия на климат // *Оптика атмосф. и океана.* 2004. Т. 17. № 1. С. 25–35.
8. *Кондратьев К.Я.* Радиационное возмущающее воздействие, обусловленное аэрозолями // *Оптика атмосф. и океана.* 2003. Т. 16. № 1. С. 5–18.
9. *Кондратьев К.Я.* От нано- до глобальных масштабов: свойства, процессы образования и последствия воздействий атмосферного аэрозоля. 1. Полевые наблюдательные эксперименты. Африка и Азия // *Оптика атмосф. и океана.* 2004. Т. 17. № 9. С. 699–714.
10. *Кондратьев К.Я.* От нано- до глобальных масштабов: свойства, процессы образования и последствия воздействий атмосферного аэрозоля. 2. Полевые наблюдательные эксперименты. Америка, Западная Европа и высокие широты // *Оптика атмосф. и океана.* 2004. Т. 17. № 9. С. 715–741.
11. *Alfaro S.C., Gomes L., Rajot J.L., Lafon S., Gaudichet A., Chatenet B., Maille M., Cautenet G., Lasserre F., Cachier H., Zhang X.Y.* Chemical and optical characterization of aerosols measured in spring 2002 at the ACE-Asia supersite, Zhenbeitai, China // *J. Geophys. Res. D.* 2003. V. 108. N 23. P. ACE 9/1–ACE 9/18.
12. *Allen A.G., Oppenheimer C., Ferm M., Baxter P.J., Horrocks L.A., Galle B., Mc Gonigle A.J.S., Duffell H.J.* Primary sulfate aerosol and associated emissions from Masaya Volcano, Nicaragua // *J. Geophys. Res. D.* 2002. V. 107. N 23. P. ACH 5/1–ACH 5/8.
13. *Anderson T.L., Masonis S.J., Covert D.S., Ahlquist N.C., Howell S.G., Clarke A.D., Mc Naughton C.S.* Variability of aerosol optical properties derived from in situ aircraft measurements during ACE-Asia // *J. Geophys. Res. D.* 2003. V. 108. N 23. P. ACE 15/1–ACE 15/19.
14. *Bahreini R., Jimenez J.L., Wang J., Flagan R.C., Seinfeld J.H., Jayne J.T., Worsnop D.R.* // Aircraft-based aerosol size and composition measurements during ACE-Asia using an Aerodyne aerosol mass spectrometer // *J. Geophys. Res. D.* 2003. V. 108. N 23. P. ACE 13/1–ACE 13/22.
15. *Berresheim H., Elste T., Tremmel H.G., Allen A.G., Hansson H.-C., Rosman K., Dal Maso M., Mäkelä J.M., Külmälä M., O'Dowd C.D.* Gas-aerosol relationships of H₂SO₄, MSA, and OH: Observations in the coastal marine boundary layer at Mace Head, Ireland // *J. Geophys. Res. D.* 2002. V. 107. N 19. P. PAR 5/1–PAR 5/12.
16. *Boy M., Rannik Ü., Lehtinen K.E.J., Tarvainen V., Hakola H., Külmälä M.* Nucleation events in the continental boundary layer: Long-term statistical analyses of aerosol relevant characteristics // *J. Geophys. Res. D.* 2003. V. 108. N 21. P. AAC 5/1–AAC 5/13.
17. *Cai X., Griffin R.J.* Modeling the formation of secondary organic aerosol in coastal areas: Role of the sea-salt aerosol organic layer // *J. Geophys. Res. D.* 2003. V. 108. N 15. P. AAC 3/1–AAC 3/14.
18. *Carrico C.M., Kus P., Rood M.J., Quinn P.K., Bates T.S.* Mixtures of pollution dust, sea-salt, and volcanic aerosol during ACE-Asia: Radiative properties as a function of relative humidity // *J. Geophys. Res. D.* 2003. V. 108. N 23. P. ACE 18/1–ACE 18/18.
19. *Chu D.A., Kaufman Y.J., Zibordi G., Chern J.D., Mao J., Li C., Holben B.N.* Global monitoring of air pollution over land from the Earth Observing System – Terra Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS) // *J. Geophys. Res. D.* 2003. V. 108. N 21. P. ACH 4/1–ACH 4/18.
20. *Chuang P.Y.* Measurement of the time-scale of hygroscopic growth for atmospheric aerosols // *J. Geophys. Res. D.* 2003. V. 108. N 9. P. AAC 5/1–AAC 5/13.
