

ОПТИЧЕСКИЕ МОДЕЛИ И БАЗЫ ДАННЫХ ОПТИЧЕСКОЙ ИНФОРМАЦИИ
ОБ ОКРУЖАЮЩЕЙ СРЕДЕ

УДК 551.511.32+551.516.6

Аэрозоль в верхней тропосфере и нижней стратосфере. Сульфатные частицы в северных широтах

А.Е. Алоян^{1,3}, А.Н. Ермаков², В.О. Арутюнян^{1*}

¹ *Институт вычислительной математики РАН
119333, г. Москва, ул. Губкина, 8*

² *Институт энергетических проблем химической физики РАН
119334, г. Москва, Ленинский пр., 38, корп. 2*

³ *Гидрометцентр России
123242, г. Москва, Б. Предтеченский пер., 11–13*

Поступила в редакцию 27.07.2017 г.

С использованием ранее построенной авторами математической модели глобального переноса многокомпонентных газовых примесей и аэрозолей выполнены расчеты концентраций в атмосфере сульфатных аэрозолей и частиц полярных стратосферных облаков (ПСО) применительно к обоим полушариям в зимнее время. Найдено, что ключевым фактором, определяющим тип формирующихся аэрозольных частиц в атмосфере, является распределение в ней температуры. В северных широтах наблюдается возникновение лишь частиц слоя Юнге, а в атмосфере над тропиками выявлены локальные области формирования частиц ПСО: переохлажденных частиц тернарного раствора $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{O}$, частиц тригидрата азотной кислоты и ледяных частиц.

Ключевые слова: полярные стратосферные облака, сульфатный аэрозоль, кинетика, фотохимия, конденсация/испарение, коагуляция, нуклеация; polar stratospheric clouds, sulfate aerosol, kinetics, photochemistry, condensation/evaporation, coagulation, nucleation.

Введение

Аэрозоли играют значительную роль в атмосфере [1]. Их частицы поглощают и рассеивают коротковолновое солнечное излучение, что ведет к снижению его падающего потока на подстилающую поверхность. Важная роль принадлежит также частицам полярных стратосферных облаков (ПСО), на поверхности/в объеме которых могут протекать быстрые гетерогенные химические реакции, влияющие на газовый состав атмосферы, в том числе на содержание хлорных и азотных соединений, разрушающих стратосферный озон [2]. В их формировании активно участвуют частицы сульфатных аэрозолей (СА), возникающие при совместной конденсации паров воды и серной кислоты. Поэтому при разработке моделей ПСО принципиально важен учет динамики формирования СА в тропосфере и нижней стратосфере, обусловленной особенностями микрофизики процессов нуклеации, конденсации/испарения, коагуляции с участием паров воды и серной кислоты, а также фотохимической трансформацией

эмитируемых в атмосферу газовых веществ. Изменчивость динамики этих процессов при колебаниях метеорологических и других условий приводит к изменению фазового и химического составов СА в тропосфере и нижней стратосфере, а также сказывается на дисперсности их частиц. Следует иметь в виду также, что равновесие в дисперсной системе устанавливается достаточно медленно и в расчетах при воспроизведении динамики формирования СА и их свойств необходимо использовать неравновесную функцию распределения частиц по размерам.

Ниже приведено описание базовой модели формирования ПСО и СА в тропосфере и нижней стратосфере.

Численная модель формирования сульфатных аэрозолей

Модель глобального переноса многокомпонентных малых газовых примесей и аэрозолей и образования СА в тропосфере и нижней стратосфере рассматривается применительно к сферической Земле в системе координат (λ, ψ, z) , где λ — долгота, ψ — дополнение до широты, z — высота. Как и в [3–5], запишем основные уравнения для скорости изменения концентраций газовых примесей и аэрозолей в виде:

* Арташ Еремович Алоян (aloyan@m.inm.ras.ru); Александр Николаевич Ермаков (ayermakov@chph.ras.ru); Вардан Оганесович Арутюнян (vardan@m.inm.ras.ru).

$$\begin{aligned} \frac{\partial C_i}{\partial t} + \frac{u}{a \sin \psi} \frac{\partial C_i}{\partial \lambda} + \frac{v}{a} \frac{\partial C_i}{\partial \psi} + w \frac{\partial C_i}{\partial z} = \\ = F_{\text{gas}} - P_{\text{nucl}} - P_{\text{cond}} + P_{\text{phot}} + \\ + \frac{\partial}{\partial z} v \frac{\partial C_i}{\partial z} + \frac{1}{a^2 \sin^2 \psi} \frac{\partial}{\partial \lambda} \mu \frac{\partial C_i}{\partial \lambda} + \frac{1}{a^2 \sin \psi} \frac{\partial}{\partial \psi} \mu \sin \psi \frac{\partial C_i}{\partial \psi}; \quad (1) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial \varphi_k}{\partial t} + \frac{u}{a \sin \psi} \frac{\partial \varphi_k}{\partial \lambda} + \frac{v}{a} \frac{\partial \varphi_k}{\partial \psi} + (w - w_g) \frac{\partial \varphi_k}{\partial z} = \\ = F_{\text{aer}} + P_{\text{cond}} + P_{\text{coag}} + P_{\text{nucl}} + \\ + \frac{\partial}{\partial z} v \frac{\partial \varphi_k}{\partial z} + \frac{1}{a^2 \sin^2 \psi} \frac{\partial}{\partial \lambda} \mu \frac{\partial \varphi_k}{\partial \lambda} + \frac{1}{a^2 \sin \psi} \frac{\partial}{\partial \psi} \mu \sin \psi \frac{\partial \varphi_k}{\partial \psi}. \quad (2) \end{aligned}$$

