

**М.В. Панченко, С.А. Терпугова, В.С. Козлов,
В.В. Польшкин, Е.П. Яшуева**

Годовой ход конденсационной активности субмикронного аэрозоля в приземном слое атмосферы Западной Сибири

Институт оптики атмосферы СО РАН, г. Томск

Поступила в редакцию 10.06.2005 г.

Анализируются данные многолетних круглогодичных измерений зависимости коэффициента рассеяния субмикронного аэрозоля в приземном слое атмосферы от относительной влажности воздуха, которые проводятся на аэрозольной станции ЛОА ИОА СО РАН с 1998 г.

Для изучения динамики оптических характеристик под влиянием относительной влажности применяется подход, основанный на раздельном изучении оптических параметров сухой основы аэрозольных частиц и их изменения в процессе увлажнения.

Выявлены характерные черты годового хода конденсационной активности субмикронного аэрозоля, показана их устойчивость для разных лет наблюдений. Проанализировано влияние разных воздушных масс для каждого из сезонов. Показано, что формирование основных оптических характеристик субмикронного аэрозоля регулируется процессами, по крайней мере, регионального масштаба.

Относительная влажность воздуха является одним из наиболее важных факторов, определяющих трансформацию оптических и микрофизических характеристик атмосферного аэрозоля. Вместе с тем исследование влияния влажности в реальной атмосфере сильно затруднено вследствие того, что практически невозможно выявить влияние именно относительной влажности воздуха на фоне общей изменчивости оптического состояния атмосферы, определяемой целым комплексом геофизических процессов.

Чтобы изучить динамику оптических характеристик аэрозоля под влиянием относительной влажности в чистом виде, нами применен подход, основанный на раздельном изучении оптических параметров сухой основы аэрозольных частиц (т.е. приведенных к нулевой относительной влажности) и их изменения в процессе увлажнения.

Оптические характеристики сухой основы определяются, в первую очередь, общим содержанием аэрозоля и регулируются достаточно длительными процессами генерации, накопления, переноса и стока аэрозоля из атмосферы. Изменение относительной влажности — более быстрый процесс, имеющий в большинстве случаев ярко выраженный суточный ход.

В свое время Кастеном [1] и Хенелом [2] были предложены эмпирические формулы для описания зависимости параметров аэрозольных частиц (радиуса и коэффициента рассеяния) от относительной влажности воздуха. В частности, для коэффициента направленного светорассеяния $\mu(45^\circ)$ можно записать:

$$\mu = \mu_0(1 - RH)^{-\gamma}, \quad (1)$$

где μ_0 — коэффициент направленного светорассеяния, обусловленный сухой основой аэрозольных частиц; RH — относительная влажность воздуха; γ — параметр конденсационной активности, который и определяет динамику оптической характеристики как функцию влажности. Этот параметр зависит от химического состава и распределения по размерам частиц сухого аэрозоля и, в первую очередь, от соотношения в нем растворимых и нерастворимых веществ.

В настоящее время большинство зарубежных научных групп для исследования конденсационных свойств аэрозоля используют дифференциальные анализаторы подвижности (Tandem Differential Mobility Analyzer, TDMA), в которых измеряется зависимость размера частиц от относительной влажности воздуха [3–5]. Этот метод позволяет детально описать физику процесса влияния влажности на функцию распределения частиц по размерам. Однако если необходимо описать изменение каких-либо оптических характеристик при вариациях относительной влажности воздуха, то возникают серьезные трудности при оценке оптических постоянных реального атмосферного аэрозоля.

Применительно к оптическим задачам наш подход, основанный на измерении непосредственно оптических характеристик, свободен от этих недостатков.

Для изучения конденсационной трансформации аэрозоля использовалась нефелометрическая установка, блок-схема которой приведена на рис. 1. Измерения аэрозольного коэффициента направленного светорассеяния под углом 45° на длине волны 0,51 мкм проводились одновременно двумя нефелометрами. Один из них оснащен устройством



Рис. 1. Блок-схема экспериментальной установки

искусственного увлажнения исследуемого аэрозоля и предназначен для измерения зависимости коэффициента рассеяния от относительной влажности (гигрограммы). Второй входит в состав постоянно действующей аэрозольной станции [6], служит для измерения коэффициента направленного рассеяния света сухой основой аэрозольных частиц, который характеризует общее содержание аэрозоля в исследуемом воздухе [7].

Запись временного хода коэффициента рассеяния этим нефелометром во время регистрации гигрограммы позволяла контролировать изменчивость содержания аэрозоля в атмосфере. Нефелометры были прокалиброваны в абсолютных единицах ($\text{км}^{-1} \cdot \text{ср}^{-1}$) посредством измерений сигналов рассеяния от чистых газов с известными величинами коэффициентов молекулярного рассеяния света. Текущая калибровка перед началом измерений и по их окончании проводилась с помощью оптической призмы и по молекулярному рассеянию чистого воздуха.

