

К.Я. Кондратьев

## От нано- до глобальных масштабов: свойства, процессы образования и последствия воздействий атмосферного аэрозоля. 4. Взаимодействие аэрозоля и облаков

*Центр экологической безопасности РАН/ Северо-западный международный центр чистого производства, г. С.-Петербург*

Поступила в редакцию 7.07.2004 г.

Сделан обзор процессов взаимодействия атмосферного аэрозоля и облаков.

### Введение

Хорошо известно, что динамика облачного покрова принадлежит к числу ключевых климатообразующих факторов. С другой стороны, также хорошо установлено (хотя и требует значительно более надежного количественного обоснования), что критически важное значение для образования облачного покрова имеют облачные ядра конденсации (ОЯК), т.е. частицы атмосферного аэрозоля. Помимо этого, облака оказывают сильное воздействие на содержание и свойства аэрозоля. Все это определяет исключительную актуальность проблемы взаимодействия аэрозоля и облачности, в процессе которого проявляются различные обратные связи [1, 18, 19]. Естественно поэтому суждение, высказанное Graf [9]: «...облачно-радиационное взаимодействие рассматривается как наиболее важный фактор изменений климата, но существуют большие неопределенности в современном понимании соответствующих процессов».

Изучению взаимодействия между аэрозолями и облаками благоприятствуют «антропогенные эксперименты», состоящие в ежегодном сжигании биомассы в больших масштабах в тропических регионах. Последствия подобных экспериментов до сих пор привлекают самое серьезное внимание. Так, например, Колен и др. [20] исследовали подавление развития облаков, образующихся над верхней границей пограничного слоя атмосферы (ПСА) под воздействием загрязнений и дымов от сжигания биомассы, происходящего в течение сухого сезона, а Andreae и др. [2] обнаружили наличие выбросов облаками дымового аэрозоля в период перехода от сухого к влажному сезону в бассейне р. Амазонки (Бразилия).

Колен и др. [20] показали, что главное воздействие поглощающего и рассеивающего радиацию аэрозоля состоит в уменьшении поступления воды к облакам от покрова леса. Подобное уменьшение обусловлено происходящими под влиянием аэрозоля снижением температуры подстилающей поверхности и стабилизацией (за счет прогревания) турбулентного ПСА. Анализ данных спутниковых наблюдений

при наличии рассеянных кучевых облаков выявил уменьшение их количества от 38% в условиях чистой атмосферы до 0% при наличии мощного слоя дымового аэрозоля (при оптической толщине слоя, равной 1,3). В рассматриваемых условиях происходит резкое изменение радиационного возмущающего воздействия от  $-28$  до  $+8$  Вт/м<sup>2</sup>.

Согласно данным Andreae и др. [2], наличие слоя дымового аэрозоля порождает уменьшение размера облачных капель и приводит к смещению начала осадков с уровня на 1,5 км выше нижней границы облаков (чистые облака) на уровень, который выше на 5 км (загрязненные облака) или даже 7 км («пирогенные» облака). Подавление процесса формирования осадков на более низких уровнях и, соответственно, вымывания аэрозоля благоприятствует переносу воды и дыма на более значительные высоты, где облака начинают «дымить», выбрасывая компоненты загрязнений. Повышение уровня формирования осадков ведет к усилению восходящих потоков, что порождает интенсивные грозы, град и «выстреливание» вершин облаков в стратосферу. Последнее способствует усилению радиационного воздействия на климатическую систему. Усиление штормов ведет к интенсификации высвобождения скрытого тепла в более высоких слоях атмосферы, что существенно влияет на региональную и глобальную атмосферную циркуляцию.

Graf [9] справедливо подчеркнул, что, хотя упомянутые выше результаты относятся к региону Амазонии, их методологическое значение гораздо шире. При этом влияние аэрозоля на динамику облачного покрова может по-разному проявляться в различных условиях. Облачно-аэрозольное взаимодействие представляет собой нелинейный процесс и может приводить к бифуркации «траекторий» развития облачного покрова. Специфика подобного взаимодействия определяется существованием определенных критических значений контролируемых его параметров. Изменения, происходящие в наномасштабах отдельных частиц аэрозоля, приводят к изменениям динамики облаков, региональных полей облачности и крупно-

масштабного энергообмена в атмосфере. Это означает, в частности, что адекватное воспроизведение процессов в ПСА возможно лишь при учете воздействия аэрозоля на перенос излучения, турбулентное перемешивание, эвакуотранспирацию и растительный покров, принимая во внимание соответствующие микрофизические и химические процессы.

Упомянув некоторые результаты новейших работ, обратимся к более детальному рассмотрению проблемы.

## 1. Эмпирическая диагностика взаимодействия аэрозоля и облаков

Хотя существуют серьезные основания считать, что сульфатный аэрозоль оказывает значительное воздействие на формирование глобального климата, соответствующие количественные оценки остаются в сильной степени неопределенными. Это воздействие — «прямое», проявляющееся в рассеянии аэрозолем коротковолновой солнечной радиации назад, оценки которого дали среднглобальные значения в пределах от  $-0,2$  до  $-0,9$  Вт/м<sup>2</sup>. Потенциально более значительными (и в гораздо более сильной степени неопределенными) являются «косвенные» воздействия аэрозоля, приводящие к изменению оптических свойств и времени жизни облаков (так называемые первый и второй косвенные воздействия).

Что касается первого косвенного воздействия, то его оценки варьируют в пределах от 0 до  $-2$  Вт/м<sup>2</sup>, а для второго — остаются слишком неопределенными для обсуждения количественных оценок. Облака участвуют в процессах как образования, так и удаления сульфатного аэрозоля (СА), причем сульфаты образуются почти исключительно посредством окисления SO<sub>2</sub> как в газообразной, так и в водной фазе (в последнем случае в каплях облаков). Газофазное образование сульфатов под облаками подавляется таким окислителем, как гидроксил ОН. Сульфаты, обладающие хорошей растворимостью в воде, удаляются из атмосферы главным образом посредством вымывания осадками (влажного осаждения) и, в меньшей степени, — посредством сухого осаждения. До сих пор упомянутые процессы мало изучены и, в частности, остаются без ответа вопросы: 1) способствуют ли процессы в облаках усилению образования сульфатов или, напротив, благоприятствуют вымыванию сульфатного аэрозоля из атмосферы? 2) происходит ли существенное обусловленное облаками ограничение процесса газофазного образования сульфатного аэрозоля?

С целью анализа соотношений между вкладами процессов образования СА в жидкой фазе, вымывания СА осадками и ограничений процесса газофазного образования СА под облаками Koch и др. [17] рассмотрели корреляционные связи между облаками и СА. Статистический анализ ежедневных данных наблюдений характеристик облачного покрова и концентрации СА у земной поверхности в Европе и Северной Америке за два года продемонстрировал наличие существенной отрицательной корреляции между облаками и СА. Это означает, что влияние об-

лачности на выведение СА из атмосферы посредством вымывания осадками и(или) ограничения газофазного образования СА проявляется сильнее, чем повышение концентрации СА за счет его образования в водной фазе облаков. Устойчивая антикорреляция сульфаты/облака в масштабах времени 8–64 сут отображает влияние крупномасштабных динамических процессов на облака и образование сульфатного аэрозоля.

С другой стороны, результаты численного моделирования с помощью модели общей циркуляции атмосферы (GCM), разработанной в Годдардовском центре космических полетов (США), свидетельствуют о существовании лишь слабой когерентности между СА и облачным покровом. Однако существует сильная антикорреляция между рассчитанной концентрацией СА с учетом газофазного процесса. Антикорреляция сульфаты/облака, определяемая данными GCM, усиливается, если исключить газофазное образование СА под облаками, как это должно произойти под воздействием фотохимического образования ОН. Единственный путь обеспечения сильной антикорреляции между СА и облаками состоит в коррекции процесса образования СА в водной фазе в упомянутой модели.

Эта модель, подобно многим другим моделям глобальных трассеров, воспроизводит выбросы растворенных компонентов (включая сульфаты) из облаков на каждом шаге по времени вместо того, чтобы описывать их появление после испарения облаков. Если ввести коррекцию с учетом этого обстоятельства, то окажется, что произойдут усиление вымывания сульфатов, уменьшение (примерно вдвое) образования сульфатов в водной фазе и в результате общее количество СА и время жизни СА уменьшаются на 25% (0,54 ТгS и 4,2 сут соответственно). В целом модель круговорота серы должна обеспечивать более значительное образование СА в условиях ясной атмосферы и менее существенное в условиях облачности, что должно существенно сказаться на косвенном радиационном возмущающем воздействии (РВВ). Результатом упомянутой коррекции является небольшое уменьшение косвенного (антропогенного) РВВ с  $-1,7$  до  $-1,5$  Вт/м<sup>2</sup>. Изменение прямого антропогенного РВВ пропорционально ослаблению образования СА с  $-0,66$  до  $-0,47$  Вт/м<sup>2</sup>. Что же касается второго косвенного воздействия, то в этом случае вероятно положительная, а не отрицательная корреляция. Таким образом, рассмотренные результаты свидетельствуют о целесообразности учета отрицательной корреляции аэрозоль/облака при обосновании глобальной модели сульфатного аэрозоля.