21. *Dal Maso M., Külmälä M., Lehtinen K.E.J., Mäkelä J.M., Aalto P., O'Dowd C.D.* Condensation and coagulation sinks and formation of nucleation mode particles in coastal and boreal forest boundary layers // *J. Geophys. Res. D.* 2002. V. 107. N 19. P. PAR 2/1–PAR 2/10.
22. *Dibb J.E., Talbot R.W., Seid G., Jordan C., Scheuer E., Atlas E., Blake N.J., Blake D.R.* Airborne sampling of aerosol particles: Comparison between surface sampling at Christmas Island and P-3 sampling during PEM-Tropics B // *J. Geophys. Res. D.* 2003. V. 108. N 2. P. PEM 2/1–PEM 2/17.
23. *Dibb J.E., Talbot R.W., Scheuer E.M., Seid G., Avery M.A., Singh H.B.* Aerosol chemical composition in Asian continental outflow during the TRACE-P campaign: Comparison with PEM-West B // *J. Geophys. Res. D.* 2003. V. 108. N 21. P. GTE 36/1–GTE 36/13.
24. *Duncan B.N., Martin R.V., Staudt A.C., Vevich R., Logen J.A.* Interannual and seasonal variability of biomass burning emissions constrained by satellite observations // *J. Geophys. Res. D.* 2003. V. 108. N 2. P. ACH 1/1–ACH 1/22.
25. *Franke K., Ansmann A., Müller D., Althausen D., Venkataraman C., Reddy M.S., Wagner F., Sheele R.* Optical properties of the Indo-Asian haze layer over the tropical Indian Ocean // *J. Geophys. Res. D.* 2003. V. 108. N 2. P. AAC 6/1–AAC 6/17.
26. *Hämeri K., O'Dowd C.D., Hoell C.* Evaluating measurements of new particle concentrations, source rates, and spatial scales during coastal nucleation events using condensation particle counters // *J. Geophys. Res. D.* 2002. V. 107. N 19. P. PAR 6/1–PAR 6/11.

27. Höller R., Ito K., Tohno S., Kasahara M. Wavelength-dependent aerosol single-scattering albedo: Measurements and model calculations for a coastal site near the Sea of Japan during ACE-Asia // *J. Geophys. Res. D.* 2003. V. 108. N 23. P. ACE 16/1–ACE 16/15.
28. Iwasaka Y., Shi G.-Y., Yamada M., Matsuki A., Trochkin D., Kim Y.S., Zhang D., Nagatani T., Shibata T., Nagatani M., Nakata H., Shen Z., Li G., Chen B. Importance of dust particles in the free troposphere over the Taklamakan Desert: Electron microscopic experiments of particles collected with a balloon-borne particle impactor at Danhuang, China // *J. Geophys. Res. D.* 2003. V. 108. N 23. P. ACE 12/1–ACE 12/10.
29. Iwasaka Y., Shibata T., Nagatani T., Shi G.-Y., Kim Y.S., Matsuki A., Trochkin D., Zhang D., Yamada M., Nagatani M., Nakata H., Shen Z., Li G., Chen B., Kawahira K. Large depolarization ratio of free tropospheric aerosols over the Taklamakan Desert revealed by lidar measurements: possible diffusion and transport of dust particles // *J. Geophys. Res. D.* 2003. V. 108. N 23. P. ACE 20/1–ACE 20/8.
30. Jimenez J.L., Bahreini R., Cocker D.R., III, Zhuang H., Varutbangkul V., Flagan R.C., Seinfeld J.H., O'Dowd C.D., Hoffmann T. New particle formation from photooxidation of diiodomethane (CH₂I₂) // *J. Geophys. Res. D.* 2003. V. 108. N 10. P. AAC 5/1–AAC 5/25.
31. Jordan C.E., Anderson B.E., Talbot R.W., Dibb J.E., Fuelberg H.E., Hudgins C.H., Kiley C.M., Russo R., Scheuer E., Seid G., Thornhill K.L., Winstead E. Chemical and physical properties of bulk aerosols within four sectors observed during TRACE-P // *J. Geophys. Res. D.* 2003. V. 108. N 21. P. GTE 34/1–GTE 34/19.