Здесь C_i ($i = 1, \dots, N_g$), φ_k ($k = 1, \dots, N_a$) — концентрации газовых примесей и аэрозолей, N_g и N_a — число газовых компонент и аэрозольных фракций соответственно; (u, v, w) — компоненты вектора скорости ветра в направлениях λ, ψ, z соответственно; w_g — скорость гравитационного оседания; a — средний радиус Земли; μ и ν — коэффициенты турбулентного обмена в горизонтальном и вертикальном направлениях соответственно; F_{gas} и F_{aer} — источники газовых примесей и аэрозолей; P_{nucl} , P_{cond} , P_{coag} и P_{phot} — операторы нуклеации, конденсации, коагуляции и фотохимической трансформации соответственно.

Уравнения (1)–(2) рассматриваются в области $D_t = G \times [0, T]$, где $G = S \times [0, \hat{H}]$, $S = \{(\lambda, \psi): 0 \leq \lambda \leq 2\pi, 0 \leq \psi \leq \pi\}$, \hat{H} — верхняя граница расчетной области. На боковых границах задаются условия периодичности всех функций по долготе, а на полюсах предполагается ограниченность функций по ψ . Уравнения (1)–(2) принципиально важны для моделирования процессов формирования ПСО и СА в атмосфере.

Потоки газовых примесей и аэрозолей в приземном слое атмосферы

Для задания краевого условия на первом расчетном уровне (на верхней границе приземного слоя атмосферы) $z = h$ сопротивление вхождению примеси на поверхности земли представлено в виде суммы трех слагаемых: аэродинамического сопротивления r_a , квазиламинарного сопротивления приземного слоя r_b , возникающего вследствие молекулярной диффузии вблизи Земли, и поверхностного сопротивления r_c , обусловленного поверхностным осаждением. Потоки примесей в приземном слое атмосферы можно представить как

$$v \frac{\partial C_i}{\partial z} = \frac{1}{r_a + r_b + r_c} (C_i - C_{i,\text{surf}}) \quad \text{— для газа}; \quad (3)$$

$$v \frac{\partial \varphi_k}{\partial z} = \frac{\varphi_k - \varphi_{k,\text{surf}}}{r_a + r_b + r_c} + w_g \varphi_k \quad \text{— для аэрозоля}, \quad (4)$$

где $r_b = \frac{2}{\kappa u_*} \left(\frac{S_c}{\text{Pr}} \right)^{2/3}$, $S_c = 1,5 \cdot 10^{-5} \text{ м}^2 \cdot \text{с}^{-1}$, $\text{Pr} = 0,71$ — число Прандтля, u_* — динамическая скорость.

Аэродинамическое сопротивление вычисляется по формуле $r_a = \frac{1}{c_{u c_9} |u|}$. Коэффициент поверхностного сопротивления r_c над сушей определяется из модели, описывающей перенос примесей в почве и деятельном слое океана с одновременным использованием потоков на разделах атмосфера—почва и атмосфера—океан.

Для определения коэффициентов горизонтального и вертикального турбулентного обмена используется метод, предложенный в [6].

Модель фотохимической трансформации

В цепочках химических реакций в данной модели принимают участие 72 индивидуальных газовых компонента, 61 из которых вовлечены в азотно-серный и углеродный циклы, а другие — вещества биогенного и абиогенного происхождения: $\{O(^1D), O(^3P), O_3, OH, HO_2, H_2O_2, NO, NO_2, NO_3, N_2O, N_2O_5, HNO_3, HNO_4, CO, CH_2O, CH_4, CH_3O_2, CH_3OOH, CH_3, HCO, H, HNO_2, CH_3O, H_2O, COS, H_2S, CS, CH_3SO, CH_3SCH_2O_2, CH_3SCH_2, CH_3SOCH_3, CH_3S(OH), CH_3O_2H, CH_3SO_2, SH, CH_3S(OH)CH_3, CH_3SO(OH)CH_3, CH_3SO(OH)CH_3, CH_3SO_3, CH_3SO_2H, CH_3S, S_3, SO, SO_2, SO(^3P), HSO, HSO_2, HSO_3, (CH_3)_2S, CH_3SO_3H, CS_2, H_2SO_4, ClONO_2, ClO, OClO, HCl, ClOO, HOCl, Cl_2, Cl, ClNO\}$. В модели рассматривались 16 реакций фотолиза в газовой фазе, 8 растворенных компонентов в составе жидких аэрозольных частиц ($HNO_{3aq}, H_2O_{aq}, H_2SO_{4aq}, ClONO_{2aq}, HCl_{aq}, HOCl_{aq}, N_2O_{5aq}, Cl_{2aq}$), а также вещества в твердой фазе: лед, тригидрат азотной кислоты (Nitric Acid Trihydrate, NAT) ($HNO_3 \cdot 3H_2O$) и HCl_s — хлористый водород в составе ледяных частиц и частиц NAT.