С использованием данных спутникового дистанционного зондирования при помощи аппаратуры AVHRR и POLDER Sekiguchi и др. [32] проанализировали корреляцию между характеристиками аэрозоля и облаков с целью оценки косвенного воздействия аэрозоля на формирование радиационного возмущающего воздействия. Рассмотрение глобальных статистических данных показало, что имеет место корреляция между эффективным радиусом частиц

аэрозоля  $r_c$ , оптической толщиной облачности нижнего яруса  $\tau_c$  и суммарным числом частиц аэрозоля в толще атмосферы, отображающая косвенное влияние аэрозоля на формирование РВВ и, следовательно, на климат. Наблюдалась также корреляция между количеством облаков и счетной концентрацией аэрозоля, тогда как попытки обнаружить корреляцию между температурой на уровне верхней границы облаков и общим содержанием аэрозоля в толще атмосферы оказались безуспешными.

Региональные статистические данные свидетельствуют о том, что, как правило, существует положительная корреляция между  $\tau_c$ , количеством облаков и общим содержанием аэрозоля в толще атмосферы, что согласуется с данными глобальной статистики. Однако в случае  $r_c$  тенденции, идентичные среднеглобальной корреляции, проявляются только в прибрежных регионах. Использование подобных корреляционных связей и предположения о происшедшем с начала индустриальной эры возрастании на 30% общего содержания (числа частиц) аэрозоля в толще атмосферы приводит к оценке среднеглобального косвенного воздействия аэрозоля на РВВ в пределах от  $-0,6$  до  $-1,2$  Вт/м<sup>2</sup>, тогда как прямое воздействие аэрозоля на РВВ над океаном (по данным спутниковых наблюдений) составляет  $-0,4$  Вт/м<sup>2</sup>.

Таким образом, косвенное воздействие аэрозоля на РВВ существенно превосходит прямое воздействие, хотя нужно, конечно, помнить о значительной неопределенности оценок косвенного воздействия. Хотя чувствительности температуры на уровне верхней границы облаков к счетной концентрации аэрозоля обнаружено не было, все же выявлено наличие отчетливой отрицательной корреляции между счетной концентрацией аэрозоля и температурой, при которой радиус облачных капель возрастает до 14 мкм. Подобная специфическая зависимость свидетельствует: воздействие аэрозоля на облака происходит таким образом, что порождает изменения размеров капель вблизи верхней границы облаков, значений  $\tau_c$  и количества облаков при сохранении температуры верхней границы облаков на таком уровне, который обеспечивает отсутствие значительных изменений РВВ за счет длинноволновой радиации.

На основе использования данных самолетных и наземных наблюдений вблизи от Канарских островов (восточный сектор Северной Атлантики), выполненных в 1997 г. в рамках проекта CLOUDYCOLUMN (CC) второго полевого наблюдательного эксперимента ACE-2 по изучению характеристик аэрозоля, Guibert и др. [10] получили оценки косвенного воздействия аэрозоля на климат через обусловленные аэрозолем изменения свойств облаков. Критерием воздействия служит величина облачно обусловленного радиационного возмущающего воздействия АЕ. С этой целью выполнено сравнение результатов самолетных и наземных наблюдений ядер конденсации, аккумуляционной моды аэрозоля и микроструктуры аэрозоля в целом. Сопоставлены также измеренные и рассчитанные спектры размеров частиц аэрозоля со статистическими данными по вертикальной скорости внутри и под слоисто-кучевыми облаками.

Таким образом, имеет место вполне удовлетворительное (в пределах погрешностей измерений) согласие самолетных и наземных данных. Однако существенные расхождения обнаружены при сравнении вычисленных и наблюдаемых спектров размеров «влажного» аэрозоля, что можно объяснить либо наличием систематических погрешностей измерений (сделанных с применением счетчика частиц FSSP-300), либо погрешностями определения размеров сухих частиц аэрозоля. Анализ данных о вертикальной скорости указывает на то, что отсутствует заметное изменение первого и третьего моментов распределения частоты вертикальной скорости между подоблачным и внутриоблачным слоями атмосферы. Имеет место, однако, возрастание значений второго момента при переходе через нижнюю границу слоя облачности. В целом полученные результаты отображают репрезентативность наземных данных наблюдений физических и химических свойств аэрозоля, а также самолетных данных о вертикальной скорости для численного моделирования процессов активации аэрозоля.

В рамках научной программы полевого наблюдательного эксперимента CRYSTAL-FACE по изучению динамики перистых облаков в юго-западной части штата Флорида (США) в июле 2002 г. Van Reken и др. [34] выполнили самолетные измерения ОЯК. Два тщательно откалиброванных счетчика ОЯК осуществляли измерения счетной концентрации ОЯК при двух уровнях пересыщения  $S$ , равных 0,2 и 0,85%. Анализ результатов наблюдений показал, что исследованный аэрозоль имел преимущественно морское происхождение. Средняя концентрация ОЯК составляла  $233$  см<sup>-3</sup> (при  $S = 0,2\%$ ) и  $371$  см<sup>-3</sup> ( $S = 0,85\%$ ).

Данные для трех полетов оказались аномальными (по сравнению со всеми остальными) в том смысле, что в случае двух полетов 18 июля наблюдался аэрозоль преимущественно континентального происхождения, а 28 июля имела место необычно высокая и пространственно изменчивая концентрация ОЯК. Анализ данных одновременных измерений микроструктуры аэрозоля и ОЯК, а также сравнение с результатами расчетов концентрации ОЯК на основе теории Кёлера (в предположении, что аэрозоль состоял из сульфата аммония) продемонстрировали хорошее согласие наблюдаемых ( $N_o$ ) и рассчитанных ( $N_p$ ) значений концентрации ОЯК. При  $S = 0,2\%$  отношение  $N_p/N_o = 1,047$  (коэффициент корреляции  $r^2 = 0,911$ ), а в случае  $S = 0,85\%$  величина  $N_p/N_o = 1,201$  ( $r^2 = 0,835$ ). Если исключить из рассмотрения аномальные данные за 28 июля, то согласие оказывается еще более полным: при  $S = 0,85\%$  отношение  $N_p/N_o = 1,085$  ( $r^2 = 0,770$ ).

Анализ данных спутниковых наблюдений привел к выводу, что наличие высоких уровней городских и промышленных загрязнений атмосферы, концентрации пылевого аэрозоля из пустынь и дымового аэрозоля от сжигания биомассы приводит, как правило, к уменьшению размера капель облаков и, таким образом, к повышению альбедо облаков и к спаду эффективности образования осадков. На-

против, наблюдаемые в атмосфере на суше большие солевые частицы пыли и солевой аэрозоль морского происхождения благоприятствуют росту облачных капель. Помимо этого, загрязняющий атмосферу аэрозоль оказывает существенное влияние на процессы образования облаков и осадков. Результаты численного моделирования продемонстрировали, например, что черный углеродный аэрозоль, наблюдаемый в Китае, оказывает очень сильное воздействие на формирование осадков в региональных масштабах, связанное с обусловленным подобным аэрозолем усилением поглощения солнечной радиации. Аналогичная ситуация наблюдалась и в регионе Средиземноморья.

В этом контексте Rudich и др. [31] предприняли анализ воздействий на микрофизические характеристики облаков выбросов в атмосферу дымового аэрозоля во время происшедших во время войны 1991 г. пожаров на нефтепромыслах Кувейта. С этой целью сопоставлены микрофизические свойства чистых и подвергшихся загрязнению облаков по данным спутниковых наблюдений. Подобное сравнение обнаружило, что: 1) вблизи верхней границы дымового шлейфа происходило, как правило, образование облачности, обусловленное прогреванием атмосферы за счет усиления поглощения солнечной радиации и интенсификации конвекции; 2) образовавшиеся в результате пожаров солевые частицы функционировали как гигантские облачные ядра конденсации, стимулировавшие слияние капель сильно загрязненных облаков; 3) вдали от источников дымового аэрозоля происходило осаждение гигантских ОЯК, тогда как наличие очень высокой концентрации ОЯК средних и малых размеров оказывало сильное влияние на развитие облачности за счет подавления процессов слияния капель и их роста; 4) происходило замерзание мелких капель в подверженных воздействию дымового аэрозоля облаках при низкой температуре на значительной высоте, что тормозило развитие процессов образования жидких и твердых осадков.

Обсуждаемые результаты наблюдений свидетельствуют о том, что в атмосфере над сушей не возникает эффективного вымывания частиц дымового аэрозоля, что определяет возможность их дальнего переноса и, следовательно, расширения пространственных масштабов региона воздействия дымового аэрозоля. Усиление поглощения солнечной радиации за счет дымового аэрозоля способствует интенсификации конвекции над шлейфом дымового аэрозоля, что приводит к формированию облаков над шлейфом. Влияние такого рода процесса доминирует по сравнению с воздействием испарения облаков в результате обусловленного дымом усиления поглощения солнечной радиации.

Большое количество сахарского пылевого (минерального) аэрозоля около 200 Мт/год, что составляет 20–30% общей массы аэрозоля, претерпевает дальний перенос в тропиках Атлантического океана в северном полушарии. Именно поэтому, согласно данным наблюдений на Барбадосских островах, концентрация пылевого аэрозоля (ПА) оказывается в 10–

100 раз больше летом (в период наиболее интенсивного дальнего переноса), чем зимой. Однако, с другой стороны, наблюдаемые значения концентрации ПА на о-ве Сал (северо-восточный регион Тихого океана) оказались более высокими зимой, чем летом. Подобный контраст отображает специфику общей циркуляции атмосферы, обусловленную смещениями Азорского антициклона и внутритропической зоны конвергенции (ВЗК). Наиболее существенный аспект этой специфики состоит в том, что перенос ПА зимой происходит главным образом на высотах меньше 1 км (в слое пассатной инверсии), а летом в слое 3–5 км (в пределах слоя сахарского аэрозоля, расположенного над слоем пассатной инверсии).