Отметим, что схема воздухозаборного тракта нефелометров обеспечивает корректный забор частиц, размеры которых не превышают нескольких микрон по диаметру, в то время как частицы более крупных размеров оседают в коммуникациях. Следовательно, основные результаты и выводы данной работы справедливы в основном для частиц субмикронной фракции.

Поскольку коэффициент направленного рассеяния под углом 45° тесно связан с полным коэффициентом рассеяния [8, 9], то все сделанные в работе выводы, касающиеся основных особенно-

стей временного хода измеряемых величин, будут также справедливы и для полного аэрозольного коэффициента рассеяния.

В воздушный тракт нефелометра для активных воздействий (рис. 1) непосредственно после воздухозаборника был дополнительно включен низкотемпературный нагреватель, обеспечивающий нагрев исследуемого воздуха на $\Delta T \sim 30^\circ \text{C}$ от исходной температуры, что позволяло снизить значение относительной влажности, с которого начиналась запись гигрограммы, до 20–40%. Затем воздух пропусклся через увлажнитель, представляющий собой цилиндрическую камеру диаметром ~ 10 см и длиной ~ 30 см. Для увлажнения воздуха использовался пролив дистиллированной воды по его стенкам; кроме того, стенки дополнительно подогревались. Меняя скорость пролива воды и интенсивность нагрева, можно было регулировать скорость испарения и, следовательно, скорость изменения относительной влажности воздуха. Для того чтобы аэрозоль при увлажнении успевал приходиться в равновесие с водяным паром, в трассу между увлажнителем и нефелометром была включена камера старения аэрозоля объемом ~ 4 л. Значение относительной влажности измерялось в непосредственной близости от рассеивающего объема датчиком типа ИН-3602-С.

Перед началом измерений воздух пропусклся через систему фильтров. Регистрируемый при этом сигнал включал в себя компоненту, пропорциональную молекулярному рассеянию от того же объема воздуха, что и при измерении аэрозольных характеристик, а также «шумовую» компоненту,

определяемую паразитными засветками камеры нефелометра. Вычитание этой величины из общего сигнала, регистрируемого при фотометрировании аэрозольного потока, позволяет получить в чистом виде сигнал, пропорциональный аэрозольному коэффициенту направленного светорассеяния.

Время регистрации гигрограммы составляло 10–12 мин, за это время влажность постепенно повышалась до 90–95%. Более высокие влажности не рассматривались, поскольку при динамичном режиме трудно проконтролировать влияние возможного вклада процессов конденсации влаги при приближении к состоянию насыщения водяного пара.

В случае если вариации коэффициента рассеяния сухой основы аэрозоля, измеряемого контрольным нефелометром параллельно с измерением гигрограммы, превышали 10%, то при обработке в сигнал, регистрируемый на гигрограмме в данный момент времени, вносилась соответствующая коррекция. Если же вариации $\mu_0(45^\circ)$ превышали 50%, то такие измерения отбраковывались. Также из обработки исключались ситуации, в которых аэрозольный коэффициент рассеяния составлял меньше половины молекулярного, так как в этом случае значительно возрастает ошибка измерения аэрозольного светорассеяния.

Погрешность измерения коэффициента направленного рассеяния на нашей установке при среднем уровне замутнения, наблюдаемом в атмосфере Западной Сибири, составляет не более 10% [10]. С учетом ошибок, вносимых при обработке и расчете параметра γ , абсолютная погрешность определения параметра конденсационной активности составляет $\sim 0,05$.

Измерения гигрограмм проводятся с марта 1998 г. по настоящее время ежедневно один раз в сутки, что позволяет подробно исследовать вре-

менную изменчивость параметра конденсационной активности. Получаемые зависимости коэффициента направленного рассеяния от относительной влажности воздуха в диапазоне 40–90% аппроксимировались формулой (1). Значения γ определялись методом наименьших квадратов в координатах $\ln \mu - \ln(1 - RH)$.

На рис. 2 представлено изменение конденсационной активности за период 1998–2004 гг. Как видим из полученных данных, основные черты годового хода γ устойчиво повторяются из года в год.

В зимних условиях его значения в среднем выше, чем в теплое время года. С начала марта конденсационная активность аэрозоля начинает резко возрастать и достигает своего максимального значения к началу или середине апреля. Наличие весеннего максимума является наиболее характерной чертой годового хода данного параметра. Он неизменно наблюдается каждый год, хотя его величина в разные годы различна и зависит от погодных условий, но жесткой привязки положения и величины максимума к какому-либо атмосферному параметру пока не удалось выявить.

