

Аэрозольное воздействие на климатические процессы

Л.С. Ивлев*

*Санкт-Петербургский государственный университет
г. Санкт-Петербург, 198504, Петергоф, ул. Ульяновская, 1*

Поступила в редакцию 14.12.2010 г.

Обсуждается роль аэрозолей природного и антропогенного происхождения в климатических процессах. В работах по моделированию климата показано, что учет аэрозольного воздействия на климат выполнен некорректно в первую очередь из-за недостаточности сведений о процессах генерации и физико-химических свойствах атмосферных аэрозолей.

Рассматриваются структурные параметры стратосферных и антропогенных аэрозолей, их морфологическая структура и состав, временная изменчивость и тренды, влияние аэрозолей на радиационный режим атмосферы и, следовательно, на климат Земли. Делаются определенные выводы о роли различных физических и физико-химических аэрозольных процессов на эволюцию их микроструктуры в атмосфере.

Особое внимание уделено вулканическим и стратосферным аэрозолям, а также перистым облакам. Следует отметить, что в настоящее время не существует простых и эффективных методов получения всех характеристик, требуемых для моделирования аэрозольных процессов и структур. Изложено современное состояние знаний по этим вопросам.

Ключевые слова: аэрозольное воздействие, альbedo, климат, антропогенные и природные аэрозоли, приземная температура воздуха; aerosol forcing, albedo, climate, anthropogenic aerosols, ground air temperature.

Введение

Общепризнанно, что климатическая система Земли существенно изменилась за время, прошедшее с начала промышленной революции. Некоторые изменения имеют явно антропогенное происхождение, а это делает необходимым получение объективной информации об изменениях климата, об антропогенных и природных воздействиях на окружающую среду и возможной климатической реакции среды на эти воздействия [32, 44]. Для диагностики наблюдающихся вариаций и изменчивости климата необходимо знать, насколько значительно и необычно существующее глобальное потепление; наблюдаются ли существенные изменения общей циркуляции атмосферы и океана, а также осадков и влагосодержания атмосферы; какова роль аэрозолей в климатических процессах и как быстро изменялся климат в прошлом [6, 7, 9, 34, 44].

Бесспорны изменения в составе атмосферы: увеличение содержания углекислого газа, аэрозолей, ряда парниковых газов (ПГ) и, возможно, уменьшение содержания стратосферного озона, а также изменение структуры поля облачности. Надежно установлены следующие факты: 1) прогревание приземного воздуха, сопровождающееся потеплением тропосферы и похолоданием стратосферы (спад входящего потока длинноволновой радиации от тропосферы) [16]; 2) более быстрое потепление на суше, чем в океане; 3) более быстрое потепление в высокогорных районах (за счет «альбедной» обратной

связи); 4) выхолаживание атмосферы, обусловленное аэрозолями, сдерживающее повышение приземной температуры воздуха (ПТВ); 5) возрастание среднеглобального содержания водяного пара в атмосфере, усиление осадков и испарения, а также интенсификация глобального круговорота воды; 6) интенсификация «режима Эль-Ниньо», что сопровождается сдвигом зон осадков на восток; 7) ослабление термохалинной циркуляции (ТНС), порождающее ослабление потепления в Северной Атлантике; 8) интенсивное проникновение потепления в глубину океана в высоких широтах [9, 26]. Большинство установленных фактов (см. факты 1–5, 7) связано с прямым влиянием аэрозолей не только на радиационный режим атмосферы, но и на фазовые переходы воды, в первую очередь на образование облачности, на изменение химического состава атмосферы (гетерогенные и фотохимические реакции), на нагрев поверхностных слоев океана и на альbedo снежных и ледниковых поверхностей [29].

Эти различные и многофакторные изменения глобального климата далеко не всегда согласуются с концепцией антропогенного «глобального потепления» [8, 21]. В частности, существует неадекватность имеющихся моделей климата применительно к условиям Арктики [37]. В большинстве случаев рассчитанные тренды атмосферных характеристик слабее наблюдаемых. Вычисленное потепление климата наиболее заметно проявляется осенью над Арктическим океаном, тогда как наблюдаемое потепление больше всего отмечается зимой и весной над континентами. В последние десятилетия отмечается пространственное распространение погодных ано-

* Лев Семенович Ивлев (ivlev.lev@mail.ru).

малый на многие регионы Земли. Наглядным примером погодных аномалий является лето 2010 г., поэтому, конечно, большое значение имеют дальнейшие исследования разных мод общей циркуляции атмосферы и океана и соответствующее совершенствование моделей общей циркуляции. Так, существенные климатические обратные связи ассоциируются с динамикой термохалинной циркуляции.

Изменчивость высоты тропопаузы, определяемая по минимуму температуры, и ее пространственная структура (вертикальный профиль температуры) зависят, в основном, от волнообразных флуктуаций, подобных волнам Кельвина.

Образование снежного покрова в регионах с холодным климатом сопровождается сильным ростом альбедо, что благоприятствует дальнейшему похолоданию в нижних слоях атмосферы («альбедный эффект») [35].

Численное моделирование реакции только на природные возмущающие воздействия не объясняет потепления во второй половине XX в. Этот вывод основан на анализе результатов численного моделирования изменения среднеглобальной ПТВ за последние 50 лет. Например, расчеты с учетом природно обусловленных возмущающих воздействий (солнечная активность [21], вулканические извержения) [8] демонстрируют похолодание климата (в первую очередь за счет крупных извержений, происшедших в 1982 и 1991 гг.). Следовательно, влияние лишь природных факторов на формирование климата маловероятно [10, 26].

Начиная с 1979 г. тренд среднеглобальной температуры нижней тропосферы (0–8 км), по данным спутниковых наблюдений, составил $+0,07\text{ }^{\circ}\text{C}/10\text{ лет}$ [14]. Отмечается, согласно данным аэрологических зондирований, повышение среднеглобальной температуры нижней тропосферы, составившее около $0,03\text{ }^{\circ}\text{C}/10\text{ лет}$ и значительно уступающее росту ПТВ

($\approx 0,15\text{ }^{\circ}\text{C}/10\text{ лет}$) [20]. Изменения ПТВ, полученные методом численного моделирования с учетом экспериментально наблюдаемого роста концентрации ПГ и заданного повышения содержания сульфатных аэрозолей в тропосфере, дали значения изменения ПТВ, равные $-0,2\text{ }^{\circ}\text{C}$. (Влияние сульфатных аэрозолей оценивалось путем эквивалентного изменения альбедо земной поверхности.) Причем изменение ПТВ обусловлено в первую очередь изменениями условий облачности и влажности почвы [14]. Необходимо учитывать два противоположных фактора: антропогенно обусловленное потепление за счет роста концентрации CO_2 (усиление парникового эффекта) и похолодание, порожденное чисто рассеивающими сульфатными аэрозолями [8]. Согласно наблюдениям и расчетов представляет собой результат подгонки и в действительности отображает расхождение, а не согласие, которого не может быть по определению, даже с точки зрения одного лишь климатообразующего фактора — атмосферных аэрозолей. Давно и хорошо установлен [3, 5–9, 20, 22] тот факт, что аэрозоли — не только рассеивающий, но и поглощающий компонент атмосферы. Современные модели климата неадекватны [6, 7, 23, 32], что побуждает рассматривать их как всего лишь первоначальный этап развития численного моделирования климата.

В то же время большинство моделей, в которых учтены как парниковые газы, так и сульфатные аэрозоли, согласуются с данными наблюдений за последние 50 лет и оказываются вполне адекватными, если принять во внимание как природные, так и антропогенные воздействия.

На рис. 1 проиллюстрированы периодические результаты сравнения наблюдений и модельных расчетов изменения температуры поверхности для Северного полушария с учетом воздействия аэрозолей вулканического происхождения и углекислого газа [1].

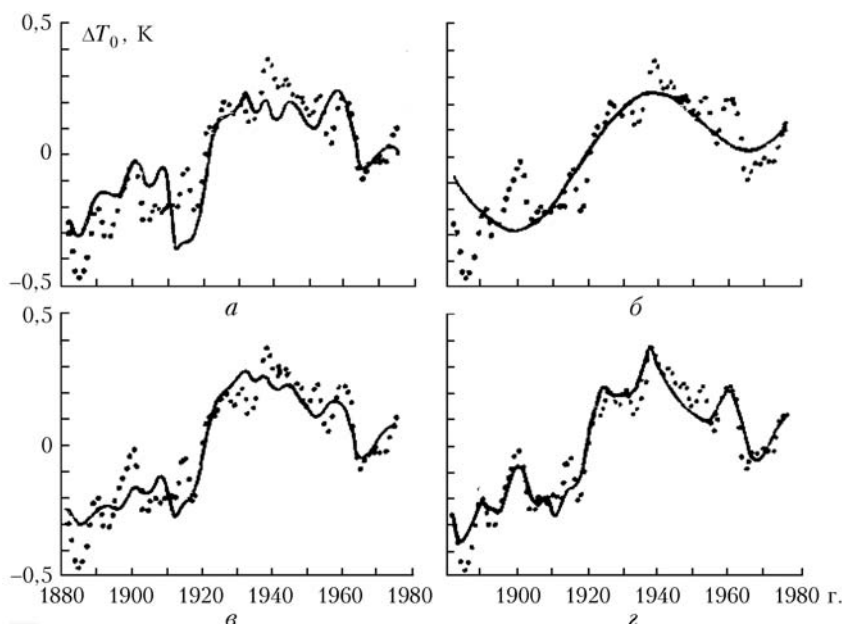


Рис. 1. Модельный (сплошная кривая) и наблюдаемый (точки) ход температуры поверхности Северного полушария при аэрозольном (вулканическое извержение — *a*, *v*, *z*) и газовом (CO_2 — *a*, *b*, *z*) воздействиях с учетом вариаций солнечной постоянной (*b*, *v* — 76-летний период; *z* — 12,4; 22 и 76-летний периоды)

Аэрозольное воздействие на температуру подстилающей поверхности существенно зависит от широты местности — аэрозольной оптической толщи (АОТ) в направлении на Солнце (рис. 2), и относительно слабо от микроструктурных параметров аэрозолей (распределения частиц по размерам, их формы и химического состава), кроме случаев присутствия в них сильно поглощающей солнечную радиацию сажи [27].

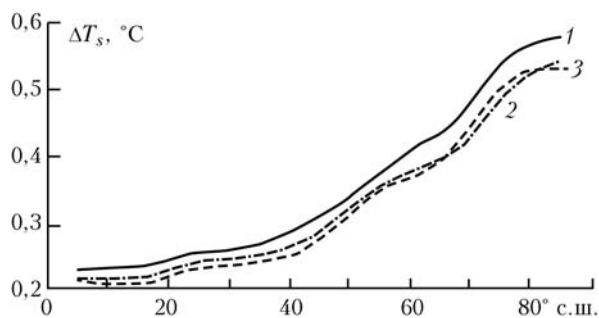


Рис. 2. Изменения широтного хода температуры поверхности, полученные с помощью трех различных моделей аэрозолей: 1 — тропосферная модель; 2 — модель загородных аэрозолей; 3 — модель морских аэрозолей

Возможно, что хорошее согласие рассчитанного и наблюдаемого векового хода ПТВ в значительной степени обусловлено случайной взаимной компенсацией учета газовых и аэрозольных факторов [28].

Иллюстрацией неадекватности результатов численного моделирования являются их расхождения с наблюдениями изменений температуры у земной поверхности и в свободной тропосфере. Согласно моделям повышение температуры в тропосфере должно быть более быстрым, чем вблизи земной поверхности, тогда как наблюдения за период 1979–2000 гг. показывают, что повышение температуры в свободной тропосфере происходит более медленно, что может объясняться терригенной природой аэрозолей, имеющих значительное время жизни, особенно при вулканических извержениях.

Численное моделирование климата привело к выводу, что наблюдавшиеся изменения теплосодержания океана можно объяснить главным образом ростом концентрации парниковых газов в атмосфере, но имеется большая неопределенность оценок радиационного возмущающего воздействия за счет сульфатных аэрозолей и вулканических извержений [8, 28].

Не останавливаясь на роли парниковых газов, заметим, что в настоящее время концентрация метана в атмосфере возросла в 2,5 раза по сравнению с наблюдавшейся по косвенным данным в 1750 г. и продолжает интенсивно увеличиваться в последние десятилетия. По некоторым оценкам вклад угарного газа CO, как ПГ, может сравняться с вкладом метана и окажется существенным как фактор снижения качества воздуха на большей части Северного полушария. Особый интерес представляет динамика закиси азота, включая проблему палеовариаций. Анализ динамики круговорота N₂O за последние

106 тыс. лет приводит к выводу, что к концу последнего периода оледенения океанические выбросы N₂O в атмосферу возросли на (40 ± 8)%, что имеет большое значение для круговорота углерода [9].

Одной из причин вариаций ПГ является присутствие в атмосфере аэрозольных частиц, которые непосредственно реагируют с ними и инициируют образование капельно-жидкой фазы, наличие которой способствует трансформации атмосферных газов и их выведению из атмосферы. В табл. 1 приведены расчеты среднегодовых изменений концентраций восьми малых газовых компонентов (МГК) под воздействием пылевых аэрозолей.