Полученные ранее оценки влияния ПА на формирование прямого радиационного возмущающего воздействия привели к выводу, что подобное влияние проявляется сравнительно слабо по сравнению с вкладом антропогенного сульфатного аэрозоля, поскольку доля ПА в аэрозольной оптической толщине составляет около 17%, а сульфатного аэрозоля – 20%. Ситуация может, однако, существенно измениться, если: 1) альbedo нижележащей отражающей поверхности (например, облаков) является высоким или 2) происходит перемешивание ПА с облаками.

В этой связи Pradelle и др. [28] обсудили результаты наблюдений уходящей радиации в видимой и ИК-областях спектра по данным спутника Meteosat за 6 лет, которые выявили, что в любое время года имеет место понижение альbedo облачного покрова, наиболее существенно проявляющееся в регионах высокого содержания ПА (и, соответственно, возрастание аэрозольной оптической толщины). Весной, в период мощных выбросов сахарского ПА, спад альbedo может превышать 20%. В летнее время года наличие ПА может приводить к изменению отражательной способности системы «подстилающая поверхность – атмосфера – облака», обусловленному усилением поглощения солнечной радиации системой, а наблюдаемое зимой уменьшение альbedo облаков можно отчасти объяснить влиянием иссушения атмосферы за счет воздушных масс, ответственных за дальний перенос сахарского ПА. Наряду с этим важную роль может играть воздействие перемешивания ПА с облаками, происходящее зимой. Последствием подобного перемешивания является изменение микроструктуры облачных капель, влияющее на альbedo облаков (выбросы ПА всегда обуславливают уменьшение альbedo облаков в тропиках Атлантического океана в северном полушарии) и, следовательно, оказывающееся существенным климатообразующим фактором.

Органические пленки, возникающие на растворимых частицах аэрозоля и на облачных каплях, обуславливают понижение поверхностного натяжения воды. Это может способствовать угнетению обмена водяным паром и малыми газовыми компонентами между частицами (каплями) и атмосферой, что имеет важное значение для микрофизических и гетерогенных химических процессов, характеризующих взаимодействие между аэрозолем и облаками. На основе учета реологических свойств поверхностных

пленок Decesari и др. [4] исследовали характеристики растворимости поверхностно активных веществ (ПАВ) в пробах аэрозоля и облаков (или туманов). Изменения поверхностного натяжения, обусловленные быстрым расширением или сжатием пленок, найдены по данным измерений при помощи тензометра и выражены через способность ПАВ претерпевать обмен между поверхностным слоем и основной массой раствора, а в конечном счете, — через растворимость ПАВ. Полученные в работе [4] результаты, согласующиеся с данными о стандартных растворимых ПАВ, оказалось возможным интерпретировать в терминах теории образования гидрофильных адсорбирующих слоев. Из обсуждаемых результатов следует, что растворимые в воде органические соединения (WSOC) вносят главный вклад в образование пленок на поверхности капель облаков и туманов. Покрытие поверхности образующими пленки соединениями определяется главным образом концентрацией WSOC, независимо от наличия доступной для образования пленки поверхности. Можно также сделать вывод, что наблюдавшееся уменьшение поверхностного натяжения возникает также в реальной атмосфере.

Выполненные ранее измерения продемонстрировали наличие возрастания счетной концентрации облачных капель при увеличении концентрации частиц антропогенного аэрозоля, но оставили открытым вопрос о связанных с этим изменениях оптической толщины облаков ( $\tau_c$ ) и отражательной способности. Обнаружение подобных изменений серьезно затрудняет сильная изменчивость водосодержания облаков (LWP), являющаяся главным фактором формирования вариаций  $\tau_c$  и альbedo облаков, вклад которого маскирует влияние антропогенного аэрозоля. Для определения зависимости LWP от  $\tau_c$  Kim и др. [16] выполнили наземное дистанционное зондирование атмосферы с целью восстановления  $\tau_c$  (по данным узкополосных радиометрических наблюдений) и LWP (с использованием СВЧ-миллиметрового диапазона, что ограничивает возможности восстановления условиями однослойной сплошной облачности). Осуществлены наблюдения на севере центрального региона штата Оклахома (США) в течение 13 дней 2000 г., характеризующихся сильной изменчивостью LWP и  $\tau_c$  в течение каждого из этих дней. Достоверно аппроксимированные линейной зависимостью данные наблюдений  $\tau_c$  позволяют надежно воспроизвести 97% изменчивости  $\tau_c$  в отдельные дни и примерно 63% всей наблюдавшейся изменчивости. Наклон прямой  $\tau_c$  обратно пропорционален эффективному радиусу облачных капель  $r_v$ , который варьировал от  $5,6 \pm 0,1$  до  $(12,3 \pm 0,6)$  мкм. Наблюдалась отрицательная корреляция между  $r_c$  и аэрозольным коэффициентом рассеяния вблизи подстилающей поверхности, но коэффициент корреляции был низким ( $r^2 = 0,24$ ), что можно отчасти объяснить некоррелированностью содержания аэрозоля в различных слоях атмосферы, а также спецификой метеорологических условий (вертикального сдвига ветра). Альbedo облаков и радиационное вынуждающее воздействие при измененном LWP очень чувствительны к эффектив-

ному радиусу капель. При зенитном угле Солнца, равном  $60^\circ$ , и при типичном значении  $LWP = 100$  г/м в различные дни  $r_c$  изменялось в пределах 5,8–10,2 мкм, а обусловленное уменьшением  $r_c$  снижение коротковолнового РВВ на уровне верхней границы атмосферы («эффект Туоми») достигало примерно  $1$  Вт/м<sup>2</sup>.

## 2. Численное моделирование взаимодействия аэрозоля и облаков

На основе использования методики параметризации переноса излучения в атмосфере, разработанной в Европейском центре среднесрочных прогнозов погоды, Pradelle и др. [27] получили оценки воздействия формирующегося над слоисто-кучевыми облаками слоя ПА, поступающего за счет дальнего переноса ПА во время пылевых бурь в Сахаре, на альbedo системы «океан — атмосфера — облака». Расчеты продемонстрировали наличие спада альbedo системы, достигающего в среднем 15%, что близко соответствует данным спутниковых наблюдений летом. В зимнее время года, когда ПА сосредоточен в слое пассатных ветров, влияние суперпозиции облаков и ПА, находящегося на том же уровне, что и облака, не способно объяснить наблюдаемое изменение альbedo системы. Согласие с данными наблюдений обеспечивается только при учете сложного взаимодействия ПА с облачным аэрозолем (каплями облаков) и с некоторыми малыми газовыми компонентами.

Следствием внутриоблачной «переработки» ПА оказывается существенное изменение его свойств. Численное моделирование показало, что наличие ПА в облаках может приводить к первоначальному уменьшению счетной концентрации облачных ядер конденсации, возрастанию эффективного радиуса капель и, в конечном счете, к спаду альbedo облаков. При некоторых условиях подобный спад может превосходить 10%, но, как правило, уменьшение альbedo варьирует в пределах 3–10%.

Анализ результатов численного моделирования, полученных с использованием мезомасштабной модели, обнаружил наличие на некоторой высоте углеродных (сажевых) частиц, возникающих зимой при пожарах в африканских саваннах). Трансформация ПА и присутствие поглощающего углеродного аэрозоля обуславливают понижение альbedo, превосходящее 10%, и, таким образом, объясняют результаты спутниковых наблюдений зимой в южной части исследованного региона. Полученные результаты свидетельствуют о важной роли пылевого аэрозоля как климатообразующего фактора, проявляющегося к западу от побережья Африки. Согласно полученным оценкам радиационное возмущающее воздействие за счет пылевого аэрозоля при наличии облаков: 1) в глобальных масштабах всегда положительно для толщи атмосферы; 2) проявляется вблизи верхней границы облаков (зимой) или на некоторой высоте (летом). Летом РВВ вблизи поверхности облаков оказывается отрицательным, но «перевешивается» вкладом положительного РВВ на уровне расположения пылевого слоя.

Yin и др. [35] предприняли численное моделирование влияния частиц пылевого (минерального) аэрозоля, функционирующих как облачные ядра конденсации, на динамику облачного покрова, осадков и изменение оптических свойств облаков. С этой целью применена двухмерная негидростатическая модель динамики облачности с детальным учетом микрофизических процессов. Первоначальная микроструктура аэрозоля, заданная в модели, представляет собой суперпозицию фоновых ОЯК и пылевого аэрозоля.

Полученные результаты указывают на то, что нерастворимые частицы пылевого аэрозоля становятся эффективными ОЯК после прохождения через конвективное облако. Их эффективность как ОЯК в этом случае возрастает, поскольку на поверхности частиц образуется слой сульфата, когда они сначала захватываются растущими водными каплями или ледяными кристаллами, а затем (в конечном счете) сульфат выбрасывается в атмосферу при испарении гидрометеоров. Проникая в облака, подобные частицы способствуют росту концентрации активированных капель и расширению их распределения по размерам.