32. Kaufman Y.J., Tanré D., Boucher O. A satellite view of aerosols in the climate system // *Nature (Gr. Brit.)*. 2002. V. 419. P. 215–223.
33. Komppula M., Lihavainen H., Hatakka J., Paatero J., Aalto P., Kulkala M., Viisanen Y. Observations of new particle formation and size distributions at two different heights and surrounding in sub-arctic area in northern Finland // *J. Geophys. Res. D.* 2002. V. 108. N 9. P. AAC 12/1–AAC 12/11.
34. Korhonen H., Lehtinen K. E. J., Pirjola L., Napari I., Vehkamäki H., Noppel M., Kulkala M. Simulation of atmospheric nucleation mode: A comparison of nucleation models and size distribution representations // *J. Geophys. Res. D.* 2003. V. 108. N 15. P. AAC 12/1–AAC 12/8.
35. Korhonen H., Napari I., Timmreck C., Vehkamäki H., Pirjola L., Lehtinen K.E.J., Lauri A., Kulkala M. Heterogeneous nucleation as a potential sulphate-coating mechanism of atmospheric mineral dust particles and implications of coated dust on new particle formation // *J. Geophys. Res. D.* 2003. V. 108. N 17. P. AAC 4/1–AAC 4/9.
36. Kulkala M. How particles nucleate and grow // *Science*. 2003. V. 302. N5647. P. 1000–1001.
37. Laakso L., Mäkelä J.M., Pirjola L., Kulkala M. Model studies on ion-induced nucleation in the atmosphere // *J. Geophys. Res. D.* 2002. V. 107. N 20. P. AAC 5/1–AAC 5/19.
38. Laakso L., Kulkala M., Lehtinen K. E. J. Effect of condensation rate enhancement factor on 3-nm (diameter) particle formation in binary ion-induced and homogeneous nucleation // *J. Geophys. Res. D.* 2003. V. 108. N 18. P. ACH 2/1–ACH 2/6.
39. Lee S.-H., Reaves J.M., Wilson J.C., Hunton D.E., Viggiano A.A., Miller T.M., Ballenthin J.O., Lait L.P. Particle formation by ion nucleation in the upper troposphere and lower stratosphere // *Science*. 2003. V. 301. N 5641. P. 1886–1889.
40. Limbeck A., Kulkala M., Puxbaum H. Secondary organic aerosol formation in the atmosphere via heterogeneous reaction of gaseous isoprene on acidic particles // *Geophys. Res. Lett.* 2003. V. 30. N 19. P. ASC 6/1–ASC 6/4.
41. Luo B.P., Voigt C., Fueglistaler S., Peter T. Extreme NAT supersaturations in mountain wave ice PSC's: A clue to NAT formation // *J. Geophys. Res. D.* 2003. V. 108. N 15. P. AAC 4/1–AAC 4/10.
42. Murayama T., Masonis S.J., Redemann J., Anderson T.L., Schmid B., Livingston J.M., Russel P.B., Huebert B., Howell S.G., McNaughton C.S., Clarke A., Abo M., Shimizu A., Sugimoto N., Yabuki M., Kuze H., Fukagawa S., Maxwell-Meier K., Weber R.J., Orsini D.A., Blomquist B., Bandy A., Thornton D. An intercomparison of lidar-derived aerosol optical properties with airborne measurements near Tokyo during ACE-Asia // *J. Geophys. Res. D.* 2003. V. 108. N 23. P. ACE 19/1–ACE 19/19.
43. Nakajima T. and APEX Science Team. Findings and Current Problems in the Asian Particle Environmental Change Studies: 2003. JST/CREST/APEX 2003 Interim Report. Tokyo. 2003. 240 pp.
44. O'Dowd C.D., Hämeri K., Mäkelä J.M., Pirjola L., Kulkala M., Jennings S.G., Berresheim H., Hansson H.-C., de Leeuw G., Kunz G.J., Allen A.G., Hewitt C.N., Jackson A., Viisanen Y., Hoffmann T. A dedicated study of New Particle Formation and Fate in the Coastal Environment (PARFORCE): Overview of objectives and achievements // *J. Geophys. Res. D.* 2002. V. 107. N 19. P. PAR 1/1–PAR 1/16.