Таблица 1
Среднегодовые изменения (%) концентрации восьми МГК под воздействием пылевых аэрозолей

Вещество	Фотолит				Гетерогенные реакции			
	СП	ЮП	Земной шар	NATA*	СП	ЮП	Земной шар	NATA*
O ₃	0,2	0,3	0,2	0,9	-1,5	-0,3	-0,9	-5,0
ОН	-4,0	0,8	-2,4	-15	-16,4	-2,9	-9,6	-64,0
HNO ₃	0,4	0,3	0,3	0,8	-6,1	-1,5	-3,8	-28,3
HO ₂	-1,0	0,2	-0,4	-6,0	-9,1	-1,1	-5,1	-43,5
NO ₃	1,9	0,8	1,3	5,4	-10,2	-1,5	-5,9	-47,2
NO ₂	2,1	0,7	1,4	9,8	-0,5	-0,2	-0,3	-6,9
N ₂ O ₅	3,3	0,2	2,2	12,0	-3,4	-0,8	-2,1	-19,6
H ₂ O ₂	0,3	0,7	0,5	-0,6	-0,4	0,1	-0,2	-2,2
<i>Интерактивный учет</i>								
O ₃	-1,3	0,0	-0,7	-3,8			1,00	0,93
ОН	-18,5	3,6	-11,1	-66,8			0,93	0,85
HNO ₃	-5,8	1,2	-3,5	-27,7			1,00	1,01
HO ₂	-9,6	0,9	-5,2	-45,3			0,95	0,92
NO ₃	-8,7	0,8	-4,7	-44,2			1,02	1,06
NO ₂	1,6	0,5	1,1	3,1			1,00	1,07
N ₂ O ₅	-0,3	0,4	0,0	-9,4			—	1,24
H ₂ O ₂	-0,2	0,8	0,3	-3,0			1,00	1,07

* Северная Африка и тропическая Атлантика.

Эти изменения относительно невелики, но при длительном воздействии они могут изменить баланс газовых компонентов в атмосфере. Особенно значительным этот эффект может быть при аномально высоких значениях пылевой материи в атмосфере. В частности, появление большого количества свежих аэрозольных частиц в стратосфере может резко уменьшить концентрацию озона [1, 8] и тем самым вызвать изменения концентраций других МГК.

Следовательно, основной причиной неадекватности моделей климата является неучет роли атмосферных аэрозолей, а также того обстоятельства, что климатическая система открыта по отношению к внешним космическим воздействиям. Согласие наблюдений и расчетов представляет собой результат подгонки даже с точки зрения одного лишь климатообразующего фактора — атмосферного аэрозоля, который является не только рассеивающим, но и поглощающим компонентом атмосферы [8].

Внезапные изменения климата особенно существенны в периоды перехода климата из одного состояния в другое, так как могут инициировать тектонические, в частности вулканические, процессы [17, 44]. Эти процессы, как и антропогенные воздействия на климат, могут способствовать смещению климатической системы в сторону порогового уровня, что повышает вероятность внезапных изменений климата. Поэтому, если антропогенные воздействия на климат могут способствовать смещению климатической системы в сторону порогового уровня, то это означает возможность повышения вероятности внезапных изменений климата. При этом имеют значение не только величина, но и скорость антропогенного воздействия на климатическую систему. Более быстрое потепление климата должно способствовать более сильному ослаблению термохалинной циркуляции, что благоприятствует ускорению смещения к пороговому уровню изменений климата (в этих условиях динамика термохалинной циркуляции становится менее предсказуемой). Трудности идентификации и количественной оценки всех возможных причин внезапных изменений климата, низкая предсказуемость вблизи пороговых уровней свидетельствуют о том, что проблема внезапных изменений климата будет всегда острее более серьезными неопределенностями, чем проблема медленных изменений [30].

1. Процессы генерации атмосферных аэрозолей

Как уже было сказано, существует несколько аэрозольных факторов воздействия на климатические процессы. Но обычно их недооценивают из-за малого времени жизни аэрозольных частиц в атмосфере ($\tau_a \approx 7 \div 10$ сут). Требуется существование либо длительно действующих источников, либо кратковременных, но очень интенсивных, способствующих переходу климатической системы в другой режим. Можно назвать следующие важные климатические процессы генерации атмосферных аэрозолей: 1) терригенные механизмы, 2) антропогенные процессы роста интенсивности генерации аэрозолей, в том числе внутриатмосферного происхождения, 3) появление аэрозольных частиц в стратосфере с достаточно длительным временем существования, возможным воздействием на содержание озона в стратосфере и заметным вкладом в радиационный режим стратосферы.

Особый интерес представляет интенсивный рост концентрации аэрозолей, возникающих в результате глобальных катастрофических явлений, которые практически всегда связываются с солнечным влиянием на земные процессы [2, 26]. Физические механизмы этого влияния далеко не всегда ясны. В научной литературе основательно рассмотрены проблемы взаимодействия солнечных радиационных потоков на земные магнитосферу, ионосферу, атмосферу и подстилающую поверхность [1, 21]. Однако процессы гравитационного и, возможно, электромагнитного взаимодействия Солнца

и Луны с внутренней частью Земли исследованы совершенно неудовлетворительно. С учетом массы взаимодействующих при этом объектов, а следовательно, и энергетики происходящих в ней процессов, важность таких взаимодействий очевидна.

Трудности долговременного предсказания катастрофических явлений тектонического характера обусловлены хаотичностью процессов в сложно построенной земной коре, многообразием физических процессов, трудным учетом триггерных механизмов малых внешних возмущений, ведущих к взрывному развитию явлений. Оптимистично настроенные исследователи считают, что можно использовать экспериментально установленные факты возникновения предвестников в очаге будущего землетрясения или вулканического извержения, а также успехи теории вероятностного прогноза катастрофы в условиях детерминированного хаоса.

Предположительно основными внешними (геофизическими и космическими) факторами триггерного воздействия на возникновение землетрясений и вулканических извержений могут являться: 1) солнечная активность, 2) скорость вращения Земли, 3) земные приливы, 4) различные геомагнитные явления и 5) метеорологические факторы.

Для развития математических моделей тектонических процессов, сопровождающихся образованием аэродисперсных систем и атмосферных ионов, особенно важными являются гипотезы о более высокой подвижности тектонических плит, чем общепринято (вместо 0,1–1 мм/год — десятки см/год), о процессах трансформации атомных ядер внутри Земли, а также пульсационная (гидридная) теория увеличения и уменьшения объема Земли при ее постепенном расширении. Обладая упругостью, Земля под влиянием приливообразующих сил деформируется, и внутри нее происходит перераспределение масс, обуславливающее возникновение дополнительных сил. Такие возмущения индуцируют дополнительный гравитационный потенциал, возникающий от соответствующих деформаций.

Космические факторы, в частности ротационные силы, создают напряжения, не превышающие 0,1 Па, а приливные силы в результате взаимодействия Луны, Солнца и Земли провоцируют напряжения до 10 Па.

Как известно, ось вращения Земли испытывает периодические колебания и вынужденную нутацию с гармониками, основные из которых имеют периоды $\approx 0,46$; 0,92 и 6, 12, 223 мес. Гармоника с периодом 223 мес имеет максимальную амплитуду $\approx 9''$. К ним добавляются колебания, связанные со свободной периодической прецессией Земли, вызванной отклонением ее оси от оси, относительно которой ее момент инерции максимален, — чандлеровский период (1,2 года), а также периоды, кратные и почти кратные ему; присутствует однолетний цикл, связанный с сезонной циркуляцией.

Основными гармониками угловой скорости вращения Земли с периодами больше 1,5 года являются: 1-я — 2,1; 2-я — 2,54; 3-я — 2,74; 4-я — 3,58; 5-я — 4,58; 6-я — 6,07; 7-я — 10,4; 8-я — 11,9;

9-я — 18,7 года. Первые четыре связаны со свободной нутацией Земли, 6-я и 9-я — взаимодействием с Луной, 7-я — соответствует цикличности солнечной активности, 8-я — взаимодействием с Юпитером и 5-я — неясно. Можно предположить, что цикличность угловой скорости вращения Земли вокруг своей оси с периодами 2,1; 2,4; 2,8, 3,6; 6 лет, соответствующая гармоникам 1–4-й; 6-й, вызвана чередующимися Эль-Ниньо или возникновение Эль-Ниньо связано со свободной нутацией Земли [12]. На свободную нутацию Земли накладывается, в первую очередь, ее взаимодействие с Луной. Присутствуют также гармоники, связанные с Солнцем и обусловленные, видимо, вращением Юпитера вокруг Солнца, периодичность которого должна отражаться на процессах на Солнце.

Известно, что в спектре временного хода чисел Вольфа присутствует помимо 11-летнего цикла солнечной активности еще и близкий к нему цикл, связанный с движением Юпитера. Достоверной и большой по амплитуде является 8-я гармоника, несмотря на то что погрешность ее определения невысока. С учетом погрешности ее можно причислить к влиянию Солнца (11-летний цикл солнечной активности). В свою очередь Эль-Ниньо должно, вероятно, влиять на тектонические напряжения в земной коре, так как движения океана и атмосферы вносят коррекцию в скорость вращения Земли вокруг своей оси. Возможно, возникло Эль-Ниньо в результате сильного толчка, приводящего к появлению течений, переносящих тепло на запад Тихого океана, вследствие изменения параметров гравитационного взаимодействия Земли с другими телами Солнечной системы.

В последние годы развиваются также идеи о важной роли процессов дегазации ядра Земли, ответственных за ряд геофизических и метеорологических явлений [12]: наличие на Земле постоянных бароцентров и аномальные атмосферные явления, корреляционно связанные с геофизическими [11].

2. Терригенные аэрозоли

Вклад ослабляющих прямую солнечную радиацию терригенных аэрозолей, возникающих при различных тектонических процессах и при выветривании почвы, в общее содержание атмосферных аэрозолей составляет примерно 40%, но для больших высот ($Z > 10$ км) он может быть больше в первую очередь за счет аэрозолей вулканического происхождения.

Наибольший вклад вносят аэрозоли, возникающие в результате глобальных катастрофических явлений во время мощных вулканических извержений эруптивного типа, ответственные за длительную изменчивость оптических характеристик атмосферы и, следовательно, за глобальные изменения климата [4, 6, 20, 25]. Поскольку основными химическими компонентами вулканических аэрозолей являются соединения, не поглощающие, а рассеивающие коротковолновую солнечную радиацию, то их присутствие в атмосфере приводит к ее выхола-

живанию в дневное время и уменьшению выхолаживания в ночное время из-за присутствия в них серосодержащих веществ.

Влияние мощных вулканических извержений на радиационный режим атмосферы носит глобальный характер. Например, после извержения влк. Эль-Чичон наблюдалось 3–4-кратное увеличение оптической аэрозольной толщи атмосферы в полярных районах земного шара (рис. 3), где аэрозольное радиационное воздействие наиболее эффективно.

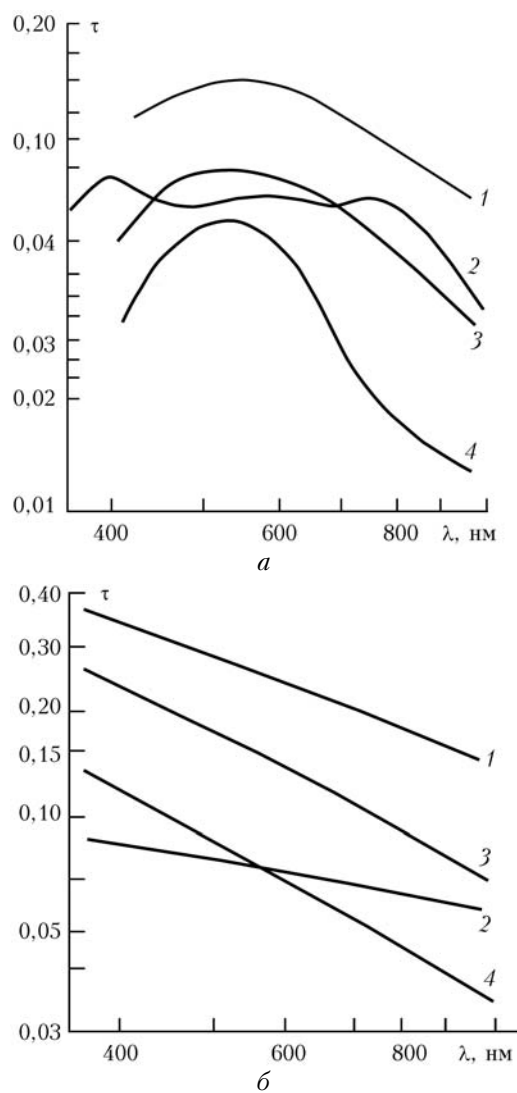


Рис. 3. Зависимость аэрозольных оптических толщ для полярных районов до и после извержения влк. Эль-Чичон: *а* — ст. Мирный, Антарктида: 1 — январь 1983 г., 3 — март 1983 г., 4 — 1969 г., СП-22, Арктика; 2 — май–июнь 1979 г., *б* — Северная Земля, Арктика: 1 — апрель 1983 г., 2 — сентябрь 1983 г., 3 — апрель 1981 г., 4 — сентябрь 1981 г. [1]

Отметим, что вулканическая активность практически всегда связывается с солнечным влиянием на климат Земли [21, 27]. В частности, наблюдается определенная связь между солнечной активностью (количеством солнечных пятен) и изверже-

ниями. Однако есть временное смещение в фазах этих процессов примерно в 3 года.