Описание динамики гомогенной нуклеации в системе $H_2O-H_2SO_4$ дается в модели, представленной ранее в [7, 8]. Численная модель для решения кинетических уравнений конденсации / испарения и коагуляции изложена в [9–11].

Кинетика образования частиц ПСО

Математическая модель глобального переноса многокомпонентных газовых примесей и аэрозолей в обоих полушариях строилась на основе данных о микрофизике и физической химии СА и частиц ПСО. Модель состоит из двух частей. В первой по заданным эмиссиям антропогенных (SO_2, NO_x, CH_4) [12] и биогенных ($H_2S, CS_2, COS, (CH_3)_2S, CH_4$) веществ строилась численная модель формирования сульфатных аэрозолей — предшественников частиц СА и частиц ПСО в тропосфере и нижней стратосфере. Эмиссия диметилсульфида $(CH_3)_2S$ задавалась отдельно для Тихого, Атлантического

и Индийского океанов в зимнее и летнее время. Для этих же периодов задавались наземные эмиссии H_2S , CS_2 и COS .

По данным лидарных наблюдений, образование в нижней стратосфере частиц STS (Supercooled Ternary Solutions) (тип Ib ПСО) наблюдается при температурах, превышающих порог замерзания воды (T_{ice}). Их возникновение начинается самопроизвольно, несмотря на возможность формирования в этих условиях кристаллических гидратов серной и азотной кислот [2, 13] сразу после быстрого синоптического или орографического охлаждения воздушных масс при $T < T_{NAT}$ ($T_{NAT} \approx 195$ К [2]). Процесс не требует преодоления нуклеационного барьера и вызван поглощением частицами СА значительных количеств паров воды и азотной кислоты из воздуха при $T \leq T_{STS}$ ($T_{STS} \approx 192$ К [2]).

Формирование частиц слоя Юнге, STS и других частиц ПСО в рассматриваемой модели описывалось следующими обобщенными уравнениями [5]:

$$\frac{d[X_{(gas)}]_i}{dt} = -k_{tXi}L \left([X_{(gas)}]_i - \frac{10^{-6} N_A P_{Xi}}{RT} \right);$$

$$\frac{dX_i}{dt} = -k_{tXi}L \frac{M_{Xi} \cdot 10^{12}}{N_A} \left([X_{(gas)}]_i - \frac{10^{-6} \cdot N_A P_{Xi}}{RT} \right).$$

Здесь $[X_{(gas)}]_i = [H_2O_{(gas)}]$, $[HNO_{3(gas)}]$ и $[H_2SO_{4(gas)}]$, cm^{-3} ; $L = 10^{-12} \cdot (X_{H_2O} + X_{HNO_3} + X_{H_2SO_4} + q_{cond})/\rho$, где X_{H_2O} , X_{HNO_3} , $X_{H_2SO_4}$ — массовые концентрации H_2O , HNO_3 и H_2SO_4 в частицах, $мкг/м^3$, q_{cond} — концентрация зародышей частиц аэрозоля, $мкг/м^3$, ρ — плотность растворов, $г/см^3$; N_A — число Авогадро; k_{tXi} — суммы диффузионного и кинетического сопротивления вхождения и выхода молекул $H_2O_{(gas)}$, $HNO_{3(gas)}$ и $H_2SO_{4(gas)}$ в частицы/из частиц; R — универсальная газовая постоянная, $л \cdot атм \cdot моль^{-1} \cdot К^{-1}$; T — температура; P_{Xi} — парциальные давления компонентов над переохлажденными каплями, $атм$; M_{Xi} — молекулярная масса компонентов частиц слоя Юнге, STS и других частиц ПСО.

Для воспроизведения образования в атмосфере частиц NAT с учетом наблюдаемого, по данным натурных наблюдений, переохлаждения воздушных масс [2] в модели принималось, что их зародышами являются ледяные частицы. В свою очередь, в качестве зародышей ледяных частиц в расчетах рассматривались частицы СА. Принималось, что образование ледяных частиц происходит по достижению T_{ice} (188 К), а частиц NAT — при наличии ледяных частиц и по достижению пересыщения по парам азотной кислоты [14, 15].

Расчеты проводились при следующих входных параметрах: число узлов сеточной области по долготе — 144×73 , с шагом $2,5^\circ \times 2,5^\circ$; число уровней по вертикали — 20; координатные поверхности в метрах: 100, 750, 1500, 2200, 3000, 4200, 5600, 7200, 9200, 10400, 11800, 14000, 18000, 22000, 26000, 30000, 34000, 38000, 42000, 46000. Метеорологическая информация заимствована из базы дан-

ных Европейского центра по среднесрочным прогнозам (ECMWF) для января 2002 г. В расчетах использовались 25 дискретных интервалов по размерам аэрозольных частиц от 0,005 до 2 $мкм$.