Расчеты показали, что в континентальных облаках влияние «переработанных» облаками пылевых частиц состоит в ускорении образования частиц осадков, хотя интенсивность осадков зависит прежде всего от больших и гигантских ОЯК. В морских облаках добавление переработанного аэрозоля и пылевых частиц оказывает минимальное влияние на осадки, поскольку образование облаков начинается при наличии уже существующего большого количества крупных частиц. Добавочное поступление ОЯК в морские или континентальные облака ведет к росту их оптической толщины даже в тех случаях, когда уже произошло увеличение количества осадков.

В результате интенсивного сжигания биомассы в бассейне р. Амазонки в атмосфере образуется неоднородный слой дымового аэрозоля, охватывающий в течение сухого сезона (июнь—декабрь) территорию порядка миллионов км<sup>2</sup>. Возникающее в таких условиях сложное взаимодействие водяного пара, облачных ядер конденсации и радиационного возмущающего воздействия за счет поглощения коротковолновой радиации «черным» аэрозолем оказывает сильное влияние на процессы конвекции, формирования облачности и на свойства облаков. Выполненные ранее измерения в период сухого сезона обнаружили наличие устойчивого пространственного распределения водяного пара, но изменчивое распределение концентрации аэрозоля. Последнее означает, что оптические свойства облаков в регионе Амазонки должны меньше зависеть от метеорологических условий, чем от распределения концентрации ОЯК, которая сильно возрастает под влиянием дымового аэрозоля.

Для количественной оценки аэрозоля на оптические свойства облаков Roberts и др. [30] использовали одномерную модель облачности, позволяющую проанализировать зависимость условий роста

капель от физических и химических свойств аэрозоля. Измерения концентрации ОЯК сделаны при значениях пересыщения, равных 0,15 и 1,5%. Измеренные значения концентрации ОЯК в период сезона дождей были малыми и напоминали значения, соответствующие морским условиям. Наличие во время сухого сезона аэрозоля, образовавшегося за счет сжигания биомассы, обуславливало радикальное возрастание концентрации ОЯК. При этом изменения таких характеристик облаков, как эффективный радиус капель и максимальное пересыщение, оказались наиболее существенными при низкой концентрации ОЯК. Отсюда следует, что наиболее значительной межгодовой изменчивости свойств облаков можно ожидать для периодов влажного, а не сухого сезонов.

Из данных наблюдений следует, что различия между спектрами размеров ОЯК в зеленых и обезлесенных регионах во время сезона дождей оказываются умеренными и порождают лишь небольшие изменения свойств облачности по сравнению с изменениями, обусловленными контрастами между влажным и сухим периодами. Полученные результаты позволяют сделать вывод, что влияние обезлесивания на круговорот влаги и активность конвекции в течение сезона дождей определяется изменениями альбедо подстилающей поверхности под воздействием обезлесивания, а не облаков. С другой стороны, во время сухого сезона может происходить возрастание концентрации облачных капель до семи раз, что приводит к предсказываемому результатам численного моделирования увеличению эффективного радиуса капель примерно в два раза. Подобная трансформация может порождать максимальное косвенное аэрозольное РВВ, достигающее  $-27 \text{ Вт/м}^2$  в случае непоглощающих облаков.

Наличие поглощающих коротковолновую радиацию веществ в составе дымового аэрозоля обуславливает потемнение облаков в регионе Амазонки и, таким образом, уменьшение суммарного РВВ. Приближенные оценки свидетельствуют о том, что поглощение радиации дымовым аэрозолем может скомпенсировать примерно 50% максимального косвенного аэрозольного РВВ. Необходимы, однако, дальнейшие исследования, поскольку даже незначительные изменения химических и физических свойств аэрозоля способны существенно повлиять на кинетику аэрозоля и его активность как ОЯК. Для достоверной оценки воздействия дымового аэрозоля на климат недостаточно располагать лишь данными о спектре размеров ОЯК.

В 1950-х гг. и позднее были разработаны различные численные модели отдельных облаков и систем облачности с учетом зависящей от микроструктуры динамики облаков и от происходящих в облаках химических реакций. С целью экономии машинного времени во всех этих моделях использовались различные предположения, ограничивающие общность рассмотрения. Jacobson [14] начал новый этап численного моделирования, целью которого являются, в частности, воспроизведение динамики облаков и осадков с учетом множественной микроструктуры

аэрозоля и, с другой стороны, описание воздействия динамики облаков и осадков на вымывание аэрозоля из атмосферы.

Новая модель позволяет учесть: 1) влияние одновременной трансформации жидкой и ледяной фаз облаков на разнообразие микроструктуры аэрозоля; 2) диффузионно-форетические, термофоретические, гравитационные и другие процессы, а также процессы коагуляции, происходящие при наличии облачных капель, частиц льда, града и аэрозоля; 3) обусловленный внутриаэрозольным процесс «контактного замерзания» (CF) капель под воздействием внутриаэрозольного аэрозоля; 4) гетерогенное и гомогенное замерзание; 5) разрушение облачных капель; 6) коагуляцию между облачными каплями и кристаллами льда (с включенным в них аэрозолем) и внутриаэрозольным аэрозолем; 7) коагуляцию гидрометеоров осадков с внутри- и подоблачным аэрозолем, определяющую вымывание аэрозоля; 8) выпадения осадков и аэрозоля; 9) происходящие под облаками процессы испарения/сублимации с последующим образованием более мелких частиц гидрометеоров и ядер аэрозоля; 10) вымывание малых газовых компонентов; 11) химические реакции в водной фазе.

Результаты численного моделирования привели к следующим выводам: 1) процессы коагуляции гидрометеоров с гидрометеорами играют важную роль как факторы, контролируемые счетную концентрацию частиц аэрозоля в глобальных масштабах; 2) происходящие под облаками процессы вымывания (в результате коагуляции частиц гидрометеоров и аэрозоля) могут быть более важным механизмом уменьшения счетной концентрации аэрозоля в атмосфере, чем вымывание под воздействием осадков (противоположная ситуация имеет место в отношении массы аэрозоля); 3) существование двойных максимумов наблюдаемой микроструктуры облаков может быть отчасти обусловлено наличием различных характеристик активации у аэрозоля с неодинаковой микроструктурой; 4) выхолаживание, обусловленное испарением с поверхности капель в условиях ненасыщенного воздуха, может быть причиной замораживания капель (предлагается назвать этот процесс «испарительным замерзанием»); 5) влияние гетерогенно-гомогенного замерзания капель может проявляться на больших высотах в тропосфере, чем CF, но ни один из этих процессов не может оказывать существенного влияния на динамику теплых облаков или вымывание аэрозоля.

Наблюдаемые в верхней тропосфере облака при температуре в пределах от  $-20$  до  $-85$  °C принято называть перистообразными (перистыми, перистослоистыми и перисто-кучевыми). Установлено также, что слоистые, слоисто-кучевые, высокослоистые и перистые облака оказывают наибольшее воздействие на климат, определяемое их большой пространственной протяженностью. В рамках финансируемого Европейским сообществом проекта «Исследования облачности с помощью наземной и самолетной радиолокационной и лидарной аппаратуры» (CARL) Mavromatidis и Kallos [24] разработали региональную модель RAMS для численного модели-

рования процессов регионального масштаба в атмосфере, которая была применена для изучения образования ледяных кристаллов, а также образования и эволюции холодных облаков, наблюдавшихся в период осуществления программы полевых наблюдений в Palaiseau (Франция) в период с 26 апреля по 16 мая 1999 г.

Доплеровские радиолокационные (диапазон 3,2 мм – 94,9 ГГц) и лидарные (длина волны 532 нм) зондирования облаков были дополнены прямыми измерениями их характеристик с самолета-лаборатории «Merlin». Численные эксперименты с целью анализа чувствительности модели к параметру формы гамма-распределения частиц по размерам и к данным для инициализации позволили выявить наиболее существенные параметры, определяющие динамику перистых облаков (ПО), а сравнения с данными наблюдений – адекватность модели.

Результаты вычислений продемонстрировали способность модели достоверно воспроизводить такие характеристики ПО, как их пространственно-временная изменчивость и геометрические параметры. Детальные сравнения с данными самолетных наблюдений обнаружили значительные расхождения вычисленных и наблюдаемых значений водности облаков и счетной концентрации частиц малых размеров (2–47 мкм), что можно объяснить влиянием несовершенства «микрофизического» алгоритма и погрешностей измерений, но хорошее согласие в случае частиц промежуточных (25–800 мкм) и больших размеров (200–6400 мкм).

Наблюдаемые иногда расхождения в случаях больших частиц могут быть обусловлены неточностями определения границ облаков или возмущениями, вносимыми самолетом. Существенное влияние на результаты, относящиеся к нескольким первым часам численного моделирования, оказывает время инициализации модели. В целом модель RAMS оказалась способной достаточно адекватно воспроизвести большую часть параметров, определяющих образование холодных облаков при задании обычной метеорологической информации, а также данных наблюдений, определяющих начальные и граничные условия.