Для установления связи между вулканическими извержениями и изменением скорости вращения Земли были использованы данные $\Delta v/\Delta t$, представленные в монографии [11] (рис. 4).

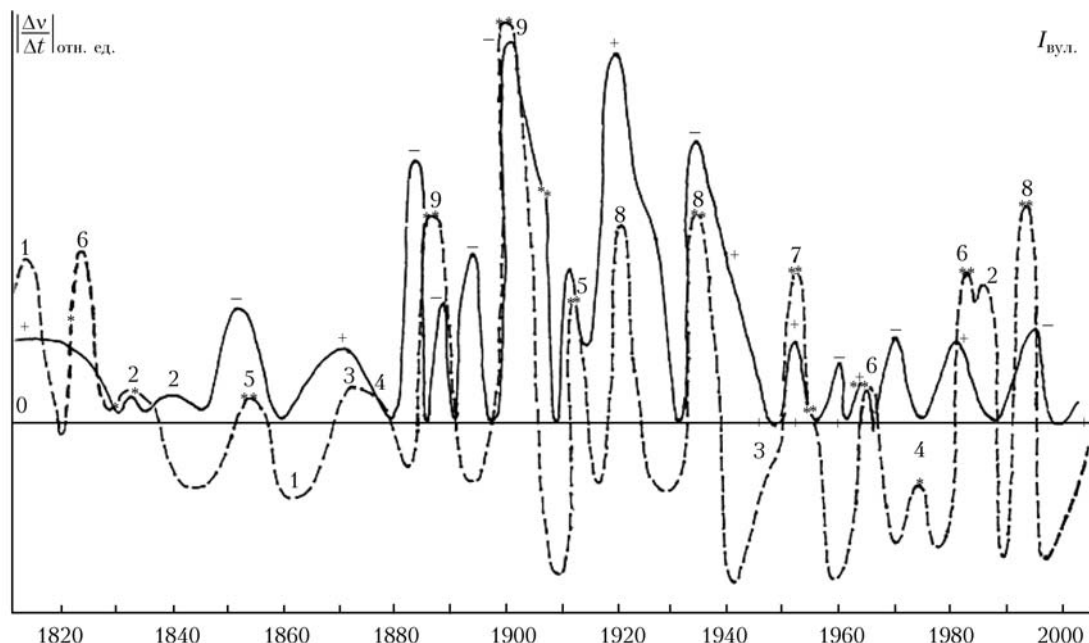


Рис. 4. Временные характеристики интенсивности вулканической деятельности и изменения скорости вращения Земли. Знаки «+» и «-» соответствуют ускорению и замедлению вращения Земли, цифры — количеству интенсивных извержений. Сплошная кривая — вулканическая активность, штриховая — изменение скорости вращения Земли

Изучались связь амплитуды вулканической активности (учитывающей число мощных извержений и их балльность) и скорость изменения частоты вращения Земли. Для данных с 1860 по 1886 г. наблюдается явная корреляция между изменениями скорости вращения и интенсивностью эруптивных извержений. Причем не играет существенной роли уменьшение или увеличение скорости вращения Земли.

Выброшенный в стратосферу вулканический материал по актинометрическим наблюдениям существует в ней более года. Собственно пылевые частицы опускаются до тропосферы за несколько месяцев в зависимости от размеров частиц и высоты их выброса. Но практически наблюдаемая замутненность стратосферы — около трех лет, обусловлена, в первую очередь, длительными процессами образования и большим временем жизни аэрозольных частиц очень малых размеров из газовой фазы вулканического материала (сернистый газ, водяной пар, хлориды, окислы азота и т.п.) [8, 9]. Еще одной причиной длительного существования аэрозольного материала в высоких слоях атмосферы являются последующие извержения одного или нескольких вулканов после первого мощного извержения.

Масс-спектрометрический анализ показывает, что вода составляет 95% от всех газов вулканического происхождения. Очевидно, морская вода

в случае быстрого «катастрофического» раздвижения участка коры и образовании гигантских полосей заполняет последние. Заполнение их водой, а не магмой, обладающей значительно большей вязкостью, реализуется при возможном расслаивании и разломе плит.

Последующий нагрев воды и высокое давление среды ведут к изменению физико-химических свойств воды: она приобретает свойства кислоты, растворяет дно плиты, увеличивает количество флюидного материала, в том числе аэрозольных предшественников. Таким образом, вулкан представляет собой тепловую машину, в которой нагреватель — магма, рабочее тело — вода, холодильник — поверхностный слой Земли и атмосфера [4].

3. Стратосферные аэрозоли

Так как с климатологических позиций представляют интерес воздействия аэрозолей в стратосфере на радиационный режим различных слоев атмосферы и их циркуляцию, а также на малые газовые компоненты, в первую очередь на озон, то, очевидно, необходимы знания не только об общем количестве стратосферных аэрозолей, но и об их вертикальной структуре, микроструктуре и химическом составе.

Прямые измерения структуры стратосферных аэрозолей с помощью аэростатных импакторов были начаты в конце 50-х гг. Х. Юнге, а затем активно развивались несколькими научными группами [1]. Большой массив данных по вертикальной структуре аэрозолей до высот 30–35 км для разных климатических регионов был получен с помощью аэростатного фотоэлектрического счетчика, регистрирующего

частицы радиусом $r > 0,15$ и $0,25$ мкм. Проводились совместные измерения двухкаскадным импактором и различными аэрозольными лидарами [1, 3]. Сравнивались вертикальные профили атмосферных аэрозолей, полученные с помощью фильтровой ловушки, импактора, оптического счетчика частиц и лидаров. Характерные профили счетной концентрации аэрозольных частиц и коэффициентов лидарного обратного рассеяния представлены на рис. 5.

Импакторные измерения частиц $r > 0,2$ и $0,25$ мкм и измерения пылевым фотоэлектрическим зондом частиц $r > 0,15$ и $0,25$ мкм обнаруживают хорошее согласие в случае измерений в тропосфере и несколько худшее – в нижней стратосфере. С помощью обоих методов неоднократно был зарегистрирован слой Юнге, расположенный на высотах от 17 до 22 км. Фоновое содержание стратосферных аэрозолей в слое Юнге приблизительно $1-3$ частиц/см³ (для частиц $r > 0,15$ мкм) и имеет максимум концентрации при минимальной высоте тропопаузы. В период после мощных вулканических извержений влк. Сент-Хеленс, Эль-Чичон и Пи-

натубо эти концентрации даже в средних широтах России (г. Рыльск) были в десятки раз больше.

В табл. 2 представлены типичные данные по содержанию аэрозольных частиц в атмосфере по аэростатным измерениям в Ларами и в Апатитах.

Таблица 2

Вертикальный профиль счетной концентрации аэрозольных частиц, см⁻³

Z_1 , км	D , мкм (Апатиты, 23.02.89)				d , мкм (Ларами, 15.07.88)
	$> 0,01$	$> 0,1$	$> 0,3$	$> 0,5$	$> 0,3$
5,1	4,5–7,6	1,25–3,5	0,23–0,60	0,03–0,15	$1,2 \pm 0,8$
8,4	10,0–18,0	7,5–20,0	2,5–5,0	0,5–1,5	$1,5 \pm 0,7$
9,5	85–123	5,8–21,0	0,8–2,0	0,3–1,7	$2,5 \pm 0,7$
14,6	21–35	1,8–4,8	0,3–1,3	0,2–0,8	$1,3 \pm 0,6$
15,8	290–370	2,5–7,0	1,0–2,5	0,3–1,4	$1,8 \pm 0,5$
18,1	4,0–8,0	1,8–5,0	0,8–2,0	0,3–1,7	$2,2 \pm 0,5$
20,4	27,0–52,0	5,6–20,0	0,6–2,0	0,3–1,5	$0,8 \pm 0,3$
23,8	6,5–12,2	3,2–8,0	1,2–2,0	0,1–0,2	$0,4 \pm 0,1$
30,0	10–18	5,8–11,0	1,8–4,0	–	$0,5 \pm 0,1$

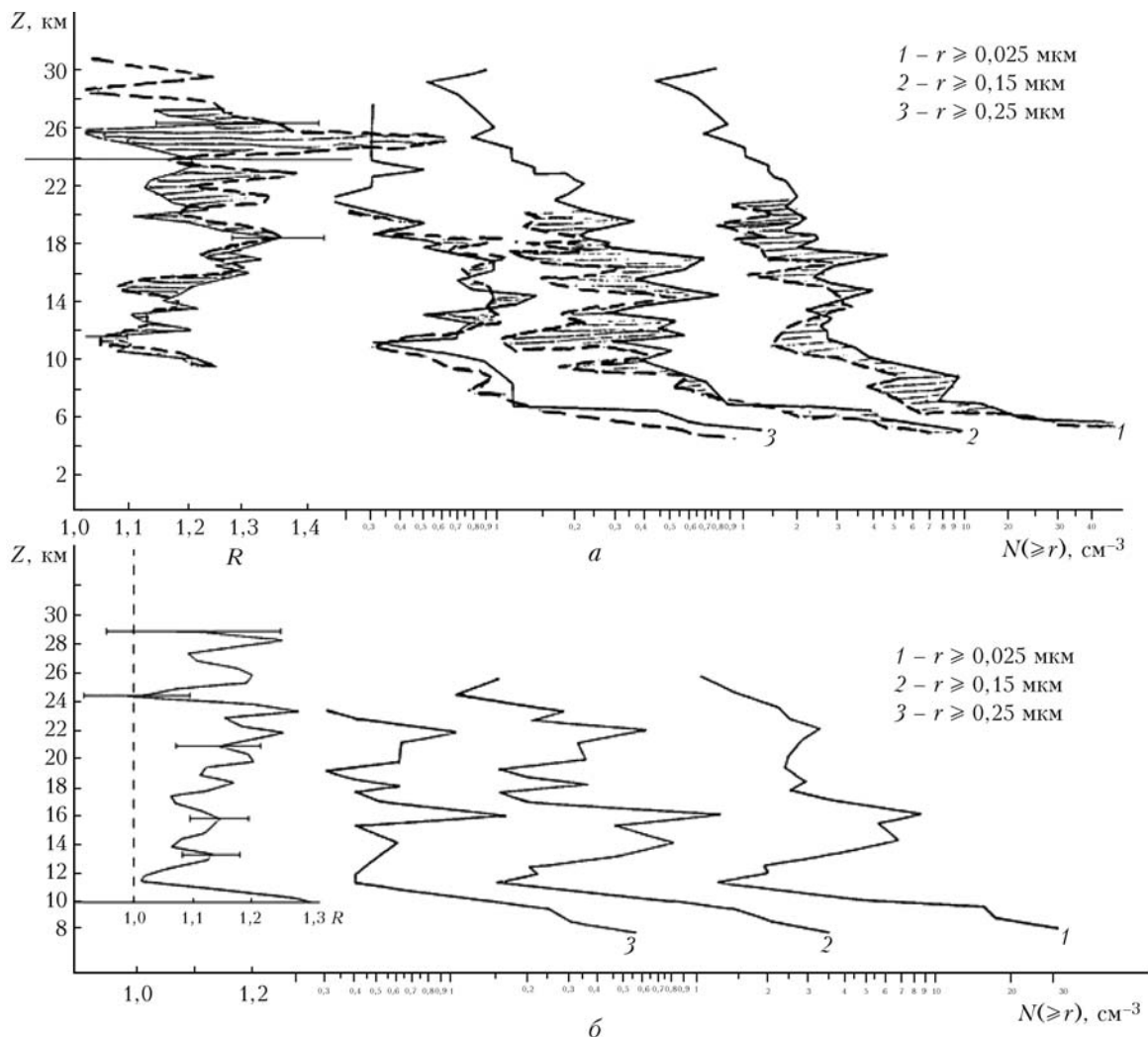


Рис. 5. Вертикальные профили счетной концентрации аэрозольных частиц $r > r_i$ и лидарного отношения R : а – 10.08.87 г., б – 14.08.87 г.; штриховые кривые – уровень погрешности определения концентрации на данной высоте

Концентрация аэрозолей в нижней части стратосферы характеризуется наличием максимума, причем вертикальный ход концентрации имеет слоистую тонкую структуру. Было подтверждено наличие постоянного и продолжительно существующего слоя аэрозолей в стратосфере в Восточном и Западном полушариях Земли. Одновременные измерения ядер конденсации N_j и аэрозолей N_a показали, что концентрация ядер конденсации в стратосфере минимальна и сравнима или больше, чем концентрация частиц радиусом более 0,15 мкм. Изменение относительной влажности и наличие ядер конденсации приводят к конденсационному и коагуляционному образованию стратосферных аэрозолей.

Содержание аэрозолей в стратосфере зависит от сезона и широты места и во многом определяется атмосферной циркуляцией, а также активностью вулканической деятельности, характеризуется сопоставимыми концентрациями аэрозолей на Северном и Южном полюсах.

Распределение стратосферных аэрозолей по размерам в диапазоне от 0,2 до 2,5 мкм относительно постоянно и описывается формулой Юнге с показателем степени 3,5–4,0.