Расчеты показали, что пространственно-временная изменчивость массовой концентрации частиц сульфатного аэрозоля и частиц ПСО существенно зависит от термического режима атмосферы. Так, зимой на высоте $z = 10400$ – 11500 м наиболее холодной является атмосфера в полярных и северных широтах, а на высоте $z = 18000$ м, наоборот, наиболее холодной оказывается атмосфера в тропической зоне. На рис. 1 в качестве примера по данным ECMWF приведено поле температур T (К) над подстилающей поверхностью в зимнее время (январь) на высоте $z = 10400$ м.

Частицы слоя Юнге

Соответственно приводимым на рис. 1 температурам в атмосфере меняется и рассчитанная массовая концентрация растворенной в аэрозольных частицах азотной кислоты HNO_{3aq} ($мкг/м^3$) (рис. 2). Отметим, что растворимость HNO_3 , т.е. коэффициент Генри (H_{HNO_3} , $моль \cdot л^{-1} \cdot атм^{-1}$), чувствительна даже к небольшим колебаниям температуры [17]. Поэтому здесь и далее HNO_{3aq} рассматривается в качестве маркера частиц STS, так как в соответствии с вышесказанным их формирование отвечает поглощению из воздуха значительных количеств паров азотной кислоты и воды. Из приводимых на рис. 2 данных следует, что чем ниже температура, тем выше содержание в частицах HNO_{3aq} . В самых высоких широтах, отвечающих наиболее низким T и равномерному, на первый взгляд, их распределению, наблюдается практически сплошная область формирования аэрозольных частиц. Данные различия массовой концентрации HNO_{3aq} в этой области отражают изменчивость H_{HNO_3} и массовой концентрации HNO_{3aq} даже при небольших колебаниях температуры, амплитуда которых не отвечает приводимому на рис. 1 более грубому разрешению шкалы температуры. Корреляция между T и H_{HNO_3} , а вместе с этим и массовой концентрацией HNO_{3aq} , отчетливо видна и из сопоставления на рис. 1 и 2 расположения островков формирования аэрозоля и распределения температур в более низких широтах (север Восточной Европы, Юго-Восточная Азия и др.).

Рассмотрим картину распределения HNO_{3aq} в северных широтах более подробно. Из данных ECMWF следует, что на высоте $z = 10400$ м минимальный уровень температур (T_{min}) не опускается ниже 209 К (рис. 1). Основные компоненты аэрозольных частиц на высоте $z = 10400$ м (62° с.ш., $112,5^\circ$ з.д.), по данным расчетов, — H_2O_{aq} и H_2SO_{4aq} , а HNO_{3aq} оказывается при этом лишь малой примесью (таблица). По данным расчетов (рис. 2) и таблицы, содержание HNO_{3aq} во фракции частиц радиусом 0,008 $мкм$ (спектр 1) в областях с T_{min} (см. рис. 1 и 2) не превышает $\sim 10^{-8}$ $мкг/м^3$. Похо-

жая картина наблюдается и для частиц радиусом 0,14 мкм (см. таблицу). Доминирующей их модой в данной географической точке оказываются частицы спектра 1 ($r = 0,008$ мкм). Их удельная поверхность оказывается равной нескольким $\text{мкм}^2/\text{см}^3$, что в разы выше, чем по данным спутниковых измерений на высоте 15000 м (SAGE II, Laramie (41° с.ш.,

105° з.д.)) [16], и свидетельствует о неравновесном характере найденного нами распределения по размерам аэрозоля в северных широтах. На это указывает и близость концентраций $\text{HNO}_{3\text{aq}}$ в частицах при большом различии их размеров (см. выше), что говорит о медленности растворения паров азотной кислоты ($\text{HNO}_{3(\text{gas})} \rightleftharpoons \text{HNO}_{3\text{aq}}$)