Kreidenweis и др. [21] выполнили сравнение моделей процессов вымывания аэрозоля из атмосферы и окисления  $\text{SO}_2$  в жидкой фазе с участием  $\text{H}_2\text{O}_2$  и  $\text{O}_3$ , происходящих в сопровождающих облака восходящих потоках воздуха. Приближенные модели, в которых учитываются лишь облачные капли одного размера, сопоставлены с моделями, обеспечивающими учет микроструктуры облаков и аэрозоля. Все модели воспроизводят рост облачных капель при задании логнормального распределения по размерам частиц аэрозоля из бисульфата аммония, а также последующие химические реакции в водной фазе во время адиабатического подъема воздуха.

В согласии с ранее полученными результатами использование моделей с учетом влияния микроструктуры облаков на химические реакции приводит к выводу о наличии в этом случае более интенсивного (в 2–3 раза) окисления за счет реакции

$\text{SO}_2 + \text{O}_3$ , что обусловлено зависимостью pH облачной воды от размера облачных капель. Все модели выявляют существование интенсивного вымывания частиц сухого аэрозоля, но вычисления счетной концентрации облачных капель дают различные значения, варьирующие в пределах  $275\text{--}358 \text{ см}^{-3}$ .

Подобные расхождения обусловлены различиями параметризации усвоения газовых компонентов, термодинамики растворов и некоторых других процессов. Расхождения вычисленных значений счетной концентрации капель могут трансформироваться в существенные изменения оптической толщины (до 9%) и альбедо (до 2%) облаков. Численное моделирование показало, что изменения микроstructures аэрозоля чувствительны к счетной концентрации образующихся облачных капель, причем различия трансформированной микроstructures аэрозоля могут породить достигающие 13% изменения коэффициентов экстинкции света. Полученные результаты иллюстрируют важную роль, которую играет адекватность параметризации упомянутых процессов в моделях климата.

Feingold и Kreidenweis [6] выполнили теоретический анализ процессов «переработки» аэрозоля облаками с учетом столкновений между частицами аэрозоля и облаков и химических реакций в водной фазе. С этой целью осуществлено численное моделирование, которое позволило воспроизвести воздействия крупномасштабных вихрей, а также: 1) микроstructures аэрозоля; 2) зависящих от размеров частиц микрофизических процессов; 3) трансформации сернистого газа в сульфат в ходе химических процессов в водной фазе.

Полученные ранее оценки показали, что результаты переработки аэрозоля в морском пограничном слое атмосферы, «накрытом» слоисто-кучевыми облаками, в сильной степени зависят от водосодержания облаков, концентрации аэрозоля, малых газовых компонентов и времени взаимодействия частиц аэрозоля и облачных капель. В новой модели реализован учет изменчивости всех этих параметров в масштабах крупных вихрей (порядка нескольких сотен метров) и для временных масштабов порядка нескольких секунд.

Для анализа роли различных процессов взаимодействия аэрозоля и облаков рассмотрено несколько сценариев: 1) относительно низкая счетная концентрация аэрозоля, при которой переработка аэрозоля через посредство химических реакций в водной фазе не оказывает существенного влияния на образование мороси; 2) промежуточный уровень концентрации относительно больших частиц, когда химические реакции в водной фазе подавляют развитие мороси; 3) промежуточные значения концентрации частиц относительно малых размеров и усиление образования мороси под влиянием реакций в водной фазе.

Результаты численного моделирования, относящиеся к перечисленным ситуациям, свидетельствуют о важной роли химических процессов в водной фазе, способных оказывать существенное влияние на динамику и микрофизику слоисто-кучевых облаков, а также иллюстрируют сложное взаимодействие рас-

сматриваемых процессов. Последнее отображает трудности параметризации процессов переработки аэрозоля облаками, характеризующихся наличием большого числа обратных связей.

Важное значение для надежности численного моделирования динамики атмосферного аэрозоля, а также для решения связанных с этим задач определения метеорологической дальности видимости, изучения гетерогенных химических реакций в атмосфере и радиационного возмущающего воздействия имеет адекватное задание микроstructures аэрозоля. В рамках модели «мелких» слоистообразных облаков, наблюдавшихся в период второго аэрозольного эксперимента, Zhang и др. [36] изучили влияние параметризации микроstructures аэрозоля на результаты численного моделирования взаимодействия аэрозоля и облаков на основе использования одномерной модели «климат — аэрозоль — химические процессы». Рассмотрены модальный (при прогнозируемых счетной концентрации и массе аэрозоля — Modal-NM или счетной концентрации, площади поверхности и массе частиц — Modal-NSM) и секционный подходы (при учете 12 или 36 градаций размеров частиц), использование которых позволяет предвычислить суммарную счетную концентрацию и массу частиц аэрозоля. Однако применение модального подхода (Modal-M), когда рассматривается прогнозическая масса аэрозоля, но задается счетная концентрация, не обеспечивает получения надежных результатов.

Достоверность параметризации микроstructures аэрозоля существенно зависит от детальности ее представления. Значения нормированных расхождений достигают 12 и 37% при учете соответственно 36 и 12 градаций размеров частиц. Применительно к модальным представлениям Modal-NSM, Modal-SM и Modal-M соответствующие расхождения равны 30, 39 и 179%. Все представления (за исключением Modal-M) позволяют правильно рассчитать водосодержание и оптическую толщину облаков, а также аэрозольную экстинкцию. Дальнейшее развитие обсуждаемой разработки предполагает рассмотрение более реалистической модели аэрозоля с учетом совокупности различных мод и варьирующего химического состава аэрозоля (состав частиц может оказывать существенное воздействие на число активированных частиц аэрозоля, что имеет важное значение для достоверности оценок косвенного РВВ). Существенную роль в эволюции микроstructures аэрозоля могут играть такие процессы, не учтенные в обсуждаемой работе, как внутриоблачное вымывание частиц аэрозоля, слияние капель и влажное осаждение. Требуют уточнения параметры процесса активации аэрозоля. Остается неизученным влияние процессов взаимодействия между аэрозолем и облаками на микроstructure как аэрозоля, так и облаков.

Происхождение частиц морского аэрозоля (в том числе ОЯК) остается недостаточно изученным. Один из важнейших его компонентов — солевые частицы, попадающие в атмосферу при «взрывах» морских брызг. Их размеры варьируют в пределах  $0,1\text{--}300 \text{ мкм}$ , а счетная концентрация зависит от скорости



ветра. Помимо этого, имеют место процессы газофазного образования частиц несолевого аэрозоля, протекающие как вторичная и третичная нуклеация, гетерогенная нуклеация и конденсация. В морском пограничном слое атмосферы (МПСА), в регионах Арктики и Антарктики, наблюдалось также образование *in situ* ультрамелких частиц нуклеационного аэрозоля диаметром меньше 0,003 мкм. Одним из возможных источников аэрозоля в этих случаях служит окисление диметилсульфида (DMS), приводящее к образованию частиц сульфатов (DMS выбрасывается в атмосферу морским фитопланктоном). На побережьях (при низких приливах) наблюдалось почти ежедневное образование, а в бореальных лесах примерно 50 раз в год, ультрамелких частиц биогенного происхождения.

На основе использования данных наблюдений и численного моделирования с применением модели AEROFOR-2 газофазных химических процессов Pirjola и др. [25] изучили образование и эволюцию свойств новых частиц нуклеационного аэрозоля в МПСА вблизи побережья. Прибрежные зоны известны как интенсивный природный источник частиц аэрозоля, а также биогенных газообразных соединений, которые могут конденсироваться на частицах аэрозоля, обуславливая рост их размеров. Выполнено численное моделирование мгновенной скорости нуклеации при задании различных уровней выбросов биогенных газообразных соединений, результаты которого продемонстрировали возможность образования частиц нуклеационной моды аэрозоля при счетной концентрации порядка  $10^5$ – $10^6$  см<sup>-3</sup>, соответствующей наблюдаемой.

Согласно полученным оценкам мгновенная скорость нуклеации должна варьировать (для воспроизведения наблюдаемых величин концентрации) в пределах  $3 \cdot 10^5$  –  $3 \cdot 10^6$  см<sup>-3</sup> · с<sup>-1</sup>, а мощность источников конденсируемых газообразных соединений должна достигать  $5 \cdot 10^7$  см<sup>-3</sup> · с<sup>-1</sup>. Значительная часть вновь образовавшихся частиц нуклеационного аэрозоля может в дальнейшем преобразовываться в облачные ядра конденсации в процессе последующей эволюции в течение промежутка времени более 3 сут в условиях ясного неба при наблюдаемых уровнях пересыщения в облаках МПСА. Подобные ОЯК могут вносить существенный вклад в формирование косвенного влияния аэрозоля на радиационное возмущающее воздействие. При этом уровень концентрации ОЯК зависит главным образом от степени коагуляции частиц аэрозоля и конденсации биогенных газообразных соединений и в меньшей степени — от конденсации H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, образующейся за счет окисления DMS.

Во всех рассмотренных случаях численного моделирования имело место увеличение счетной концентрации ОЯК более чем на 100% при пересыщении, превосходящем 0,35%. В период низкого уровня прилива состав частиц мод нуклеационной и Айткена претерпевает существенные изменения, порождающие почти полную нерастворимость частиц, тогда как изменения частиц аккумуляционной моды оказываются менее значительными. Благодаря про-

исходящему позднее усилению выбросов DMS в атмосферу происходит, однако, постепенное возрастание доли растворимой фракции частиц мод Айткена и нуклеационной и, таким образом, усиливается их потенциал как источника ОЯК.