45. O'Dowd C.D., Hämeri K., Mäkelä J., Väkevä M., Aalto P., De Leeuw G., Kunz G.J., Becker E., Hansson H.-C., Allen A.C., Harrison R.M., Berresheim H., Kleefeld C., Geever M., Jennings S.G., Kulkala M. Coastal new particle formation: Environmental conditions and aerosol photochemical characteristics during nucleation bursts // *J. Geophys. Res. D.* 2002. V. 107. N 19. P. PAR 12/1–PAR 12/17.
46. O'Dowd C.D. On the spatial extent and evolution of coastal aerosol plumes // *J. Geophys. Res. D.* 2003. V. 108. N 15. P. PAR 10/1–PAR 10/13.
47. Rankin A.M., Wolff E.W. A year-long record of size-segregated aerosol composition at Halley, Antarctica // *J. Geophys. Res. D.* 2003. V. 108. N 24. P. AAC 9/1–AAC 9/12.
48. Romero A.B., Thiemens M.H. Mass-independent sulfur isotopic compositions in present-day sulfate aerosols // *J. Geophys. Res. D.* 2003. V. 108. N 16. P. AAC 8/1–AAC 8/7.
- 48a. Sano I., Mukai S., Okada Y., Holben B.N., Ohta S., Takamura T. Optical properties of aerosols during APEX and ACE-Asia experiments // *J. Geophys. Res. D.* 2003. V. 108. N 23. P. ACE 17/1–ACE 17/9.
49. Streets D.G., Bond T.C., Carmichael G.R., Fernandes S.D., Fu Q., He D., Klimont Z., Nelson S.M., Tsai N.Y., Wang M.Q., Woo J.-H., Yarber K.F. An inventory of gaseous and primary aerosol emissions in Asia in the year 2000 // *J. Geophys. Res. D.* 2003. V. 108. N 21. P. GTE 30/1–GTE 30/23.
50. Sun D., Chen F., Bloemendal J., Su R. Seasonal variability of modern dust over the Loess Plateau of China // *J. Geophys. Res. D.* 2003. V. 108. N 21. P. AAC 3/1–AAC 3/10.
51. Twohy C.H., Clement C.F., Gandrud B.W., Weinheimer A.J., Campos T.L., Baumgardner D., Brune W.H., Falona I., Sachse G.W., Vay S.A., Tan D. Deep convection as a source of new particles in the midlatitude

- upper troposphere // *J. Geophys. Res. D.* 2002. V. 107. N 21. P. AAC 6/1–AAC 6/10.
52. Väkevä M., Hämeri K., Aalto P. P. Hygroscopic properties of nucleation mode and Aitken mode particles during nucleation bursts and in background air on the west coast of Ireland // *J. Geophys. Res. D.* 2002. V. 107. N 19. P. PAR 9/1 – PAR 9/11.
53. Wang J., Christopher S.A., Brechtel F., Kim J., Schmid B., Redemann J., Russel P.B., Quinn P., Holben B.N. // *J. Geophys. Res. D.* 2003. V. 108. N 23. P. ACE 25/1 – ACE 25/14.
54. Weber R.J., Lee S., Chen G., Wang B., Kapustin V., Moore K., Clarke A.D., Mauldin L., Kosciuch E., Cantrell C., Eisele F., Thornton D.C., Bandy A.R., Sachse G.W., Fuelberg H.E. New particle formation in anthropogenic plumes advecting from Asia observed during TRACE-P // *J. Geophys. Res. D.* 2003. V. 108. N 21. P. GTE 35/1–GTE 35/15.
55. Yu F. Nucleation rate of particles in the lower atmosphere: Estimated time needed to reach pseudo-steady state and sensitivity to H₂SO₄ gas concentration // *Geophys. Res. Lett.* 2003. V. 30. N 10. P. 33/1–33/4.
56. Zhang K.M., Wexler A.S. A hypothesis for growth of fresh atmospheric nuclei // *J. Geophys. Res. D.* 2002. V. 107. N 21. P. AAC 15/1 – AAC 15/6.
57. Zhang D., Iwasaka Y., Shi G., Zang J., Matsuki A., Trochkin D. Mixture state and size of Asian dust particles collected at southwestern Japan in spring 2000 // *J. Geophys. Res. D.* 2003. V. 108. N 24. P. ACH 9/1 – ACH 9/12.

K.Ya. Kondratyev. From nano- to global scales: properties, processes of formation, and aftereffects of the atmospheric aerosol impacts. 3. Processes of aerosol formation (nucleation).

The processes of aerosol formation (nucleation) are overviewed.