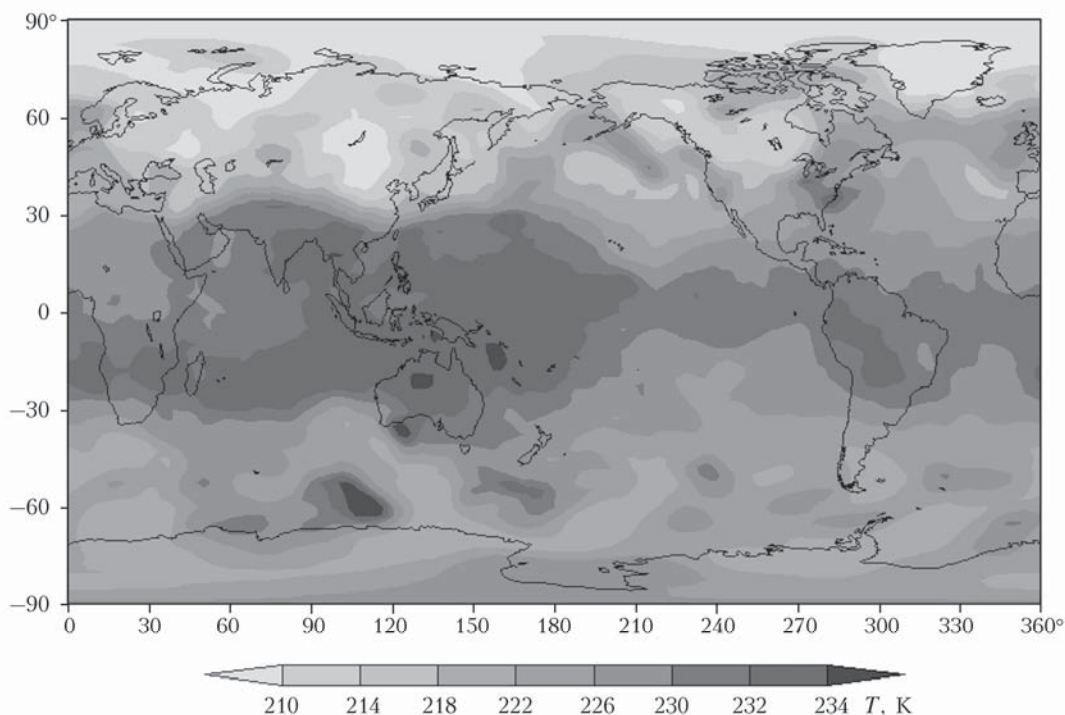


Рис. 1. Поле температуры на высоте $z = 10400$ м (ECMWF)

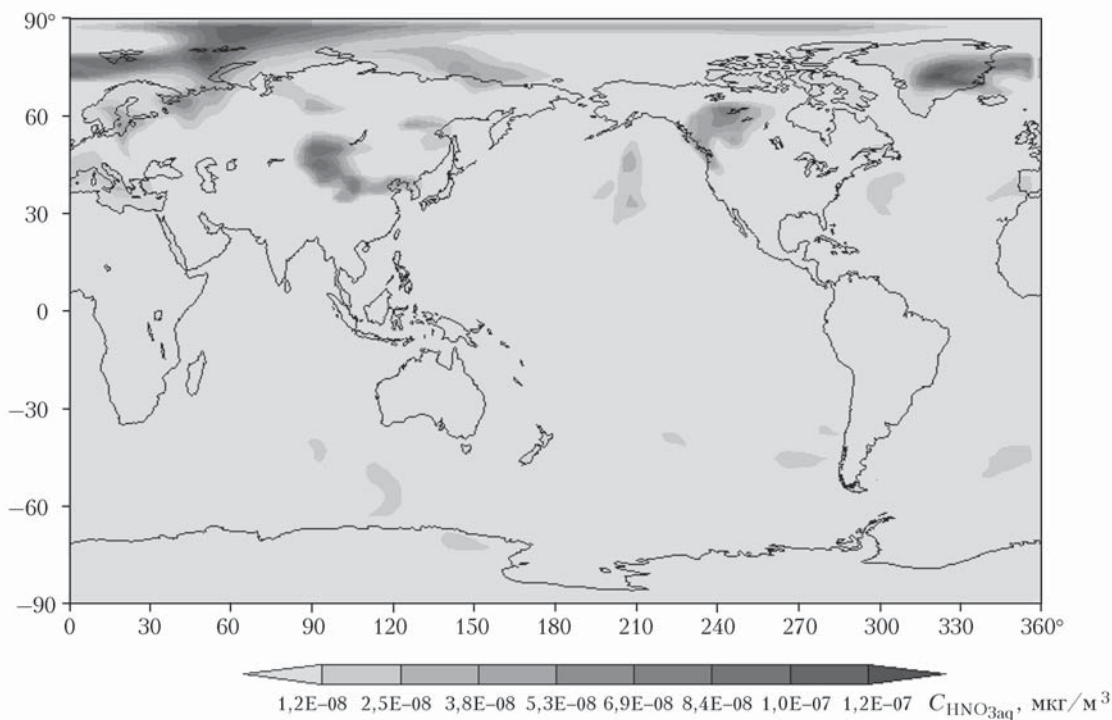


Рис. 2. Поле концентраций $\text{HNO}_{3\text{aq}}$ для частиц размером 8 нм на высоте $z = 10400$ м

**Расчетные массовые концентрации компонентов аэрозолей X_{aq} , мкг/м³,
и концентрации газовых примесей $X_{(gas)}$, см⁻³, в атмосфере (январь 2002 г.)**

Номер спектра	Частицы	Арктика	Тропики
		(62° с.ш., 112,5° з.д.), $z = 10400$ м, $T = 209$ К (ECMWF)	(10° с.ш., 150° з.д.), $z = 18000$ м, $T = 188$ К (ECMWF)
1	H ₂ O _{aq} (0,008 мкм)	2,000049E-06	2,439201E-07
2	H ₂ O _{aq} (0,14 мкм)	3,999972E-06	2,405215E-07
3	H ₂ SO _{4aq} (0,008 мкм)	1,850000E-06	2,930254E-08
4	H ₂ SO _{4aq} (0,14 мкм)	2,250000E-06	3,260159E-08
5	HNO _{3aq} (0,008 мкм)	9,600003E-09	6,536126E-08
6	HNO _{3aq} (0,14 мкм)	1,000000E-08	6,005885E-08
7	HNO _{3(gas)}	9,328396E+08	9,045821E+08
8	H ₂ O _(gas)	1,394301E+13	1,600001E+13
9	H ₂ SO _{4(gas)}	5257593,0000	1,194301E+07