Анализ аэроаэрозольных фильтровых проб нейтронно-активационным методом показывает присутствие в стратосфере серной кислоты с концентрацией порядка 100–250 нг/м³, следовых количеств Fe 10–15 нг/м³ в нижних слоях стратосферы, Са примерно 0,3 мкг/м³, Mn – 1,0 нг/м³. Уверенно определяются кремний и алюминий, но количественная оценка их содержания в стратосфере затруднена. Электронно-микроскопический анализ импакторных проб регистрирует в основном наличие либо сернокислотных микрокапель, либо сульфатных кристалликов, в зависимости от времени между ближайшим вулканическим извержением и забором пробы.

Морфологический анализ позволил определить следующие типы частиц: частицы из органического вещества, сернокислотные и сульфатные частицы; конгломераты из более мелких частиц типа сажевых фракталов, а также смешанного происхождения; однородные сферические частицы из плотного вещества (высокотемпературные конденсаты, например микрометеориты); кристаллы, образовавшиеся при реакциях в атмосфере (*in situ*).

Отчетливо просматриваются закономерности изменения морфологической структуры аэрозольных частиц с высотой. Общая тенденция такова: в тропосфере встречаются достаточно крупные частицы минерального происхождения, конгломераты из более мелких частиц, а также частицы из органического вещества, изредка встречаются сернокислотные частицы. Примерно 10% частиц можно квалифицировать как сажевые. С высотой доля сернокислотных частиц заметно возрастает и к высоте 9–10 км достигает 50–60% от всей концентрации. В основном это сферические жидкие частицы с отдельными мелкими твердыми включениями (под электронным микроскопом наблюдается след высушенной капли). Даже наблюдающиеся конгломера-

ты твердых частиц, очевидно, содержат серную кислоту (между отдельными микрочастицами).

В нижней стратосфере доля сферических сернокислотных частиц увеличивается. Частиц, содержащих органическое вещество, почти нет. Встречаются частицы минерального происхождения (возможно, вулканогенные частицы). В более высоких слоях атмосферы практически исчезают частицы неправильной формы. Можно считать, что все частицы – сернокислотные или сульфатные. В пробах наблюдаются структуры, представляющие собой очень неконтрастные образования – конгломераты неправильной формы, как бы сетки – паутины из совсем мелких частиц. Оценки оптических характеристик стратосферных аэрозолей и их вклада в радиационный баланс верхних слоев атмосферы проводились неоднократно. Прямые измерения по сравнению с лидарными и спутниковыми дают заниженные данные [1].

4. Антропогенные аэрозоли

Характерными свойствами антропогенных аэрозолей являются: 1) локальность источников, 2) разнообразный химический состав, 3) большая доля поглощения в ослаблении излучения, особенно в коротковолновой области (из-за присутствия сажи), 4) разнообразие морфологической микроструктуры частиц.

Значительная доля антропогенных аэрозолей появляется в атмосфере *in situ* из производственных парогазовых выбросов. Образующиеся при горении диспергированные вещества составляют не менее 80% аэрозолей антропогенного происхождения. Наибольшую роль в климатических процессах играют сажа и соединения серы, которые также генерируются при горении угля, мазута и других нефтепродуктов. Существует обширная литература (см. [1, 3, 6, 30, 31, 47]) по вопросам исследований атмосферных аэрозолей, образующихся при горении.

Остановимся на относительно малоизученной проблеме ежегодно растущей эмиссии углекислого газа, воды, метана и сажи при работе авиационных двигателей и ее влияния на климат. Эта эмиссия изменяет химический и радиационный баланс атмосферы, что наряду с одновременным увеличением интенсивности образования сажевых и сульфатных аэрозолей влияет на частоту появления и характеристики перистых облаков. Перистые облака верхней тропосферы, покрывающие до 35% поверхности Земли, в значительной степени определяют глобальный баланс энергии и термодинамическую структуру атмосферы. В среднем они способствуют нагреванию атмосферы благодаря отражению солнечного излучения в верхней части облачности и поглощению инфракрасного излучения от поверхности Земли в нижней ее части. Отсутствие жидких капель в облаках на высоте 8–10 км, как и очень низкая концентрация ледяных ядер нуклеации в верхней тропосфере, дают основание предполагать, что основной механизм нуклеации льда в природных перистых облаках – гомогенное замерзание

капель или водных растворов серной кислоты H_2SO_4 и сульфата аммония $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$, формирующихся из жидких и твердых растворимых частиц.

Результаты моделирования гомогенного замерзания капель в восходящем потоке воздуха, стартового из области, насыщенной парами H_2O на уровне равновесного давления пара над льдом, показывают, что вероятность замерзания капель увеличивается с понижением температуры и концентрации растворов [18]. При достижении области давлений насыщенных паров над водой быстрый рост кристаллов льда приводит к понижению относительной влажности и предотвращает дальнейший рост концентрации ледяных частиц в облаке. В итоге типичная концентрация ледяных кристаллов в перистых облаках достигает $1\text{--}300\text{ см}^{-3}$, что составляет лишь малую часть от концентрации фоновых аэрозолей $\sim 10\text{--}500\text{ см}^{-3}$.

Гомогенная бинарная $\text{H}_2\text{O}/\text{H}_2\text{SO}_4$ нуклеация сульфатных аэрозолей требует больших пересыщений давления паров над льдом $S_i \sim 40\text{--}50\%$, поэтому большие регионы атмосферы оказываются свободными от видимых облаков. Появление нерастворимых ядер нуклеации в виде сажевых частиц инициирует гетерогенное замерзание при более низких пересыщениях, чем требуется для гомогенной нуклеации. Наличие долгоживущих конденсационных следов самолетов (КСС) подтверждает, что верхняя тропосфера содержит пересыщенный парами H_2O воздух, в котором, однако, облака не формируются до момента инициирования их появления полетами самолетов [15]. Следовательно, гомогенная нуклеация не может быть единственным механизмом образования перистых облаков.

В последние десятилетия над транспортными центрами и промышленно развитыми регионами наблюдаются аэрозольные слои с повышенным содержанием сажевого вещества. Отмечается корреляция между массовой концентрацией частиц сажи в атмосфере и количеством потребляемого авиацией топлива. В верхней тропосфере существуют сажевые аэрозоли с концентрацией частиц от $0,004$ до $0,5\text{ см}^{-3}$ и размерами $0,1\text{--}0,5\text{ мкм}$, состоящие из агломератов первичных частиц диаметром $20\text{--}40\text{ нм}$.

Обнаружение частиц сажи в перистых облаках [33] дало возможность предположить значительное влияние гетерогенной нуклеации на происхождение этих облаков. В настоящее время основными механизмами образования перистых облаков считаются гетерогенное замерзание при конденсации и росте капель и замерзание растворов в аэрозолях, инициированное наличием сажевых ядер [18, 34]. Ежегодный рост частоты появления перистых облаков до 10% за декаду в коридорах полетов авиации позволяет предположить, что эмитированные авиацией сажевые аэрозоли являются эффективными ядрами конденсации для образования облачности, инициируя нуклеацию льда при более низких пересыщениях, чем это необходимо для гомогенного замерзания сульфатных аэрозолей.

Оценки гетерогенных процессов в верхней тропосфере дают возможность описать разницу в порогах формирования облаков в Южном и Северном полушариях, обусловленную различным составом замерзающих капель за счет примеси загрязняющих частиц. В предположении, что частицы сажи покрыты слоем H_2SO_4 [26, 32], а ядра замерзания — смешанные аэрозоли, состоящие из водного раствора серной кислоты с включениями сажи, получено пороговое значение концентрации ледяных ядер нуклеации N_c , выше которого гетерогенное замерзание доминирует над гомогенным. Оказалось, что при $S_0 = 30\%$ и $w = 1\text{ см/с}$ концентрация ледяных частиц $N_c \approx 0,4\text{ см}^{-3}$. Массовая концентрация сажевых частиц $\sim 0,01\text{--}0,1\text{ нг/м}^3$ типична для фоновой атмосферы, загрязненной продуктами эмиссии авиации [18]. Следовательно, гетерогенная нуклеация является наиболее вероятным механизмом образования перистых облаков в Северном полушарии.

Расчеты температур гетерогенного замерзания сульфатных растворов на частицах сажи показывают, что даже при больших контактных углах значения S_i ниже необходимых для гомогенной нуклеации. Поэтому, если предположить, что все частицы сажи в тропосфере при концентрации $\sim 0,1\text{ см}^{-3}$ становятся ядрами замерзания, то основным следствием гетерогенной нуклеации будет снижение концентрации ледяных частиц, поскольку растущие кристаллы льда значительно понижают парциальное давление паров H_2O . Только в случае очень высокой концентрации частиц сажи, более 1 см^{-3} , типичной для дальнего следа самолета, концентрация ледяных частиц может возрасть.

В случае, если сажевые аэрозоли являются активными ядрами нуклеации льда, то наиболее важным в этом процессе будет прямое осаждение на саже паров воды. Гидрофобная сажа может вносить большой вклад в гетерогенную нуклеацию, если учесть конденсацию не на сферических первичных частицах, а в мезопорах агломератов первичных частиц, составляющих моду крупных аэрозолей. В этом случае даже при контактном угле $\sim 80^\circ$ значения пересыщения $S_i = 15\text{--}20\%$ будут достаточны для гетерогенной нуклеации [38].

При $w < 20\text{ см/с}$ и начальной температуре выше $-50\text{ }^\circ\text{C}$ гетерогенная нуклеация на ацетиленовой саже может привести к понижению на порядок концентрации ледяных частиц в облаках. Значительным может оказаться и влияние гетерогенных процессов на пороговые условия формирования облаков. Расчеты с учетом доли замерзших капель благодаря наличию в них до 50% сажи дают результаты, близкие к натурным наблюдениям.

Изменение условий формирования облаков за счет гетерогенной нуклеации влияет и на радиационные свойства облаков, так как большое количество малых кристаллов льда с примесями поглощает и рассеивает солнечное излучение значительно более эффективно, чем меньшее количество больших кристаллов. Инициированные полетами самолетов облака оказываются оптически более тонкими, чем

природные, что снижает их влияние на радиационный баланс. В регионах, загрязненных выбросами продуктов горения топлив, может наблюдаться увеличенное покрытие облаками (из-за понижения порога формирования). Однако эти облака будут оптически тонкими, за исключением области формирования конденсационных следов самолетов, где концентрация ядер нуклеации намного порядков превышает концентрацию в фоновой атмосфере и поэтому облака формируются с большой оптической плотностью.

До сих пор не обнаружено сколько-нибудь значительного влияния присутствия сажевых аэрозолей на газовый состав атмосферы [40]. Влияние эмиссии сажевых частиц на климат обусловлено формированием долгоживущих конденсационных следов (прямой эффект) [39] и инициированием образования перистых облаков (вторичный эффект).

Величина эмиссии сажи авиацией в атмосферу в настоящее время порядка $(1,5-2,0) \cdot 10^{-3}$ Тг/год. На высотах более 10 км она будет существенно превышать вклад эмиссии поверхностных источников сажи благодаря высокой активности этих частиц как облачных ядер конденсации (ОЯК), их быстрому осаждению и вымыванию из тропосферы. Постоянное увеличение частоты полетов самолетов дает основание для прогноза роста массовой концентрации авиационных сажевых аэрозолей именно на высоте ~10 км в северных широтах. Максимальное значение ежегодного увеличения массовой концентрации частиц сажи может достигать 0,6 нг/м³ как раз в районе средних широт Северного полушария [24].

По данным ИКАО, к 2050 г. ожидается 5–10-кратное увеличение интенсивности полетов по сравнению с началом века [24]. При накоплении частиц сажи в тропосфере в результате роста потребления топлива авиацией возрастает и область покрытия конденсационными следами: с 0,06% в 1992 г. эта область увеличится до 0,23% в 2050 г. и соответственно в 4 раза увеличится радиационный эффект от конденсационных самолетных следов (от 3,5 до 14,8 мВт/м²). Однако радиационный эффект и даже знак эффекта от инициированных авиацией перистых облаков до сих пор не определены [24]. В отличие от сульфатных аэрозолей частицы сажи могут вызывать нагрев, приводящий к выполаживанию вертикального профиля температуры в атмосфере и к уменьшению облакообразования. Наряду с уменьшением размеров облачных частиц сажевые аэрозоли могут предотвращать выпадение осадков, что приведет к тому, что области выпадения осадков будут смещены из высоко загрязненных районов в морские и горные районы, создавая новую экологическую проблему свежей воды. Поэтому необходимы дополнительные исследования для оценки эффекта эмиссии авиацией сажевых частиц на образование облаков и осадков, на региональном и глобальном уровнях, чувствительности этого процесса к физико-химическим свойствам авиационных сажевых аэрозолей.

Рассматривают полииновую, полиароматическую и ионную модели формирования сажи в зависимости от типа молекул, образующих зародыши. Полииновая модель основана на том, что термическая стабильность полиинов, из которых простейшим является ацетилен, увеличивается с ростом температуры, в то время как стабильность других соединений, образующихся при горении углеводородных топлив, падает. Каждый полииновый радикал $C_{2n}H$ и молекула $C_{2n}H_2$ реагируют с образованием комплексов со свободной связью, к которым присоединяются полииновые молекулы, т.е. осуществляется процесс полимеризации с образованием полимерных зародышей. Первичные сажевые частицы имеют полимерную структуру и высокую скорость роста поверхности частиц. Образовавшиеся частицы коагулируют друг с другом в результате столкновений, и возникают кластеры разной фрактальности. Существует тесная связь между образованием полииновых цепочек и формированием полиароматических углеводородов, фуллеренов и фуллереноподобных структур [47].