Имеющиеся данные наблюдений свидетельствуют о том, что атмосферный аэрозоль (также, как и осадки), как правило, содержит бактерии. «Облачные» бактерии способны к активному росту и репродукции при температуре ниже 0 °С. Вагер и др. [3] исследовали способность бактерий, существующих в аэрозоле и облачной воде, пробы которых были взяты в удаленном горном районе Австрии, функционировать в качестве облачных ядер конденсации. Средние значения концентрации бактерий составляли 8 образующих колонии единиц (CFU)/м<sup>3</sup> в случае проб аэрозоля и до 79 CFU/мл для проб облачной воды. Совокупность исследованных бактерий включала как грамположительные, так и грамотрицательные, но не способные к образованию ледяных частиц виды.

Эксперименты с использованием счетчика ОЯК показали, что при пересыщениях в пределах 0,07–0,11% все типы бактерий способны функционировать как ОЯК. Поскольку размеры бактерий были меньше диаметров Кельвина при соответствующих уровнях пересыщения, физико-химические свойства их внешних клеток должны были способствовать усилению их активности как ОЯК. Если иметь в виду, что счетная концентрация бактерий в атмосферном аэрозоле на порядки величины меньше обычной концентрации ОЯК (порядка 100–200 см<sup>-3</sup>), то становится ясным, что реальный вклад бактерий как ОЯК в образование водных облаков, по-видимому, незначителен. Если, однако, бактерии обладают способностью нуклеации ледяных частиц, то не исключена их существенная роль в процессах оледенения облаков.

Iversen и Seland [13a] выполнили численное моделирование климата на основе использования разработанной в Национальном центре исследований атмосферы (США) модели NCAR CCM3 с включением в эту модель блоков, интерактивно воспроизводящих круговороты сульфата (SO<sub>4</sub>) и «черного» углерода (BC). Параметризация круговорота серы учитывает выбросы диметилсульфида Мировым океаном, SO<sub>2</sub>, а также природные и антропогенные выбросы сульфата. Круговорот BC воспроизведен как обусловленный сжиганием биомассы и ископаемых топлив. Химические и физические процессы, ответственные за образование и трансформацию аэрозоля, воспроизведены при априорно заданных уровнях концентрации окислителей и фонового аэрозоля морского, континентального и полярного происхождения. В случае химических процессов в водной фазе рассмотрена зависимость от скорости обмена в облачной и в безоблачной атмосфере.

При уровнях глобальных выбросов различных компонентов, определяемых данными Межправительственной группы экспертов по проблеме изменений климата (МГЭИК), время жизни (круговорота) оказалось равным (в сут): 1,5 (SO<sub>2</sub>); 3,5 (SO<sub>4</sub>) и 4,7 (BC) в 2000 г. и (соответственно прогностическому

сценарию выбросов A2) 1,6 ( $\text{SO}_2$ ); 4,0 ( $\text{SO}_4$ ) и 4,7 (BC) в 2100 г. Рассчитанные значения концентрации различных соединений  $\text{SO}_x$  согласуются с данными наземных наблюдений в Северной Америке и Западной Европе, а также с данными о концентрации  $\text{SO}_4$  в свободной тропосфере с точностью до коэффициента, равного 2. В случае BC подобные расхождения достигают порядка величины.

Вычисленные значения концентрации BC и  $\text{SO}_4$  оказались заниженными по сравнению с измеренными зимой в Арктике примерно в 10 раз, что можно отчасти объяснить влиянием очень сильной изменчивости условий облачности. Напротив, рассчитанные значения наземной концентрации BC и  $\text{SO}_4$  в низких широтах завышены примерно в 10 раз. Такого рода значительные расхождения объясняются неучетом в модели процессов переноса и заниженной эффективности вымывания в конвективных облаках. В этой связи осуществлены специальные численные эксперименты с целью оценки чувствительности результатов численного моделирования к учету процессов в облаках. Анализ этих оценок показал, что уровни концентрации  $\text{SO}_4$  и BC очень чувствительны к процессам вертикального переноса и вымывания в конвективных облаках. Необходимо, таким образом, совершенствование методик параметризации процессов в облаках, а также взаимодействия аэрозоля и облаков.

Атмосферный аэрозоль состоит из сотен или даже тысяч органических и неорганических соединений, причем важное подмножество частиц аэрозоля составляют облачные ядра конденсации, которые играют критически важную роль в образовании облачных капель. Понимание процессов функционирования ОЯК серьезно осложняют неадекватность информации об органической фракции аэрозоля и недостаточная достоверность описания взаимодействия между органическим и неорганическим компонентами аэрозоля. Экспериментальные лабораторные исследования ОЯК были ограничены главным образом рассмотрением либо полидисперсного аэрозоля сложного химического состава, существующего в условиях реальной атмосферы, либо отдельных компонентов аэрозоля, созданных в лаборатории.

Выполненные ранее исследования обнаружили широкий диапазон изменчивости способности различных отдельных соединений стимулировать образование частиц аэрозоля. Если некоторые органические соединения проявляют подобную способность лишь в слабой степени, то другие соединения могут быть столь же активными, что и неорганические соли. ОЯК обычно состоят из смеси многих органических и неорганических соединений, взаимодействия между которыми в процессе образования облачных капель остаются до сих пор плохо изученными.

В связи с этим Raymond и Pandis [29] предприняли исследование способности частиц ОЯК, обладающих многокомпонентным составом, стимулировать процесс образования облачных капель и их свойств. Выполнены лабораторные эксперименты с использованием внутренне перемешанных многокомпонентных частиц, а также частиц, состоящих из ядра, покры-

того гексадеканом. Компонентами химического состава частиц служили хлористый калий, сульфат аммония, пиноничная, пиничная, норпиничная и глутаминовая кислоты, лейцин и гексадекан. Комбинированное применение tandemного дифференциального анализатора подвижности (TDMA) и термического диффузионного счетчика ОЯК (CCNC) позволило осуществлять измерения диаметра активации частиц. Эксперименты сделаны при «сухом» диаметре частиц в пределах 0,02–0,2 мкм для уровней пересыщения, равных 0,3 и 1%.

Данные лабораторных измерений параметров процесса образования облачных капель сопоставлены с результатами теоретических расчетов, исходящих из предположения об аддитивности вкладов отдельных компонентов химического состава ОЯК. Подобное предположение можно считать адекватным в случае расчетов активационного диаметра ОЯК смешанного состава. Полученные результаты свидетельствуют о том, что покрытие частиц гексадеканом, объем которого составляет до 96% общего объема частиц, не влияет на активность ядер частиц как ОЯК, что согласуется с результатами, полученными ранее для частиц, ядра которых составлял сульфат аммония. Сильное воздействие на диаметр активации оказывает добавление 1%-го раствора поваренной соли.

Kärcher и Lohmann [15] предложили методику параметризации образования перистых облаков, основанную на рассмотрении однородного замерзания частиц, в которой учтено влияние размеров частиц аэрозоля, функционирующих как облачные ядра конденсации, на процесс замерзания в совершающей адиабатический подъем воздушной частице. Подобное влияние может стать существенным в таких условиях, когда постоянная времени процесса замерзания является короткой по сравнению с масштабом времени процесса роста первоначальных частиц льда. Выполнена валидация новой схемы параметризации с использованием результатов численного моделирования динамики воздушной частицы. Проанализирована связь между счетными концентрациями частиц аэрозоля и ледяных частиц в перистых облаках, образующихся посредством процесса однородного замерзания. Эта связь оказалась гораздо более слабой, чем для водных облаков, состоящих из жидких капель. В работе [15] продемонстрировано, что даже участие в процессе замерзания обладающего высокой концентрацией вулканического аэрозоля не оказывает существенного влияния на формирование перистых облаков. Таким образом, для кристаллических облаков механизм Туоми влияния аэрозоля на свойства облаков не оказывает столь сильного воздействия как для водных облаков.

Gao и др. [8] выполнили прямые (*in situ*) измерения относительной влажности воздуха по отношению ко льду ( $RH_i$ ) и концентрации паров азотной кислоты ( $\text{HNO}_3$ ) в природных перистых облаках и в «инверсионных следах» самолетов в верхней тропосфере. Согласно данным этих измерений, при температуре  $T < 202$  К в обоих рассматриваемых случаях происходит резкое повышение  $RH_i$  до средних

значений более 130%. Подобное возрастание  $RH_i$  можно объяснить наличием нового класса частиц льда ( $\Delta$ -ice), содержащих  $\text{HNO}_3$ . Предполагается, что находящиеся на поверхности частиц молекулы  $\text{HNO}_3$  препятствуют достижению равновесия в системе «лед/водяной пар» за счет функционирования механизма, аналогичного наблюдаемому при понижении точки замерзания протеинов, используемых в качестве антифриза. Наличие частиц  $\Delta$ -ice определяет существование новой связи между глобальным климатом и природными, а также антропогенными выбросами окислов азота. Отсюда следует, что учет  $\Delta$ -ice в численных моделях климата должен привести к изменениям предвычисляемых свойств перистых облаков и распределения водяного пара в верхней тропосфере.

Исследуя процессы в перистых облаках, формирующихся в наковальных облаках вертикального развития, Fridlind и др. [7] пришли к выводу, что, как правило, кристаллы льда в перистых облаках образуются на облачных ядрах конденсации, которыми служат частицы аэрозоля, находящиеся в средней тропосфере, а не в пограничном слое атмосферы, как это предполагалось ранее. Следовательно, значительное влияние на формирование облаков в наковальных может оказывать аэрозоль, являющийся продуктом переноса из отдаленных источников загрязнений.