в сравнении с динамикой переноса газовых и аэрозольных компонентов. При этом содержание H₂SO_{4aq} в каплях составляет ~50% (*вес.*) (см. таблицу), что, по данным [2], указывает на некоторый избыток воды. Для содержания паров HNO₃ над каплями (частицами аэрозоля) находим:

$$[HNO_3] = [HNO_{3aq}]N_A/10^3 \cdot H_{HNO_3} \approx 2,9 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-3},$$

что приблизительно на порядок выше, чем в газе (10^3 — коэффициент пересчета, см³/л; $H_{HNO_3} = 7,5 \cdot 10^8$ моль · л⁻¹ · атм⁻¹ [17]). По этой причине растворенная азотная кислота из капель, пришедших в данную точку из соседних областей, переходит в газ. При этом в силу экстремально малой объемной доли частиц аэрозоля ($\approx 3 \cdot 10^{-18}$ см³_жидкость/см³_воздуха) время массообмена достаточно велико [12] даже для частиц самой мелкой моды: $\tau = r^2/3D_{HNO_3} \cdot L \sim 10^5$ с, что и объясняет близость концентраций азотной кислоты в жидких аэрозольных частицах столь различных размеров, т.е. отсутствие равновесия между газом и частицами аэрозоля.

Обобщая все вышесказанное, приходим к выводу, что полученные в результате расчетов аэрозоли в северных широтах представляют собой частицы слоя Юнге, хотя и не вполне равновесные по составу и массовой концентрации. Этот вывод согласуется с данными натурных наблюдений частиц ПСО в северных широтах. Их формирование (частицы STS или NAT) в высоких широтах наблюдалось лишь в локальных областях с экстремально низкими температурами (вплоть до 185 К), происхождение которых обусловлено, например, орографией (прохождение воздушных масс над возвышенностями) и т.п. Пространственный масштаб таких областей не отвечает разрешению разработанной математической модели и поэтому на данном этапе не рассматривается. Факт локального формирования частиц NAT в арктической атмосфере нашел подтверждение в измерениях с борта самолета Geophysica (6 февраля 2003, Kiruna/Sweden) [18],

где частицы радиусом $r < 6$ мкм фиксировались на высотах между $18 \cdot 10^3$ и $20 \cdot 10^3$ м, при этом счетная концентрация частиц NAT оказалась близкой к $\sim 10^{-4}$ см⁻³ (массовая концентрация частиц $\sim 10^{-7}$ мкг/м³).

Переохлажденные капли STS

В противовес северным широтам, над экватором на высоте $z = 18000$ м (10° с.ш., 150° з.д.) фиксируемые в расчетах жидкие частицы представляют собой, по-видимому, переохлажденные капли STS, т.е. частицы ПСО (тип Ib) (рис. 3). Действительно, при $T = 188$ К ($< T_{STS}$) в самой мелкой их моде (0,008 мкм) содержание H₂SO_{4aq} снижается до $\approx 8,7\%$ (*вес.*), а содержание HNO_{3aq} возрастает при этом до $\approx 19\%$ (*вес.*) (см. таблицу). В более крупной моде (0,14 мкм) содержание H₂SO_{4aq} несколько выше ($\approx 10\%$ (*вес.*)), а содержание HNO_{3aq} $\approx 18\%$ (*вес.*). Все это свидетельствует о поглощении частицами из воздуха значительных количеств паров воды и азотной кислоты. В сравнении с северными широтами содержание HNO_{3aq} в частицах при низких температурах ($< T_{STS}$) возрастает в десятки раз, что является признаком формирования частиц STS [2]. В обеих модах основным их компонентом оказывается вода. На ее долю в самой мелкой их моде приходится $\approx 70\%$ (*вес.*) (см. таблицу). Массовая концентрация частиц в обеих модах примерно на порядок ниже, чем концентрация частиц слоя Юнге в северных широтах. Это снижение обусловлено в основном уменьшением счетной концентрации частиц, так как массовая концентрация нелетучей серной кислоты в частицах оказывается намного ниже (в десятки раз) в сравнении с частицами слоя Юнге в северных широтах. Для давления азотной кислоты над каплями STS, в соответствии с [19], имеем: $P_{HNO_3} \approx 2,1 \cdot 10^{-12}$ атм ($[HNO_3] \sim 10^8$ см⁻³). Это гораздо ниже, чем в газе (см. таблицу), и указывает на перенос паров HNO₃ из газовой фазы в капли; в атмосфере при этом формируются переохлажденные капли H₂SO₄/HNO₃/H₂O, т.е. частицы ПСО (тип Ib).