В полиароматической модели отдельные молекулы полиароматических углеводородов (ПАУ—мономеры, достигшие определенного размера, например молекулы, содержащие 4 бензольных кольца) при столкновении с другими молекулами начинают кластеризоваться, формировать ПАУ-димеры, ПАУ-тримеры и т.д. В дальнейшем ПАУ-кластеры эволюционируют в твердые частицы. Важной стадией формирования полидисперсного ансамбля сажевых частиц в данной модели является рост поверхности образовавшихся кластеров и частиц за счет осаждения молекул из газовой фазы. Этот механизм аналогичен механизму формирования ПАУ-молекул в газовой фазе. В основе его лежит присоединение к свободной связи находящейся на поверхности молекулы ПАУ ацетилена, а свободные связи на поверхности частиц образуются в результате гетерогенных реакций с кислород-водородсодержащими молекулами и радикалами. Коагуляция первичных частиц играет важную роль в формировании более крупных кластеров и агломератов и, в конечном счете, в формировании распределения частиц по размерам.

Ионная модель основана на том, что в ацетиленокислородном пламени перед зоной образования сажевых частиц обнаружена высокая концентрация положительных ПАУ-ионов. Они образуются в результате взаимодействия формирующихся при хемоионизационных реакциях ионов $C_3H_3^+$ и их производных с полииновыми молекулами или с полиароматическими радикалами по схеме конденсации ПАУ-молекул на их поверхности. Согласно этой модели сажевые частицы могут нести положительный электрический заряд.

Однако экспериментальные данные о наличии положительного и отрицательного заряда на образующихся сажевых частицах не объясняет даже объединенная модель всех трех механизмов. Основной причиной формирования положительно

и отрицательно заряженных частиц сажи является взаимодействие первоначально нейтральных частиц с образующимися в зоне горения ионами и электронами. При этом на начальной стадии взаимодействия вследствие более высокой скорости прилипания электронов к сажевым частицам на них накапливается значительный отрицательный заряд. Так, частицы диаметром 100–150 нм могут приобретать до 40–60 элементарных зарядов. Формирование частиц с большим отрицательным зарядом стимулирует осаждение на их поверхности молекул H_2O , SO_3 , NO_3 , HNO_2 , HNO_3 , органики и других химических соединений, обладающих собственным дипольным моментом.

Оценки показывают, что вероятность осаждения молекул H_2O на частице диаметром $d = 20$ нм и зарядом $q = 16e$, где e – элементарный заряд, по сравнению со случаем отсутствия заряда увеличивается в 50 раз. Характерное время осаждения полярных молекул типа SO_3 и HNO_3 на частицу $d = 10$ нм составляет $\sim 10^{-2}$ и 1 мс, т.е. на заряженных частицах уже в зоне горения могут осажаться различные водорастворимые соединения. С течением времени (5–10 мс) распределение частиц по заряду становится более симметричным и заряд, аккумулированный крупными частицами, не превышает 10.

На поверхности частиц сажи обнаружены легколетучие и термически стабильные компоненты. Легколетучее ($T_{\text{н}} = 390$ К) вещество составляет 1–2% от объема частиц сажи $d > 50$ нм при низком содержании серы в топливе и увеличивается до 5% при высоком. Более термически стабильные компоненты, летучие при $T > 573$ К, составляют 15% от объема частиц $d < 30$ нм. С размером частиц их содержание уменьшается. Наибольший интерес представляет наличие на поверхности водорастворимого вещества (ВРВ), участвующего в процессе гидратации частиц и определяющего их способность образовывать облачные ядра конденсации. ВРВ – это в первую очередь серная кислота, адсорбирующаяся на частицах в процессе охлаждения в струе. Доля H_2SO_4 в частицах с ростом их размера уменьшается: для диаметров 30, 50 и 100 нм составляет соответственно 21, 9,5 и 3% [45]. По-видимому, гидрофильные компоненты на поверхности сажевых аэрозолей накапливаются еще в процессе горения.

При адсорбции молекул H_2O сначала происходит образование водородных связей с активными центрами на поверхности, а далее с ростом относительной влажности вокруг первично адсорбированных молекул H_2O образуются кластеры и заполняются микропоры. При высоких относительных влажностях происходит капиллярная конденсация в мезопорах и полислийная адсорбция.

На гигроскопичности и гидрофильности сажи сказывается большая роль серо- и кислородсодержащих компонентов (кислородсодержащих органических соединений, серосодержащих ионов, органических сульфатов), которые входят в состав адсорбированных на части поверхности сажевых

частиц ВРВ, в то время как остальная часть поверхности остается гидрофобной.

Способность частиц поглощать пары воды определяется содержанием серы в топливе. При низком содержании серы $\sim 0,005\%$ и относительной влажности 95% частицы диаметром 50 нм увеличивают свой размер только на 1%, что составляет меньше монослоя H_2O , а при высоком $\sim 0,127\%$ – на 16%, что соответствует 20 слоям молекул H_2O и поддерживает гипотезу об объемном поглощении паров воды в поверхностном слое частиц сажи.

Регистрация двух фракций в составе эмитируемых сажевых аэрозолей позволяет предположить, что гидрофильная фракция примесей, содержащая высокое количество растворимого вещества, может поглощать пары воды в нормальном конденсационном процессе, а процессы активации существуют для гидрофобной основной фракции частиц сажи. Низкое количество ВРВ может активировать гидрофобную «нерастворимую» фракцию эмитированных частиц сажи, но не может повлиять на процессы, происходящие на поверхности частиц. Возможным механизмом осаждения молекул H_2SO_4 , SO_3 , HNO_3 и других дипольных молекул из газовой фазы является электростатическое взаимодействие этих молекул с сажевыми частицами.

Активация частиц сажи может происходить при прямом осаждении паров HNO_3 в струе. Эксперименты при максимально возможной концентрации молекул HNO_3 в струе $\sim 10^{11}$ см $^{-3}$ показали существование эффекта окисления поверхности, приводящее к адсорбции воды при $T = 240$ К. Однако в случае нормального содержания серы доминирующими в образовании конденсационного следа остаются процессы адсорбции на изначально «активной» фракции примесей.

В период 1994–1999 гг. была выполнена серия полевых наблюдательных экспериментов SULFUR с целью исследований эмитируемых самолетами шлейфов из продуктов их выбросов и последующего формирования инверсионных следов (ИС) и аэрозольных частиц при различном содержании серы в авиационном топливе (FSC) в пределах от 2 до 5500 мкг/г, а также для различных летных условий и типов самолетов (ATTAS, A-310, AA-340, B-707, B-747, B-737, DC-8, DC-10) [26].

Измерения доли топливной серы ϵ , превращающейся в серную кислоту, дали значения в пределах 0,34–4,5% для более старых двигателей МК-501) и $(3,3 \pm 1,8)\%$ для более новых двигателей CFM56-3B1. При низком уровне FSC величина ϵ оказывается значительно меньше, чем это определяется объемом летучих частиц в продуктах выбросов. Если $FSC \geq 100$ мкг/г, а для ϵ используются измеренные значения, то пары серной кислоты оказываются наиболее существенным предшественником летучих аэрозолей, возникающих в самолетном шлейфе загрязнений, обусловленном современными авиационными двигателями.

Согласно данным измерений характеристик аэрозолей в различных условиях значения ϵ варьируют в пределах 0,5–10% в зависимости от типа

двигателя и условий полетов. Количество частиц в шлейфах различных дозвуковых самолетов может изменяться от $2 \cdot 10^{14}$ до $3 \cdot 10^5$ кг^{-1} в случае нелетучих частиц (это, главным образом, частицы черного углерода, или сажи) и возрастает до $2 \cdot 10^{17}$ кг^{-1} для летучих частиц размером более 1,5 нм при «возрасте» шлейфа порядка нескольких секунд [43]. Значительную долю массы продуктов выбросов составляют частицы кемийонов (С1), образующиеся при сгорании керосина. С1 включают вещества, содержащие серу и органические компоненты. Концентрация частиц кемийонов у выхода из сопла двигателей достигает почти 10^9 см^{-3} .

Таким образом, основным кандидатом для формирования гетерогенных ядер нуклеации льда в струе оказываются сажевые аэрозоли [19]. Высокая доля ВРВ на поверхности гидрофильной фракции сажи позволяет объяснить первоначальное появление жидких капель в струе без привлечения эффектов активации. Частицы такой сажи являются активными ОЯК, при температуре в следе ~ 240 К они могут адсорбировать до 20 монослоев (МС) молекул воды. При $\epsilon = 13,5\%$ для частиц $d = 80$ нм имеем $S_w^c = 0,08\%$. При высоких скоростях охлаждения струи слой адсорбированной на сажевых частицах воды неизбежно замерзает, а дальнейшая конденсация паров воды приводит к формированию ледяных частиц. Это предположение подтверждает экспериментальное наблюдение очень большого отношения облачных ядер конденсации ко всем ядрам конденсации ОЯК/ЯК $\ll 0,5$ в дальнем следе самолета, что в условиях незначительного накопления серной кислоты на поверхности частиц может быть объяснено исключительной высокой активностью частиц фракции «примесей», таких как ОЯК [45]. Небольшая разница в появлении видимого КСС при разных содержаниях серы в горючем [46], вероятно, объясняется высокой концентрацией ВРВ на поверхности сажевых частиц, приобретенной уже в тракте двигателя. Органические ВРВ могут вносить значительный вклад в формирование ОЯК даже при отсутствии серы в топливе.

Гидрофобные частицы основной фракции сажи в значительной степени остаются «неактивными». Однако поверхность частиц, окисленная при взаимодействии с молекулами H_2SO_4 и HNO_3 , может адсорбировать несколько монослоев молекул воды, что достаточно для их активации как ОЯК. Будут ли такие частицы активированы как ОЯК и смогут ли они сформировать конденсационный след, зависит от конкретных условий в струе.

Если давление паров воды в фоновой атмосфере не превышает давление насыщения, необходимо для фазового перехода пара в лед, то конденсационный след исчезает через несколько секунд. В противном случае ледяные кристаллы растут и КСС первоначально линейной формы расширяется и трансформируется (со скоростью 1–8 км/ч) в новое облако. В перистых облаках, образование которых инициировано авиацией, наблюдается увеличение в 1,6–2,8 раза по сравнению с фоновой

концентрация ледяных кристаллов при содержании сажи до 10 $\text{нг}/\text{м}^3$. Для таких облаков характерно увеличение концентрации ледяных частиц при уменьшении их диаметров на 10–30% [18, 26].

Концентрация частиц льда и их размер в атмосфере сильно зависят от времени их существования. За 30 мин среднее значение диаметра ледяных частиц увеличивается от 1 мкм в ближнем следе до 10 мкм в образующемся в результате трансформации следа облаке. В эволюционирующем конденсационном следе концентрации ледяных частиц падают от счетной концентрации больше 2000 см^{-3} до 10 – 15 см^{-3} . Последняя цифра является типичной для концентрации ледяных частиц в «молодых» перистых облаках.

Натурные наблюдения над Европой и Америкой дают среднее значение для площади покрытия долгоживущими самолетными следами – 0,5% (при максимальной величине – 2% зимой) в полетном коридоре Северо-Атлантического региона. Интенсивность покрытия согласуется с частотой появления пересыщенных парами воды воздушных масс и потреблением авиацией топлива [15]. Особенно сильные изменения наблюдались над Северной Америкой: до 9,9% за период декабрь–май, когда регистрировалась наибольшая частота появления долгоживущих следов. В районе между 39 и 42° с.ш. это увеличение достигало 13,3%. Подобная корреляция наблюдается и для роста концентрации сажевых аэрозолей в атмосфере [40]. Экспериментальные и численные исследования показали значительную роль авиации в глобальном распределении частиц сажи [15, 38, 45]. Установлено увеличение усредненного максимального значения массовой концентрации частиц сажи на высотах 10–12 км и широте $(60 \pm 9)^\circ$ с.ш. до $\sim 0,6$ $\text{нг}/\text{м}^3$. Объяснения наблюдаемого увеличения частоты появления перистых облаков и увеличения их доли покрытия небосвода не могут дать в отдельности такие причины увеличения облачности, как извержение вулканов или крупномасштабные изменения относительной влажности и климатические вариации.

Конденсационный след самолета легко идентифицируется по его «линейной» форме и относительно малому размеру ледяных частиц, что позволяет различать его радиационные свойства и свойства природных облаков [39]. Это оптически тонкие облака, которые нагревают земную атмосферу [24]. Радиационный эффект от самолетных следов, эволюционировавших в облако, увеличивается в 10 раз и дает существенный вклад в изменение климата в региональном масштабе.

5. Временные тренды содержания аэрозолей в атмосфере

Анализ данных по аэрозольным загрязнениям с 1980 по 2000 г. показал определенную тенденцию уменьшения содержания аэрозолей в этот период. Например, обнаруживается тенденция убывания концентрации взвешенных веществ в воздухе таких городов, как Калькутта, Афины, Мадрид, Милан

за 10-летний период с 1975 по 1985 г. [3]. Сопоставление результатов позволяет сделать вывод, что убывание концентрации аэрозолей имеет явно не антропогенное происхождение, так как объем антропогенных выбросов в мире в 80-х гг. почти не уменьшался.