Перспективное направление разработок в контексте взаимодействия аэрозоля и облаков возникает в связи с недавно обнаруженной взаимосвязью между серебристыми облаками в мезосфере и существующим на той же высоте слоем атомов железа [12, 26].

Доминирующей особенностью климата Арктики является формирование инверсий температуры и влажности, особенно в течение холодной половины года. Температурные инверсии обусловлены влиянием радиационного выхолаживания, адвекции теплого воздуха, нисходящих движений, процессов в облаках, таяния на уровне подстилающей поверхности и топографии. Формированию инверсий влажности благоприятствуют осадки в форме кристаллов льда, что порождает уменьшение влажности нижних слоев атмосферы. Информация о количестве облаков в Арктике получена главным образом по данным наземных наблюдений, согласно которым имеет место годовой ход суммарной облачности с максимумом летом (до 90%) и минимумом зимой (40–60%). Сравнение спутниковых данных по количеству облаков с наземными показало, что первые дают более высокие оценки (в пределах 5–35%).

Хотя для воспроизведения динамики климата в Арктике использовались весьма сложные модели общей циркуляции атмосферы, несомненно, что применяемая в этих моделях параметризация динамики облачности и радиации не может рассматриваться как реалистическая. С целью изучения реальной динамики облаков смешанного состава и ледяных облаков и их влияния на перенос излучения Lohmann и др. [22] предприняли численное моделирование с использованием мезомасштабной модели GESIMA. Результаты моделирования проиллюстрированы рассмотрением конкретных ситуаций по данным наблю-

дений 16 и 28–29 апреля 1998 г. на дрейфующей станции (SHEBA) в рамках Арктического эксперимента по изучению облаков (ACE), являвшегося частью программы FIRE Первого регионального эксперимента по спутниковой климатологии облачного покрова.

Сравнение результатов численного моделирования с данными наблюдений продемонстрировало способность модели GESIMA адекватно воспроизвести положение границ облачного покрова, ледо- и водосодержание облаков, а также эффективный радиус частиц облаков. Расчеты, относящиеся к условиям чистой и загрязненной антропогенным аэрозолем атмосферы, показали, что присутствие аэрозоля существенно изменяет микрофизические параметры облаков (ведет к росту счетной концентрации мелких капель) и, таким образом, влияет на осадки. В противоречии с полученными ранее результатами оказалось, что в загрязненном облаке происходит усиление аккреции кристаллов снега и облачных капель, благодаря наблюдающейся в загрязненном облаке более высокой счетной концентрации капель. Наряду с этим имеет место уменьшение скорости автоконверсии облачных капель и аккреции капель мороси снегом из-за прекращения в загрязненном облаке процессов столкновений и слияний.

Суммарным результатом двух противоположно направленных изменений при росте концентрации аэрозоля от 100 до 1000 частиц/см<sup>3</sup> оказывается спад осадков при наличии загрязненной атмосферы. Количество осадков, выпадающих на подстилающую поверхность, критически зависит от формы кристаллов. Если предположить присутствие агрегатов кристаллов, то десятикратное увеличение концентрации аэрозоля приводит к возрастанию количества накопленного снега на 40% после 7 ч численного моделирования, тогда как в случае плоских кристаллов возникает уменьшение количества снега на 30%. Подобный контраст объясняется более высокой эффективностью аккреции кристаллов снега с облачными каплями при наличии агрегатов.

Значительный интерес в контексте обсуждаемой проблематики представляют полярные стратосферные облака (ПСО), которые играют двоякую роль в процессе разрушения стратосферного озона в полярных регионах: 1) на поверхности частиц ПСО происходит активация галогенов; 2) седиментация содержащих азотную кислоту наиболее крупных (радиус  $r > 5$  мкм) частиц ПСО благоприятствует денитрификации, что ослабляет деактивацию хлора и, таким образом, усиливает каталитически обусловленное разрушение озона. Крупные частицы, содержащие  $\text{HNO}_3$  и имеющие малую счетную концентрацию ( $N \approx 10^{-4}$  см<sup>-3</sup>,  $r \gtrsim 10$  мкм), наблюдались в арктических ПСО, имеющих синоптические масштабы. Напротив, ПСО, возникающие в орографических волнах, характеризуются относительно малыми горизонтальными масштабами (порядка нескольких тысяч км<sup>2</sup>) и возникают в условиях холодного климата за счет адиабатического смещения воздушных масс.

При этом в орографических ПСО наблюдались различные типы частиц. Если процесс выхолажива-

## Заключение

ния происходит достаточно медленно, при температуре 2–3 К выше точки льда ( $T_{ice}$ ), то стратосферный сернокислотный аэрозоль ( $H_2O/H_2SO_4$ ) усваивает значительное количество азотной кислоты и водяного пара, что определяет образование капель переохлажденного тройного раствора (STS). При температуре примерно на 3 К ниже  $T_{ice}$  в частицах STS происходит нуклеация льда. В направлении потока воздуха от арктических ледяных облаков наблюдались твердые частицы, которые вероятнее всего состоят из тригидрата азотной кислоты ( $NAT = HNO_3 \cdot 3H_2O$ ).

Согласно имеющимся данным наблюдений, NAT входит в состав ПСО и играет важную роль в седиментационной денитрификации, усиливающей катализируемое хлором разрушение озона. Остается, однако, загадочным механизм образования NAT. Luo и др. [23] показали, что хотя наблюдаемое в орographicеских волнах сильное выхолаживание ограничивает уровень насыщения, характеризующий NAT ( $S_{NAT} = P_{HNO_3}^{part} / P_{HNO_3}^{var} \gtrsim 30$ , где  $P$  — парциальное давление за счет частиц (part) и газообразного (var) NAT) в переохлажденном тройном растворе капель, в условиях газовой фазы возможно  $S_{NAT} \gtrsim 500$ . Как показали лабораторные эксперименты, при столь высоких уровнях пересыщения происходят осаждение и нуклеация NAT на поверхности ледяных или других твердых частиц до тех пор, пока они не оказываются покрытыми STS.

На основе использования данных наблюдений в Арктике в течение трех зим в сочетании с численной моделью микрофизических и оптических свойств частиц в работе [23] предложена простая методика параметризации процесса осаждения и нуклеации NAT, скорость которого зависит только от уровня пересыщения NAT и температуры. Полученные результаты свидетельствуют о возможности объяснения образования частиц NAT при их счетной концентрации порядка  $10 \text{ см}^{-3}$  с учетом осаждения и нуклеации NAT на поверхности ледяных частиц при наличии газообразного NAT в условиях экстремально высоких уровней пересыщения.

Luo и др. [23] обсудили возможности функционирования метеоритного вещества как фактора, обеспечивающего развитие гетерогенных реакций и нуклеацию NAT. Частицы микрометеоритов размером  $> 0,1 \text{ мкм}$  при их счетной концентрации около  $10^{-5} \text{ см}^{-3}$  не могут обеспечить образование высокой концентрации частиц NAT, наблюдаемой в ПСО в орographicеских волнах. При наличии метеорной пыли с радиусом частиц около 5–10 мкм и при высокой счетной концентрации суммарная поверхность частиц метеоров оказывается на два–три порядка величины меньше максимальной поверхности ледяных частиц. Поскольку  $S_{NAT}$  над поверхностью неледяных частиц в 4 раза больше, а скорость нуклеации NAT на поверхности метеоритных частиц неизвестна, не исключено, что нуклеация NAT может быть в этом случае существенной. Подтверждающие это предположение данные наблюдений пока что отсутствуют.

Наличие многих нерешенных проблем взаимодействия атмосферного аэрозоля и облаков свидетельствует о необходимости дальнейших исследований, актуальность которых определяется прежде всего ключевым значением этих проблем для понимания и количественной оценки аэрозольно-облачного воздействия на климат. Программа дальнейших исследований должна включать взаимно согласованные полевые наблюдательные эксперименты и численное моделирование. Хорошим примером подобных усилий могут служить описанные Herrmann и Wolke [11] такого рода разработки в рамках программы FEBUKO — полевых исследований бюджетов и трансформации органического аэрозоля в контексте динамики облачного покрова в тропосфере, и MODMEP — численного моделирования многофазных процессов в тропосфере с учетом динамики и химических реакций.