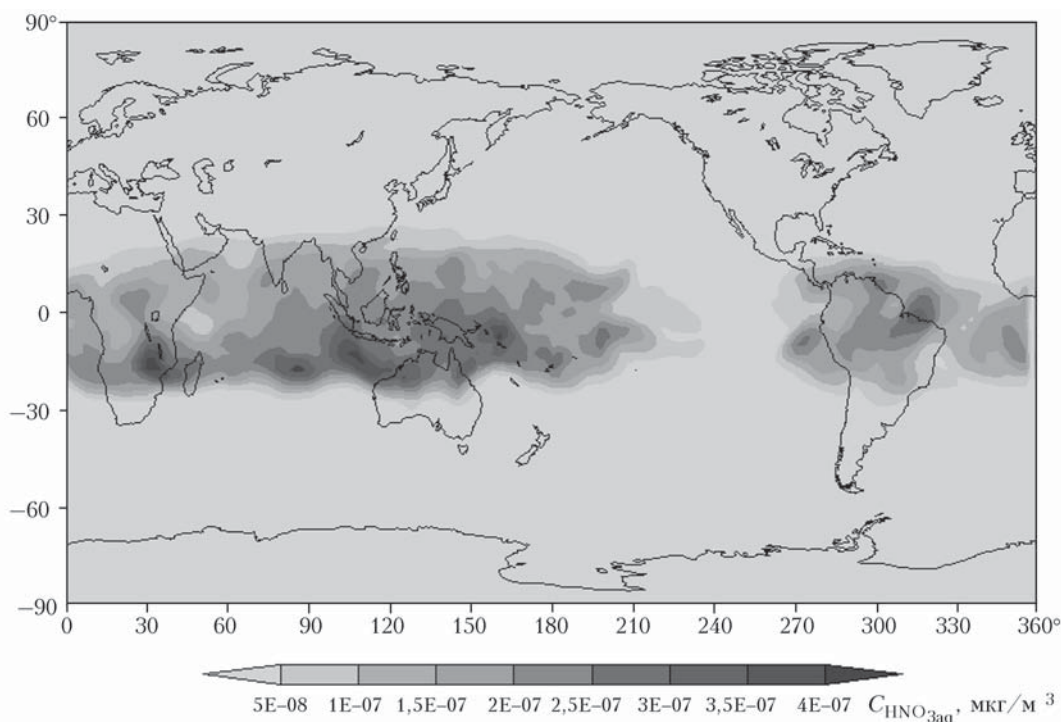


Рис. 3. Поле концентраций $\text{HNO}_{3\text{aq}}$ для частиц размером 0,008 мкм на высоте $z = 18000$ м

Ледяные частицы и частицы NAT

Расчеты показали, что наряду с STS в атмосфере над тропиками идет формирование ледяных частиц и частиц NAT. Их суммарная массовая концентрация примерно на 5 порядков превышает концентрацию STS, а содержание ледяных частиц, в свою очередь, приблизительно в тысячу раз больше, чем частиц NAT. И это несмотря на то, что температура воздушных масс в локальных областях, где наблюдается образование твердых аэрозольных частиц, опускается гораздо ниже T_{NAT} . Причина — различие концентраций в газовой фазе паров воды и азотной кислоты. Высокие концентрации ледяных частиц свидетельствуют о потенциально важной их роли в галогенной активации нижней стратосферы.

Заключение

В работе показано, что ключевым фактором, определяющим тип формирующихся аэрозольных частиц, спектр их размеров и химический состав в верхней тропосфере и нижней стратосфере, является распределение в атмосфере температуры. В северных широтах, характеризующихся в зимний период не слишком низкими температурами, обнаруживаются области, в которых идет интенсивное формирование лишь жидких частиц слоя Юнге, содержащих азотную кислоту в виде малой примеси. Несмотря на выраженное влияние температуры массовая концентрация этих частиц, их распределение по размерам, химический состав и по истечению двух суток определяются в основном переносом, т.е. оказываются не вполне равновесными. В атмосфере над тропиками, характеризующейся на

высоте 18000 м гораздо более низкими температурами, благодаря расчетам обнаружено формирование частиц ПСО. Одновременно с переохлажденными жидкими частицами STS формируются также ледяные частицы и частицы NAT. Счетная концентрация частиц STS и их химический состав принципиально отличаются от частиц слоя Юнге. Основным компонентом ПСО в атмосфере над тропиками, в областях с наиболее низкой температурой, оказываются ледяные частицы.

Работа выполнена при поддержке РНФ (проект № 14-37-00053) в ФБГУ «Гидрометцентр России», а также РФФИ (проекты № 15-05-00992 и 15-05-01285).