Можно полагать, что в данном случае существенно уменьшилась фоновая компонента, обусловленная естественными природными процессами, и полученный результат отражает многолетнюю динамику существования атмосферных аэрозолей: наблюдается волнообразное изменение концентрации аэрозолей в нижней атмосфере, которое обусловлено естественными причинами, и период колебаний близок к известному 11-летнему циклу [2].

Анализ возможных причин появления длительных трендов счетной концентрации аэрозолей свидетельствует, что убывание концентрации антропогенных аэрозолей объясняет не более 15% изменения их величины при общем изменении в несколько раз. Анализ других причин такой цикличности приводит к выводу, что они создаются многолетней изменчивостью общей циркуляции атмосферы и, в частности, перестройкой зональной компоненты на меридиональную. Уменьшение счетной концентрации аэрозолей над территорией Западной Сибири в период с 1984 по 1990 г. сопровождалось уменьшением над этой территорией количества восточных форм циркуляции и небольшим ростом западной и меридиональных форм. Данные за 1983 и 1991 гг. отклоняются от этой тенденции. Аналогичный вывод можно сделать, обратившись к индексам циркуляции Каца: падение концентрации аэрозолей происходит на фоне общего роста интенсивности зональной формы циркуляции при относительно небольших вариациях интенсивности меридиональной.

Тренд концентрации аэрозолей в середине 80-х гг. был обусловлен циркуляционными процессами: увеличением повторяемости и интенсивности зональной западной циркуляции при повышении повторяемости меридиональной циркуляции без существенного изменения ее интенсивности. Это подтверждается и ростом индекса циркуляции Блиновой, который представляет собой отношение линейной скорости движения воздуха вдоль круга широты к расстоянию до оси вращения Земли. Этот индекс с 1984 по 1989 г. вырос с 34 до 42, т.е. интенсивность зональной циркуляции в этот период возрастала. При усилении интенсивности западного зонального потока над Уральскими горами увеличивается вероятность образования высотного гребня давления, который выполняет блокирующую роль. На территорию Западной Сибири начинают поступать воздушные массы с Северного Ледовитого океана по ультраполярным траекториям.

На фоне усиления интенсивности западной зональной циркуляции имеет место одновременное повышение повторяемости блокирующих процессов над Уралом, с 16% в 1983 г. до 30% в 1988 г. Отсюда следует, что тренд концентрации аэрозолей обусловлен сложением двух процессов: 1) повыше-

нием повторяемости поступающих с Атлантического океана по зональным траекториям умеренных воздушных масс и 2) изменением траектории арктических масс, которые попадают на территорию Западной Сибири не через европейскую территорию России, а по ультраполярным (меридиональным) траекториям с Карского моря. Поэтому арктические массы были более чистыми, с меньшим содержанием сажевого компонента. Такой вывод следует также из анализа данных химического состава аэрозолей. В рассматриваемый период в составе аэрозолей значительно возросло содержание NH_4^+ и Na^+ , которые относятся к морским аэрозолям. Из роста этих компонентов можно исключить антропогенный фактор [2].

Временные вариации содержания аэрозолей меньших масштабов (годовые и сезонные) обусловлены в значительной степени процессами на подстилающей поверхности. В частности, выбросы пыли в атмосферу в сильной степени контролируются свойствами растительного покрова. Так, например, в условиях полуаридного климата быстрое развитие травяного покрова порождает подавление этих выбросов за время от нескольких суток до недель, тогда как наличие кустарниковой растительности вызывает существенное их снижение даже в тот период времени, когда растения лишены листьев.

В регионах со скудной растительностью подстилающая поверхность не везде служит интенсивным источником пыли. Наблюдается увеличение интенсивности выбросов пылевого аэрозоля (ПА) в тех регионах, где сформировались обширные участки поверхности, обладающие малой шероховатостью (например, поверхности дна высохших палеозер), и увеличилась концентрация мелкозернистого материала на поверхности. К сожалению, существующие модели процессов формирования и трансформации глобального пылевого аэрозоля лишь приблизительно воспроизводят перенос ПА и их последующее осаждение на подстилающую поверхность. Они оказались не способны достоверно воспроизвести мощность источников выбросов ПА в Сахаре и в Азии, завышают эти выбросы и их перенос, в частности из Австралии.

6. Вариации состава и морфологической структуры аэрозольных частиц

Комплексные исследования различных типов аэрозолей вызывают в последнее время наибольший интерес и становятся все более многочисленными и разнообразными, тем более что для решения задач прогноза климата необходимо знать не только величину аэрозольного притока тепла, но и каково влияние аэрозолей на фазовые переходы воды, а также на изменения химического состава атмосферы. В работе [41] обсуждены результаты уникальной трехлетней серии одновременных измерений химических и оптических (поглощения и рассеяния) свойств аэрозолей, выполненных в Барроу (Аля-

ска). Все результаты получены при относительной влажности воздуха $\leq 40\%$. Они позволили детально проанализировать закономерности годового хода массовой концентрации аэрозолей, а также таких его компонентов, как морские соли, несольевые сульфаты (nss), метаносульфат, или MSA^- , NH_4^+ и nssK^+ , Mg^{+2} и Ca^{+2} для диапазонов субмикронных и супермикронных размеров. Максимумы концентрации субмикронных фракций nssSO_4^{2-} , NH_4^+ , nssK^+ , Mg^{+2} и Ca^{+2} отмечаются зимой и ранней весной, что соответствует времени поступления устойчивой «арктической дымки». Максимальные значения концентрации неморских сульфатных аэрозолей nssSO_4^{2-} зарегистрированы в Барроу. Эти значения уменьшались для данных различных наблюдательных пунктов с широтой в последовательности: Покер–Флэт–Денали–Гомер, выявляя тем самым наличие меридионального градиента плотности «арктической дымки».

Глобальный годовой ход морских солевых аэрозолей, особенно их субмикронной фракции, в средних и высоких широтах обусловлен, в первую очередь, влиянием дальнего переноса с Тихого и Атлантического океанов. Максимум концентрации наблюдается летом и связан с уменьшением протяженности морского ледяного покрова. Максимумы концентрации субмикронной и супермикронной фракций метаносульфатных аэрозолей, зарегистрированные летом, объясняются сезонным возрастанием потока биогенного диметилсульфида из океана в атмосферу. В зимний период до 80–90% массы аэрозолей составляют субмикронные ионизированные частицы и связанная с ними вода, причем доминирующие компоненты – морские соли и nssSO_4^{2-} . В случае супермикронной фракции ионизированная масса аэрозолей и связанная с ней вода составляют до 60–80% общей массы в течение всего года при доминировании солевых частиц.

По оптическим измерениям аэрозольного рассеяния основным компонентом зимой являются морские солевые аэрозоли, тогда как весной доминирует nssSO_4^{2-} , а летом – оба типа аэрозолей. Для SO_4^{2-} эффективность рассеяния относительно неизменна в течение всего года при среднесезонных значениях, варьирующих от $(4,1 \pm 2,9)$ до $(5,8 \pm 1,0)$ $\text{m}^2/\text{г}$, но для субмикронных морских солевых аэрозолей годовой ход значителен – от $(1,8 \pm 0,37)$ до $(5,1 \pm 0,97)$ $\text{m}^2/\text{г}$, а для остаточных аэрозолей – от $(0,21 \pm 0,31)$ до $(1,5 \pm 1,0)$ $\text{m}^2/\text{г}$. В условиях удаленной морской атмосферы доминирующий вклад в массу аэрозолей и ослабление света вносят суб- и супермикронные морские солевые аэрозоли.

Одним из наиболее трудных аспектов учета разнообразия оптических свойств аэрозолей является проблема свойств аэрозолей, имеющих смешанный состав. На основе комбинированного применения дифференциального анализатора подвижности и оптического счетчика частиц исследовались оптические свойства аэрозолей смешанного состава по данным наблюдений в Цукубе (Япония) [25]. В среднем около 50% всех исследованных частиц

были классифицированы как принадлежащие к категории оптически внешних смесей; 71% от величины коэффициента рассеяния аэрозолей обусловлен вкладом сульфата аммония, который в отдельные периоды времени уменьшается до 41%. Учет несферических частиц показывает, что их доля иногда достигает 50%.

Несомненно, что имеющиеся данные об оптических свойствах аэрозолей до сих пор довольно фрагментарны. Особенно это относится к комплексному показателю преломления (КПП) аэрозольных частиц и их зависимости от длины волны. Автором [1] еще в 70-х гг. была предложена «синтетическая» модель КПП, являющаяся серьезным прорывом в решении этой проблемы, но требуется проведение работ экспериментально-технического плана. Из этой модели следует, что вещественная часть комплексного показателя преломления у частиц, содержащих электролиты, больше при низком, чем при высоком уровне относительной влажности (RH), и, следовательно, разность показателей преломления всех и растворимых частиц возрастает с уменьшением RH . Показатель преломления раствора, как правило, увеличивается с уменьшением размера частиц.

Однако для дальнейших исследований недостаточно данных о КПП частиц, состоящих из серной кислоты, тригидрата азотной кислоты, окиси алюминия, хлористого калия, сульфата аммония, различных видов пылевых аэрозолей. Спектры поглощения и эмиссии в среднем ИК-диапазоне (длины волн 2–20 $\mu\text{м}$) для сульфата аммония (AMS: $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$), карбоната кальция (CAC: CaCO_3) и нитрата аммония (AMN: NH_4NO_3) изучаются на основе использования методики Фурье-спектроскопии при высоком спектральном разрешении.

Использование «синтетической» модели предполагает хорошую перемешанность частиц. Процесс коагуляции обуславливает внутреннюю перемешанность частиц, имевших первоначально различный состав, во всем диапазоне размеров частиц. Нетривиально утверждение, что коагуляция приводит к более сильной внутренней перемешанности больших, а не малых частиц, из-за того что более эффективно протекает процесс коагуляции больших частиц. При наличии смеси аэрозолей различной микроструктуры за счет коагуляции формируется такая же единая микроструктура, как и при коагуляции в условиях одной микроструктуры, если в обоих случаях первоначальные распределения по размерам приблизительно одинаковы.

В ходе «соревнования» за водяной пар в процессах однородной нуклеации относительная роль конденсации усиливается с ростом счетной концентрации фоновых частиц. При этом конденсация благоприятствует фракционному покрытию частиц пленкой в большей степени в случае малых частиц. В отсутствие генерации новых частиц процессы коагуляции, конденсации, растворения, гидратации и химические реакции обеспечивают внутреннюю перемешанность частиц в течение примерно половины суток в условиях умеренно загрязненной атмосферы.

Влияние атмосферного аэрозоля как загрязняющего атмосферу и климатообразующего компонента существенно зависит от фазового состояния частиц (жидких или твердых), их водосодержания, а также от распределения летучих компонентов между аэрозольными частицами и газообразной фазой. В связи с этим необходимы модели аэрозолей, пригодные для вычислений состава и состояния аэрозолей в широком диапазоне изменений температуры и влажности воздуха. Хотя вполне допустимо предположение о наличии термодинамического равновесия, но даже в этом случае фазовое состояние частиц аэрозолей может быть достаточно сложным, поскольку: 1) существуют различные возможности формирования твердой фазы; 2) поведение жидкой фазы аэрозолей является, по видимому, в сильной степени неидеальным при высокой концентрации раствора в условиях низкой температуры. Значительная часть аэрозольной массы состоит из неорганических электролитных соединений, которые диссоциируют в воде с образованием ионов.

На основе комбинированного рассмотрения уравнений для газообразной фазы (с учетом констант равновесного образования газообразной и твердой фаз) и алгоритма минимизации свободной энергии A.S. Wexler, S.L. Clett [48] разработали модель равновесного распределения фаз для неорганических атмосферных аэрозолей. Эта модель позволяет вычислить водосодержание, фазовое состояние и распределение компонентов между аэрозольной и газообразной фазами при заданных ионном составе, температуре и относительной влажности. Функционирование модели адекватно ситуации в диапазоне условий: температура от < 200 до 328 K для подсистем $H^+ - SO_4^{2-} - NO_3^- - Cl^- - Br^- - H_2O$ и $H^+ - NH_4^+ - SO_4^{2-} - NO_3^- - H_2O$; и $298,15$ K в случае $H^+ - NH_4^+ - Na^+ - SO_4^{2-} - NO_3^- - Cl^- - H_2O$. Модель позволяет учесть все возможные виды твердой фазы, в том числе различные формы гидратированных и двойных солей. Были получены значения постоянной закона Генри для H_2SO_4 в зависимости от температуры, уточнен процесс растворимости HBr в водном растворе H_2SO_4 , а также рассчитаны фазовые диаграммы для системы $(NH_4)_2SO_4/H_2SO_4/H_2O$ в широком диапазоне температуры (до 210 K). Полевой наблюдательный эксперимент INTERCOMP-2000 в рамках программы EUROTRAC-2 AEROSOL состоял в получении результатов наблюдений для оценки возможности замыкания данных о покомпонентном химическом составе аэрозолей. Забор проб аэрозолей производился одновременно на четыре фильтра: тонкий и грубый нуклеопоровые поликарбонатные фильтры Gent PM10 и два кварцевых фибровых фильтра Ватмана QM-A. Пробы подвергались анализу для определения распределения по массе 42 элементов с комбинированным применением методик индуцированной рентгеновской эмиссионной спектроскопии, нейтронного активационного анализа и ионной хроматографии.