1. Кондратьев К.Я. Глобальные изменения климата: данные наблюдений и результаты численного моделирования // Исслед. Земли из космоса. 2004. № 2. С. 61–96.
2. Andreae M.O., Rosenfeld D., Artaxo P., Costa A.A., Frank G.P., Longo K.M., Silva-Dias M.A.F. Smoking rain clouds over the Amazon // Science. 2004. V. 303. N 5662. P. 1337–1342.
3. Bauer H., Giebl H., Hitzemberger R., Kasper-Giebl A., Reische G., Zibuschka F., Puxbaum H. Airborne bacteria as cloud condensation nuclei // J. Geophys. Res. D. 2003. V. 108. N 21. P. AAC 2/1 — AAC 2/5.
4. Decesari S., Facchini M.C., Mircea M., Cavalli F., Fuzzi S. Solubility properties of surfactants in atmospheric aerosol and cloud/fog samples // J. Geophys. Res. D. 2003. V. 108. N 21. P. AAC 6/1 — AAC 6/9.
5. Feingold G. Modeling of the first indirect effect: Analysis of measurement requirements // Geophys. Res. Lett. 2003. V. 30. N 19. P. ASC 7/1 — ASC 7/4.
6. Feingold G., Kreidenweis S.M. Cloud processing of aerosol as modulated by a large eddy simulation with coupled microphysics and aqueous chemistry // J. Geophys. Res. D. 2002. V. 107. N 23. P. AAC 6/1 — AAC 6/15.
7. Fridlind A.M., Ackerman A.S., Jensen E.S., Heymsfield A.J., Poellot M.R., Stevens D.E., Wang D., Miloshevich L.M., Baumgardner D., Lawson R.P., Wilson J.C., Flagan R.P., Seinfeld J.H., Jonsson H.H., Van Reken T.M., Varutbangkul V., Rissman T.A. Evidence for the predominance of mid-tropospheric aerosols as subtropical anvil cloud nuclei // Science. 2004. V. 304. N 5671. P. 718–722.
8. Gao R.S., Popp D.J., Fahey D.W., Marey T.P., Herman R.L., Weinstock E.M., Baumgardner D.G., Garrett T.J., Rosenlof K.H., Thompson T.L., Bui P.T., Ridley B.A., Wofsy S.C., Toon O.B., Tolbert M.A., Kärcher B., Peter Th., Hudson P.K., Weinheimer A.J., Heymsfield A.J. Evidence that nitric acid increases relative humidity in low-temperature cirrus clouds // Science. 2004. V. 303. N 5657. P. 516–520.
9. Graf H.-F. The complex interaction of aerosols and clouds // Science. 2004. V. 303. P. 1309–1311.
10. Guibert S., Snider J.R., Brenguier J.-L. Aerosol activation in marine stratocumulus clouds. 1. Measurement validation for a closure study // J. Geophys. Res. D. 2003. V. 108. N 15. P. CMP 2/1 — CMP 2/17.
11. Herrmann H., Wolke R. FEBUKO/MODMEP-team. A coupled field and modelling study on aerosol-cloud interaction — Field Investigations of Budgets and Conversions of Particle Phase Organics in Tropospheric Cloud Processes

- (FEBUKO) and – Modelling of Tropospheric Multiphase Processes: Tools and Chemical Mechanisms (MODMEP) // AFO 2000 Newsletter. 2004. N 6. P. 3–10.
12. *Hunten D.M.* An iron deficiency in polar mesospheric clouds // *Science*. 2004. V. 304. N 5669. P. 395–396.
  13. *IPCC Third Assessment Report*. V. 1. Climate Change 2001. The Scientific Basis. Cambridge University Press., 2001. 881 p.
  - 13a. *Iversen T., Seland Ø.* A scheme for process-tagged SO<sub>4</sub> and BC aerosols in NCAR CCM 3: Validation and sensitivity to cloud processes // *J. Geophys. Res. D*. 2002. V. 107. N 24. P. AAC 4/1 – AAC 4/30.
  14. *Jacobson M.Z.* Development of mixed-phase clouds from multiple aerosol size distributions and the effect of the clouds on aerosol removal // *J. Geophys. Res. D*. 2003. V. 108. N 8. P. AAC 4/1 – AAC 4/23.
  15. *Kärcher B., Lohmann U.* A parameterization of cirrus cloud formation: Homogeneous freezing including effects of aerosol size // *J. Geophys. Res. D*. 2003. V. 108. N 23. P. AAC 9/1 – AAC 9/10.
  16. *Kim B.-G., Schwartz S.E., Miller M.A., Min Q.* Effective radius of cloud droplets by ground-based remote sensing: Relationship to aerosol // *J. Geophys. Res. D*. 2003. V. 108. N 23. P. AAC 8/1 – AAC 8/20.
  17. *Koch D., Park J., Del Genio A.* Clouds and sulfate are anticorrelated: A new diagnostic for global sulfur models // *J. Geophys. Res. D*. 2003. V. 108. N 24. P. AAC 10/1 – AAC 10/15.
  18. *Kondratyev K.Ya.* Multidimensional Global Change. Wiley/PRAXIS. Chichester, U. K. 1998. 761 p.
  19. *Kondratyev K.Ya., Grigoryev A.A., Varotsos C.A.* Environmental Disasters: Anthropogenic and Natural. Springer/PRAXIS. Chichester, U. K. 2002. 484 p.
  20. *Koren I., Kaufman Y.J., Remer L.A., Martins J.V.* Measurement of the effect of Amazon smoke on inhibition of cloud formation // *Science*. 2004. V. 303. N 5662. P. 1342–1345.
  21. *Kreidenweis S.M., Walcek C.J., Feingold G., Gong W., Jacobson M.Z., Kim C.-H., Liu X., Penner J.E.* Modification of aerosol mass and size distribution due to aqueous-phase SO<sub>2</sub> oxidation in clouds: Comparisons of several models // *J. Geophys. Res. D*. 2003. V. 108. N 7. P. AAC 4/1 – AAC 4/12.
  22. *Lohmann U., Zhang J., Pi J.* Sensitivity studies of the effect of increased aerosol concentrations and snow crystal shape on the snow fall rate in the Arctic // *J. Geophys. Res. D*. 2003. V. 108. N 11. P. AAC 6/1 – AAC 6/17.
  23. *Luo B.P., Voigt C., Fueglistaler S., Peter T.* Extreme NAT supersaturations in mountain wave ice PSCs: A clue to NAT formation // *J. Geophys. Res. D*. 2003. V. 108. N 15. P. 4/1 – 4/10.
  24. *Macromatidis E., Kallos G.* An investigation of cold cloud formation with a three-dimensional model with explicit microphysics // *J. Geophys. Res. D*. 2003. V. 108. N 14. P. AAC 14/1 – AAC 14/21.
  25. *Pirjola L., O'Dowd C.D., Kulmala M.* A model prediction of the yield of cloud condensation nuclei from coastal nucleation events // *J. Geophys. Res. D*. 2002. V. 107. N 19. P. PAR 3/1 – PAR 3/15.
  26. *Plane J.M.C., Murray B.J., Chu X., Gardner C.S.* Removal of meteoric iron on polar mesospheric clouds // *Science*. 2004. V. 304. N 5669. P. 426–428.
  27. *Pradelle F., Cautenet G., Jankowiak I.* Radiative and microphysical interactions between marine stratocumulus clouds and Saharan dust. 1. Remote sensing observations // *J. Geophys. Res. D*. 2002. V. 107. N 19. P. AAC 15/1 – AAC 15/12.
  28. *Pradelle F., Cautenet G.* Radiative and microphysical interactions between marine stratocumulus clouds and Saharan dust. 2. Modeling // *J. Geophys. Res. D*. 2002. V. 107. N 19. P. AAC 16/1 – AAC 16/15.
  29. *Raymond T.M., Pandis S.N.* Formation of cloud drops by multicomponent organic particles // *J. Geophys. Res. D*. 2003. V. 108. N 15. P. AAC 10/1 – AAC 10/8.
  30. *Roberts G.C., Neues A., Seinfeld J.H., Andreae M.O.* Impact of biomass burning on cloud properties in the Amazon Basin // *J. Geophys. Res. D*. 2003. V. 108. N 2. P. AAC 9/1 – AAC 9/19.
  31. *Rudich Y., Sagi A., Rosenfeld D.* Influence of the Kuwait oil fires plume (1991) on the microphysical development of clouds // *J. Geophys. Res. D*. 2003. V. 108. N 15. P. AAC 14/1 – AAC 14/8.
  32. *Sekiguchi M., Nakajima T., Suzuki K., Kawamoto K., Higurashi A., Rosenfeld D., Sano I., Mukai S.* A study of the direct and indirect effects of aerosol using global satellite data sets of aerosol and cloud parameters // *J. Geophys. Res. D*. 2003. V. 108. N 22. P. AAC 4/1 – AAC 4/15.
  33. *Sellegrì K., Laj P., Dupuy R., Legrand M., Premkert S., Putaud J.-P.* Size-dependent scavenging efficiencies of multicomponent atmospheric aerosols in clouds // *J. Geophys. Res. D*. 2003. V. 108. N 11. P. AAC 3/1 – AAC 3/15.
  34. *Van Reken T.M., Rissman T.A., Roberts G.C., Varutbangkul V., Jonsson H.H., Flagan R.C., Seinfeld J.H.* Toward aerosol / cloud condensation nuclei (CCN) closure during CRYSTAL-FACE // *J. Geophys. Res. D*. 2003. V. 108. N 20. P. AAC 2/1 – AAC 2/18.
  35. *Yin Y., Wurzler S., Levin Z., Reisin T.G.* Interactions of mineral dust particles and clouds: Effects on precipitation and cloud optical properties // *J. Geophys. Res. D*. 2002. V. 107. N 23. P. AAC 19/1 – AAC 19/14.
  36. *Zhang Y., Easter R.C., Ghan S.J., Abdul-Razzak H.* Impact of aerosol size representation on modeling aerosol-cloud interaction // *J. Geophys. Res. D*. 2002. V. 107. N 21. P. AAC 4/1 – AAC 4/17.

***K.Ya. Kondratyev. From nano- to global scales: properties, processes of formation, and aftereffects of the atmospheric aerosol impacts. 4. Interaction of aerosol and clouds.***

The processes of interaction between the atmospheric aerosol and clouds are reviewed.