1. Akimoto H. Atmospheric reaction chemistry. Japan: Springer, 2016. 421 p.
2. Lowe D., MacKenzie R. Review of polar stratospheric cloud microphysics and chemistry // J. Atmos. Sol.-Terr. Phys. 2008. V. 70, N 1. P. 13–40.
3. Aloyan A.E. Mathematical modeling of the interaction of gas species and aerosols in atmospheric dispersive systems // Russ. J. Num. Anal. Math. Model. 2000. V. 15, N 1–4. P. 211–224.
4. Алоян А.Е., Ермаков А.Н., Арутюнян В.О. Формирование сульфатных аэрозолей в тропосфере и нижней стратосфере. Исследование возможной стабилизации климата с помощью новых технологий. М.: Росгидромет, 2012. С. 75–98.
5. Алоян А.Е., Ермаков А.Н., Арутюнян В.О. Моделирование образования полярных стратосферных облаков с учетом кинетических и гетерогенных процессов // Изв. РАН. Физ. атмосфер. и океана. 2015. Т. 51, № 3. С. 276–286.
6. Kurihara Y., Televa R.E. Structure of tropical cyclone developed in three-dimensional numerical simulation model // J. Atmos. Sci. 1974. V. 31, N 5. P. 893–919.

7. *Wilemski G.* Composition of the critical nucleus in multicomponent vapor nucleation // *J. Chem. Phys.* 1984. V. 80. P. 1370–1372.
8. *Vehkamäki H., Kulmala M., Napari I., Lehtinen K.E.J., Timmreck C., Noppel M., Laaksonen A.* An improved parameterization for sulfuric acid/water nucleation rates for tropospheric and stratospheric conditions // *J. Geophys. Res. D.* 2002. V. 107, N 22. P. AAC3-1–AAC3-10.
9. *Aloyan A.E., Arutyunyan, V.O., Lushnikov A.A., Zagainov V.A.* Transport of coagulating aerosol in the atmosphere // *J. Aerosol. Sci.* 1997. V. 28, N 1. P. 67–85.
10. *Piskunov V.N., Golubev A.I., Goncharov E.A., Ismailova N.A.* Kinetic modeling of composite particles coagulation // *J. Aerosol. Sci.* 1997. V. 28. P. 1215–1231.
11. *Алоян А.Е., Пускунов В.Н.* Моделирование региональной динамики газовых примесей и аэрозолей // *Изв. РАН. Физ. атмосф. и океана.* 2005. Т. 41, № 3. С. 328–340.
12. *Meilinger S.K., Koop T., Luo B.P., Huthwelker T., Carslaw K.S., Krieger U., Crutzen P.J., Peter T.* Size-dependent stratospheric droplet composition in lee wave temperature fluctuations and their potential role in PSC freezing // *Geophys. Res. Lett.* 1995. V. 22. P. 3031–3034.
13. *Koop T., Carslaw K.S.* Melting of $\text{H}_2\text{SO}_4/4\text{H}_2\text{O}$ particles upon cooling: Implications for polar stratospheric clouds // *Science.* 1996. V. 272. P. 1638–1641.
14. *Hanson D., Mauersberger K.* Laboratory studies of the nitric acid trihydrate: Implications for the south polar stratosphere // *Geophys. Res. Lett.* 1988. V. 15, N 8. P. 855–858.
15. *Marti J., Mauersberger K.* A survey and new measurements of ice vapor pressure at temperatures between 170 and 250 K // *Geophys. Res. Lett.* 1993. V. 20, N 5. P. 363–366.
16. *Thomason L.W., Poole L.R., Deshler T.* A global climatology of stratospheric aerosol surface area density deduced from stratospheric aerosol and gas experiment II measurements: 1984–1994 // *J. Geophys. Res. D.* 1997. V. 102, N 7. P. 8967–8976.
17. *Shi Q., Jayne J.T., Kolb C.E., Worsnop D.R.* Kinetic model for reaction of ClONO_2 with H_2O and HCl and HOCl with HCl in sulfuric acid solutions // *J. Geophys. Res. D.* 2001. V. 106, N 20. P. 24259–24274.
18. *Voigt C., Schlager H., Luo B.P., Dörnbrack A., Roiger A., Stock P., Curtius J., Vössing H., Borrmann S., Davies S., Konopka P., Schiller C., Shur G., Peter T.* Nitric acid trihydrate (NAT) formation at low NAT supersaturation in polar stratospheric clouds (PSCs) // *Atmos. Chem. Phys.* 2005. V. 5. P. 1371–1380.
19. *Carslaw K.S., Luo B., Peter Th.* An analytic expression of the composition of aqueous $\text{HNO}_3\text{--H}_2\text{SO}_4$ stratospheric aerosols including gas phase removal of HNO_3 // *Geophys. Res. Lett.* 1995. V. 22, N 14. P. 1877–1980.

A.E. Aloyan, A.N. Ermakov, V.O. Arutyunyan. **Aerosols in the troposphere and lower stratosphere. Sulfate particles in northern latitudes.**

Numerical calculations have been performed to obtain the wintertime atmospheric concentrations of sulfate aerosols (SAs) and particles of polar stratospheric clouds (PSCs) in both hemispheres using the mathematical model of transport of multicomponent gaseous admixtures and aerosols. It has been found that a key factor determining the type of aerosol particles in the atmosphere is the temperature distribution. In northern latitudes, only Junge layer particles are found, while the atmosphere above the tropics is characterized by local areas of formation of PSC particles: supercooled ternary solutions $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{O}$, nitric acid trihydrate (NAT), and ice particles.