При этом анализ проб на кварцевых фильтрах на содержание органического и элементного углерода проводился с помощью термооптической трансмиссионной методики. Расчеты покомпонентного замыкания баланса массы различных компонентов аэрозолей выполнялись отдельно для тонкодисперсной ($PM_{2.5}$, < 2 мкм) и грубодисперсной ($2-10$ мкм) фракций аэрозолей — учитывались 9 типов аэрозолей. В число главных компонентов грубодисперсной фракции входило вещество грунта, органические аэрозоли и нитраты. Доминирующими компонентами мелкодисперсной фракции являлись органические аэрозоли, нитраты и сульфаты. Атмосферные аэрозоли представляют собой смесь многих компонентов, которыми являются, в частности, неорганические кислоты (например, H_2SO_4 , HNO_3), их соли (в том числе $(NH_4)_2SO_4$, NH_4NO_3) и вода. Поскольку значительная часть компонентов является в высшей степени гигроскопичной, масса содержащейся в частицах аэрозолей воды часто превосходила их сухую массу, особенно в условиях влажной нижней тропосферы. Следует отметить, что многокомпонентность состава атмосферных аэрозолей до сих пор не учитывается в глобальных моделях химических процессов в атмосфере и в моделях климата, поскольку это требует сложных расчетов.

S. Metzger et al. [33, 34] предложили новую эффективную модель для расчета распределения между аэрозольной и газообразной фазами для полугетучих компонентов неорганических аэрозолей, которая может быть использована как блок, описывающий химические процессы в глобальной атмосфере в моделях климата. Главную роль в этой модели играет новая методика учета равновесного распределения фаз газ/аэрозоли в рамках приближенной аэрозольной модели EQSAM [32].

Расчеты показывают, что соотношение между аэрозольной и газообразной фазами оказывает сильное влияние на газофазные концентрации при относительно низкой температуре. Ночью — в течение всего года, а также круглосуточно зимой рассчитанная концентрация аэрозолей, включая содержащуюся в его частицах воду, оказывается значительно более высокой, если учесть распределение фаз газ/аэрозоли. Это происходит потому, что газообразная азотная кислота вблизи подстилающей поверхности часто нейтрализуется аммонием и, таким образом, становится практически полностью сконцентрированной в аэрозольной фазе в виде нитрата аммония NH_4NO_3 . Подобные аэрозоли имеют более продолжительное время жизни в атмосфере, чем их газы-предшественники NH_3 и HNO_3 , и поэтому могут претерпевать перенос на большие расстояния, например из Индии в Африку и Европу.

Одним из наиболее стабильных источников образования частиц аэрозолей в атмосфере является механизм газофазных процессов трансформации малых газовых компонентов в частицы с участием паров серной кислоты (целый ряд фактов указывает на существование высокой корреляции между H_2SO_4 и вновь образовавшимися частицами). Воз-

можным ключевым участником подобной трансформации является также аммиак. D.R. Hanson, F.L. Eisele [23] выполнили лабораторные измерения в проточной кювете концентрации ионно-молекулярных кластеров $\text{HSO}_4^- (\text{H}_2\text{SO}_4)_{n-1}(\text{NH}_3)_m$, соответствующих нейтральным компонентам $(\text{H}_2\text{SO}_4)_n(\text{NH}_3)_m$, для значений n от 2 до 6 и m от 0 до $n-1$ при температуре до 285 К.

Внутри кюветы происходило образование кластеров в смеси паров воды, серной кислоты и аммиака (в отсутствие аммиака кластеры не возникали). Типичные значения концентрации NH_3 и H_2SO_4 составляли $2 \cdot 10^6 \text{ см}^{-3}$, что соответствует отношению смеси около 100 трл^{-1} (по объему) при нормальном атмосферном давлении. Оценки концентрации кластеров, образующихся в этих условиях, дали значения порядка 10^6 см^{-3} . По-видимому, каждый кластер, который способен участвовать в образовании аэрозольной частицы, содержит две молекулы H_2SO_4 при температуре 275 К. Полученные результаты согласуются с известным фактом образования новых аэрозольных частиц из кластеров $(\text{H}_2\text{SO}_4)_2\text{NH}_3$.

Последние годы отмечены возрастающим интересом к наночастицам (НЧ) в атмосфере благодаря двум обстоятельствам: 1) НЧ предшествуют образованию в атмосфере более крупных частиц аэрозолей, оказывающих существенное воздействие на климат; 2) загрязняющие атмосферу НЧ очень важны как фактор влияния на здоровье человека [13]. Кроме того, НЧ участвуют в гетерогенных химических реакциях, обуславливающих изменения химического состава атмосферы. В химии, физике и материаловедении НЧ определяются как частицы таких размеров, свойства которых отличаются от свойств составляющего их вещества. В исследованиях атмосферных аэрозолей НЧ определяются как частицы диаметром менее 50 нм.

Крупные частицы аэрозолей нередко обладают наноструктурой, которая проявляется в виде агломератов минеральных зерен, сажевых сферул, поверхностных пленок, и оказывают влияние на различные свойства аэрозолей. Так, например, специфика наноструктур влияет, по-видимому, на усвоение воды частицами посредством капиллярной конденсации, а жидкие поверхностные пленки воздействуют на ход гетерогенных химических процессов. С. Anastasio, S.T. Martin [13] сделали подробный обзор имеющейся информации о наночастицах в атмосфере, особенно с точки зрения процессов их образования и роста, химических, физических и механических свойств.

Важный аспект многокомпонентности аэрозолей связан с его ролью в гетерогенных химических реакциях на поверхности аэрозольных частиц, которые оказывают существенное воздействие на концентрацию в атмосфере различных малых газовых компонентов.

В условиях арктического морского пограничного слоя атмосферы (МПСА) часто возникают события спада (низкого уровня отношения смеси) содержания озона во время полярного восхода

Солнца. Гетерогенные реакции на поверхности частиц морских солей и вулканического происхождения с участием галогенов рассматриваются как важный механизм разрушения озона в МПСА весной. События спада содержания озона сопровождаются уменьшением концентрации неметановых углеводородных соединений и изменением их состава.

Исследования химического состава арктических аэрозолей показали, что концентрация дикарбоксильных кислот с короткими цепями возрастает в 5–20 раз в марте–апреле по сравнению с предшествующими месяцами полярной зимы. Подобные результаты свидетельствуют о том, что низкомолекулярные карбоксильные кислоты образуются посредством интенсивного фотохимического окисления летучих органических соединений, в частности вулканического происхождения, которые претерпевают дальний перенос и накапливаются в арктической атмосфере в период полярной зимы [35]. Образование дикарбоксильных кислот связано с химией галогенов.

Химический состав и физическое состояние (например, жидкое или кристаллическое) частиц атмосферных аэрозолей оказывают существенное влияние на их оптические свойства, химическую активность и время жизни в атмосфере, поэтому учет фазового состояния частиц имеет очень важное значение для численного моделирования воздействия аэрозолей на процессы в атмосфере. Хотя для решения соответствующих задач были созданы различные термодинамические модели, их использование серьезно осложняется при понижении относительной влажности, когда трудно моделировать динамику фазы частиц ввиду преобладания метастабильности фазового состояния, обусловленной медленностью кинетики нуклеации.

Нерастворимые компоненты земной коры, покрытые растворимыми электролитами, представляют собой частицы одного из характерных типов аэрозолей. Примером нерастворимых компонентов служат частицы минеральной пыли в пустынях Гоби и Сахара. Проводились лабораторные исследования влияния включений из минеральной пыли на фазу частиц (например, путем гетерогенной нуклеации). Присутствие нерастворимого компонента обеспечивает наличие поверхности, которая значительно уменьшает критическое пересыщение, необходимое, например, для кристаллизации сульфата аммония.

J.-H. Han et al. исследовали образование частиц из минеральной пыли, покрытой нитратом аммония, который является типичным компонентом атмосферных аэрозолей и имеет главным образом антропогенное происхождение [22]. Лабораторные эксперименты в проточной кювете проводились для изучения влияния RH и включений минеральной пыли на физическое состояние частиц из $\text{NH}_4\text{NO}_3/\text{H}_2\text{O}$. Показано, что в случае чисто жидких частиц эфлоресценция отсутствует, но возникает при наличии минеральных включений диаметром 150–400 нм, если RH составляет 3–10% при температуре 298 К. Покрытие слоем $\text{NH}_4\text{NO}_3/\text{H}_2\text{O}$ осуществлялось при

выборе в качестве включений гематита ($\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$), корунда ($\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$), муллита ($\text{Al}_6\text{Si}_2\text{O}_{13}$) и аморфного кремния (am-SiO_2) с применением методики испарения–конденсации и с последующей нейтрализацией с помощью NH_3 . Степень внутренней перемешанности изменялась в пределах 7–27% в зависимости от диаметра частиц минеральной пыли.

Выполненные эксперименты показали, что функционирует механизм гетерогенной нуклеации с последующей хемосорбцией нитрата на поверхности окисленных минералов и образованием кристаллического NH_4NO_3 . В реальных атмосферных условиях частицы, содержащие нитрат, можно разделить на две подгруппы соответственно их гигроскопическим свойствам. Поскольку гетерогенная химия и радиационные свойства сложных частиц сильно зависят от их физического состояния, свойства воздушных масс, содержащих нитратные частицы, и при наличии минеральной пыли изменяются.

Анализ проб, полученных при помощи многокаскадных импакторов, делается с учетом их морского или континентального происхождения, причем модальные параметры (аэродинамический диаметр и дисперсия) находятся по данным о микроструктуре каждого из компонентов аэрозолей. Аэрозоли, захваченные импакторной подложкой, характеризуются наличием двух субмикронных мод (конденсационная мода ($0,30 \pm 0,05$) мкм и капельная мода ($0,65 \pm 0,15$) мкм) и одной или двух супермикронных мод (первая из них (3,5–4,5 мкм), связана с морскими компонентами аэрозолей, а вторая (5–6 мкм) – с минеральными компонентами). Их состав определяется как внешняя смесь nss (неморского) сульфата, аммония и органических кислот в субмикронных модах. Аэрозоли супермикронных мод представляют собой смесь nss-сульфата, аммония, нитрата и органических кислот с компонентами морского и континентального происхождения. Летом и зимой доля массы супермикронной фракции, как правило, уменьшается при переходе от морских к континентальным воздушным массам [2].

Существенная и изменчивая часть субмикронных аэрозолей не является сульфатной, включая значительное количество $\text{nssSO}_4^{2-} + \text{NH}_4^+$, а также элементного (ЕС) и органического (ОС) углерода, что имеет важное значение для корректного определения оптических свойств аэрозолей. В воздушных массах, поступающих с Индийского субконтинента, наиболее высокой концентрацией субмикронных аэрозолей и долей массы характеризуется ЕС, сильно поглощающим в видимой области спектра. ЕС обуславливает усиление ослабления поступающей к подстилающей поверхности солнечной радиации, но, с другой стороны, может приводить к испарению облаков в МПСА, что затрудняет оценки влияния ЕС на РВВ [31].

Аэрозольный шлейф, образующийся под воздействием выбросов в восточном регионе США, сходен по своим свойствам (масса аэрозолей, АОТ, экстинкция) с индийским и азиатским пылевыми шлейфами. По данным экспериментов TARFOX

и NEAQS, концентрация ОС в условиях североамериканского шлейфа оказывается более высокой, чем азиатского, а значения АОТ для этих шлейфов сравнимы [42]. Аэрозоли азиатского шлейфа являются (в отличие от ожиданий) слабо поглощающими. Среднее значение альбеда однократного рассеяния составляет $0,94 \pm 0,03$ [2].

Заключение

Все вышеизложенное позволяет сделать относительно объективные выводы о состоянии проблемы аэрозольного влияния на изменения климата Земли. Ключевым моментом этой проблемы является вопрос интерактивного взаимодействия падающей солнечной радиации, аэрозолей, облачности, возникающих при этом термодинамических и динамических процессов в атмосфере. При критически высоких концентрациях аэрозолей несомненна и роль гетерогенных процессов образования и разрушения газовых и новых аэрозольных составляющих атмосферы. Отметим следующие установленные факты аэрозольного воздействия на состояние атмосферы Земли.

1) Несомненно, наблюдается рост содержания аэрозолей во всех атмосферных слоях: тонкодисперсной фракции в средней и верхней атмосфере, аэрозолей органического происхождения и вторичных в нижних слоях атмосферы.

2) Суммарный эффект от присутствия аэрозолей разных типов заметно отличается от суммы эффектов от отдельных типов частиц.

3) Основную роль в изменчивости радиационного климата Земли, за исключением облачных систем, играют стратосферные аэрозоли.

4) Присутствие аэрозолей ослабляет циркуляцию Гадлея, ослабляет пассаты в тропиках и западные планетарные ветры в субтропиках.

5) Наблюдаются сильные неоднородности химического состава и распределения частиц по размерам и морфологической структуре в зависимости от региона и локальных источников, которые могут существенно сказываться на локальных погодных условиях и циркуляции атмосферы.

6) Считается, что аэрозоли сами по себе не могут вызывать восходящие и нисходящие конвективные движения, но они влияют на фазовые переходы воды, а выделяемая и поглощаемая при этом теплота существенно воздействует на вертикальные движения и общую циркуляцию атмосферы.

7) В высоких слоях атмосферы эффективны фотофоретические процессы движения аэрозольных частиц.

8) Велика роль аэрозолей в крупномасштабных процессах массопереноса вещества на Земле, в перемешивании химических элементов и соединений в поверхностном слое Земли и в приземном слое атмосферы.

9) Гетерогенные процессы на аэрозольных частицах и в каплях, в частности при вулканических извержениях, ведут к быстрому уменьшению кон-

центрации озона и окислению серосодержащих компонентов атмосферы.

Моделирование структуры атмосферных аэрозолей и их влияния на климатические процессы затруднено из-за сильной пространственно-временной изменчивости аэрозолей и недостаточно полных экспериментально полученных сведений о динамических процессах с их участием. В частности, неудовлетворительны сведения о структуре и поведении аэрозолей над океанами, в пустынях, в полярных районах. Недостаточны ряды наблюдений за состоянием аэрозолей, например, для выводов о глобальных трендах в их состоянии. Требуют дальнейшего развития экспериментальные методы аэрозольного мониторинга. Проблемы заключаются в том, что не существует простых и эффективных методов получения всех характеристик, требуемых для моделирования аэрозольных процессов и структур. Общепринят следующий подход: постоянно измеряется небольшое количество параметров, чаще всего коэффициенты рассеяния и ослабления, а затем на базе этих данных и априорных модельных представлений рассчитываются необходимые для конкретной климатической задачи характеристики. Такой подход требует постоянной сверки с данными имеющихся комплексных измерений. Однако в большинстве случаев ограничиваются априорными модельными представлениями. В настоящее время нарабатывается громадный массив данных в системе Aeronet. Этот материал поможет решению многих проблем климата, но, несомненно, требуются периодические комплексные исследования для верификации Aeronet-метода.

1. *Аэрозоль и климат* / Под ред. акад. К.Я. Кондратьева. Л.: Гидрометеоздат, 1991. 541с.
2. *Белан Б.Д., Толмачев Г.Н.* Временная изменчивость аэрозоля над Западной Сибирью в тропосфере // *Оптика атмосфер. и океана.* 1996. Т. 9, № 1. С. 99–105.
3. *Ивлев Л.С.* Начала физики погодо- и климатообразования. Ч. 1. Т. 2. Влияние аэродисперсных систем на динамические и другие климатообразующие процессы в атмосфере. Природные и техногенные аэрозоли. СПб.: ВВМ, 2009. 285 с.
4. *Ивлев Л.С., Волгин В.М.* Вулканы как тепловые машины // *Международ. конф. «Естественные и антропогенные аэрозоли».* VI. 7–10.2008 г. Сб. трудов. СПб.: ВВМ, 2009. С. 89–93.
5. *Ивлев Л.С., Кондратьев К.Я., Хворостовский С.Н.* Влияние космического мусора на состав, оптические свойства и физические процессы в верхней и средней атмосфере // *Оптич. ж.* 2001. Т. 68, № 4. С. 3–12.
6. *Кондратьев К.Я.* Глобальные изменения климата: данные наблюдений и результаты численного моделирования // *Исслед. Земли из космоса.* 2004. № 2. С. 61–96.
7. *Кондратьев К.Я., Ивлев Л.С.* О воздействии антропогенного аэрозоля на климат // *Докл. РАН,* 1995. Т. 340, № 1. С. 98–100.
8. *Кондратьев К.Я., Ивлев Л.С., Крапивин В.Ф.* Свойства, процессы образования и последствия воздействий атмосферного аэрозоля: от нано- до глобальных масштабов. СПб.: ВВМ, 2007. 858 с.
9. *Маккутрик Р.* Тренды в данных о температуре воздуха, полученные с учетом внутренне обусловленной

- корреляции // *Изв. Рус. геогр. о-ва.* 2002. Т. 134, вып. 3. С. 16–24.
10. *Никольский Г.А., Черкасов А.А.* Факторы, формирующие Эль-Ниньо, связанные с движением Земли // *Естественные и антропогенные аэрозоли: Матер. Междунар. конф.* 29.09–04.10. 1997. 1998. С. 73–82.
 11. *Сидоренков Н.С.* Атмосферные процессы и вращение Земли. СПб.: Гидрометеоздат, 2002. 366 с.
 12. *Сывороткин В.Л.* Глубинная дегазация Земли и глобальные катастрофы. М.: ООО «Геоинформцентр», 2002. 250 с.
 13. *Anastasio C., Martin S.T.* Atmospheric nanoparticles // *Rev. Miner. and Geochem.* 2001. V. 44, N 2. P. 293–349.
 14. *Angell J.K.* Difference in radiosonde temperature trends for the period 1979–1998 of MSU data and the period 1959–1998 twice as long // *Geophys. Res. Lett.* 2000. V. 27, N 15. P. 2177–2180.
 15. *Boucher O.* Air traffic may increase cirrus cloudiness // *Nature. (Gr. Brit.)* 1999. V. 397, N 1. P. 30–31.
 16. *Christy J.R., Spencer R.W.* Reability of satellite data sets // *Science.* 2003. V. 301, N 5636. P. 1046–1047.
 17. *Collins M., Senior C.A.* Projections of future climate change // *Weather.* 2002. V. 57, N 8. P. 283–287.
 18. *Danilin M.Y., Fahey D.W., Schumann U., Prather M.J. et al.* Aviation fuel tracer simulation: model intercomparison and implications // *Geophys. Res. Lett.* 1998. V. 25, N 21. P. 3947–3953.
 19. *DeMott P.J., Chen Y., Kreidenweis S.M., Rogers D.C., Sherman D.E.* Ice formation by black carbon particles // *Geophys. Res. Lett.* 1999. V. 26, N 11. P. 2429–2432.
 20. *Essex C. McKittrick R.* Taken by Storm. The Troubled Science, Policy and Politics of Global Warming // *Key Porter Books.* Toronto, 2002. 320 p.
 21. *Haigh J.D.* Climate variability and the influence of the Sun // *Science.* 2001. V. 294, N 5549. P. 2109–2111.
 22. *Han J.-H., Hung H.-M., Martin S.T.* Size effect of hematite and corundum inclusions on the efflorescence relative humidities of aqueous ammonium nitrate particles // *J. Geophys. Res. D.* 2002. V. 107, N 9–10. P. AAC3/1–AAC3/10.
 23. *Hanson D.R., Eisele F.L.* Measurement of pre-nucleation molecular clusters in the NH₃, H₂SO₄, H₂O system // *J. Geophys. Res. D.* 2002. V. 107, N 12. P. AAC10/1–AAC10/18.
 24. *Haverkamp K., Wilhelm S., Sorokin A., Arnold F.* Positive and negative ion measurements in jet aircraft engine exhaust: concentrations, sizes and implications for aerosol formation // *Atmos. Environ.* 2004. V. 38, N 13. P. 2879–2884.
 25. *Heintzenberg J., Okada K., Luo B.P.* Distribution of optical properties among atmospheric submicrometer particles of given electrical mobilities // *J. Geophys. Res. D.* 2002. V. 107, N 11. P. AAC2/1–AAC2/10.
 26. *IPCC Special report, Aviation and global atmosphere* / Ed. J.E. Penner et al. Cambridge, UK: Cambridge University Press, 1999.
 27. *Jaworowski Z.* The global warming volley // *21st Century Science and Technology.* 1999. V. 12. P. 64–75.
 28. *Kondratyev K.Ya.* *Multidimensional Global Change.* Wiley/PRAXIS, Chichester, U.K. 1998. 761 p.
 29. *Kondratyev K.Ya.* Key issues of global change at the end of the second millennium // *Our Fragile World: Challenges and Opportunities for Sustainable Development.* EOLSS Vorruner. 2001. V. 1. P. 147–165.
 30. *Kondratyev K.Ya., Cracknell A.P.* *Observing Global Climate Change.* L.: Taylor&Francis, 1999. 562 p.
 31. *Kristensson A., Gayet J.-F., Strom J., Auriol F.* In situ observations of a reduction in effective crystal di-

- ameter in cirrus clouds near flight corridors // *Geophys. Res. Lett.* 2000. V. 27, N 5. P. 681–687.
32. *Lean J., Rind D.* Earth's response to a variable Sun // *Science*. 2001. V. 292, N 5515. P. 234–236.
 33. *Metzger S., Dentener F., Pardis S., Lelieveld J.* Gas/aerosol partitioning. 1. A computationally efficient model // *J. Geophys. Res. D.* 2002. V. 107, N 16. P. ACH16/1–ACH16/24.
 34. *Metzger S., Dentener F., Krol M., Jenken A., Lelieveld J.* Gas/aerosol partitioning. 2. Global modeling results // *J. Geophys. Res. D.* 2002. V. 107, N 16. P. ACH17/1–ACH17/23.
 35. *Moritz R.E., Bitz C.M., Steig E.J.* Dynamics of recent climate change in the Arctic // *Science*. 2002. V. 297, N 5573. P. 1497–1502.
 36. *Narukawa M., Kawamura K., Hatsushika H., Yamazaki K., Li S.-M., Bottenheim J.W., Anlauf K.G.* Measurement of halogenated dicarboxylic acids in the Arctic aerosols at polar sunrise // *J. Atmos. Chem.* 2003. V. 44, N 2. P. 323–335.
 37. *Oreopoulos L., Marshak A., Cahalan R.F.* Consistency of ARESE II cloud absorption estimates and sampling issues // *J. Geophys. Res. D.* 2003. V. 108, N 1. P. 13/1–13/16.
 38. *Persiantseva K.M., Popovicheva O.B., Shonija N.K.* Wetting and hydration of insoluble soot particles in the upper troposphere // *J. Environ. Monit.* 2004. V. 6. P. 939–945.
 39. *Petzold A., Strom J., Ohlsson S., Schroder F.P.* Elemental composition and morphology of ice-crystal residual particles in cirrus clouds and contrails // *Atmos. Res.* 1998. V. 49, N 1. P. 21–34.
 40. *Pueschel R.F., Boering K.A., Verma S., Howard S.D., Ferry G.V., Goodman J., Allen D.A., Hamill P.* Soot aerosol in the lower stratosphere: Pole-to-pole variability and contributions by aircraft // *J. Geophys. Res. D.* 1997. V. 104, N 11. P. 13113–13118.
 41. *Quinn P.K., Miller T.L., Botes T.S., Ogren J.A., Andrews E., Shaw G.E.* A 3-year record of simultaneously measured aerosol chemical and optical properties at Barrow, Alaska // *J. Geophys. Res. D.* 2002. V. 107, N 11. P. AAC8/1–AAC8/15.
 42. *Quinn P., Bates T.* Comparison of regional aerosol chemical and optical properties from the European, Asian, and North American plumes // *IGACTiv Newsletter*. 2003. N 28. P. 24–43.
 43. *Schumann U., Strom J., Busen R., Baumann R., Gierens K., Krautstrunk M., Schoder F.P., Stiglmayr J.* In situ observations of particles in jet aircraft exhausts and contrails for different sulfur-containing fuels // *J. Geophys. Res. D.* 1996. V. 101, N 3. P. 6853–6869.
 44. *Shamir N.J., Veizer J.* Celestial driver of Phanerozoic climate? // *GSA Today*. 2003. V. 13, N 7. P. 4–10.
 45. *Smalley R.E.* Discovering the fullerenes // *Rev. Modern Phys.* 1997. V. 69, N 3. P. 723–730.
 46. *Stratospheric Processes and their Role in Climate (SPARC). A Project of the WMO/ICSU/IOC World Climate Research Programme (WCRP). SPARC Assessment of Stratospheric Aerosol Properties.* Febr. 2006. WCRP-124, WMO/TD No. 1295, SPARC Report N 4. 322 p.
 47. *The Carbon cycle* / Eds. T.M.L. Wigley, D.S. Schimel. Cheltenham, U.K.: Edward Elgar Publ. Co. Ltd., 2000. 480 p.
 48. *Wexler A.S., Clett S.L.* Atmospheric aerosol models for systems including the ions H^+ , NH_4^+ , Na^+ , SO_4^{2-} , NO_3^- , Cl^- , Br^- and H_2O // *J. Geophys. Res. D.* 2002. V. 107, N 14. P. ACH14/1–ACH14/14.

L.S. Ivlev. Aerosol forcing in climate processes.

In this article the role of aerosols of natural and anthropogenic origin in climate processes is discussed. It is shown that accounting of aerosol forcing in climate was carried out insufficiently reasonably, first of all, because of the lack of information on processes of generation and physical-chemical properties of atmospheric aerosols.

The structural parameters of stratospheric and anthropogenic aerosols are observed, as well as their morphological structure and composition, time variability and trends, impact of aerosol forcing on radiative conditions of the atmosphere and, consequently, on the Earth climate. Some important conclusions were made on the role of different physical and physical-chemical aerosol processes on evolution of their microstructure in the atmosphere.

Especially attention is given to volcanic and stratospheric aerosols and also to the cirrus clouds. Besides, it should be marked, that nowadays there is no any simple and effective method for complete characterization, which is required for modeling of aerosol processes and structures. The modern condition of knowledge on these problems is stated.