Уменьшение параметра конденсационной активности продолжается с середины апреля до июля, затем с августа до середины октября наблюдается рост, а с ноября по март регистрируется в среднем постоянное значение γ . В этот период наблюдаются лишь локальные максимумы и минимумы, абсолютная величина которых значительно ниже глобального весеннего максимума, а положение жестко не фиксировано.

Такая структура годового хода может быть обусловлена двумя основными причинами: либо довольно существенным изменением физико-химических свойств частиц аэрозоля при переходе от холодного периода к теплomu и обратно, либо

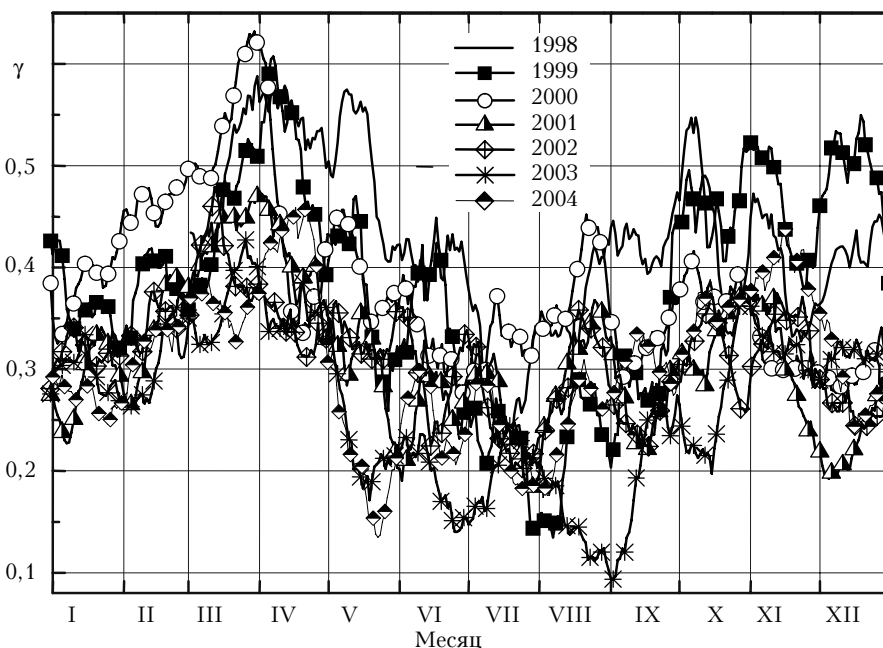


Рис. 2. Годовой ход параметра конденсационной активности

заметной перестройкой спектра размеров частиц. И та, и другая гипотезы вполне соответствуют сложившимся представлениям об основных факторах, определяющих реакцию частиц на изменение относительной влажности воздуха. В весенний период наблюдается значительный пространственный контраст состояния и мощности источников частиц и паров аэрозолеобразующих соединений. Весной под воздействием западно-восточного переноса в атмосферу Западной Сибири поступают аэрозольные частицы, образующиеся из различных накопленных за зимний период в снежном покрове химических соединений, которые в больших количествах освобождаются при таянии снега в западных районах. Но наиболее заметный рост значений γ наблюдается, как правило, после того, как начинается интенсивное подтаивание верхней кромки снежного покрова непосредственно в районе проведения измерений.

При анализе практически любых данных, полученных в атмосфере в конкретном пункте наблюдений, всегда необходимо ответить на два вопроса: характерны ли выявленные закономерности для всего региона и в какой мере они отягощены воздействием близ расположенных промышленных центров (как в нашем случае г. Томск). Чтобы выявить влияние антропогенного фактора на получаемые результаты, была проведена серия экспериментов, в которых параллельно измерялись аэрозольные и метеорологические параметры в Томске и фоновом лесном районе вблизи п. Киреевск на расстоянии примерно 60 км от города. Сравнение рядов общей концентрации и коэффициента рассеяния в этих пунктах показало, что формирование поля концентрации субмикронного аэрозоля в приземном слое атмосферы происходит в региональном масштабе, и лишь примерно в 25% реализаций наблюдается влияние антропогенного фактора на получаемые данные [11]. Эксперимент, проводившийся весной 2001 г., помимо параметров, характеризующих концентрацию аэрозоля, включал в себя измерения конденсационной активности. Выбор весеннего сезона был продиктован следующими

соображениями: во-первых, в это время года наблюдается наибольшая изменчивость всех атмосферных параметров; во-вторых, накопленный к этому времени ряд значений γ уже выявил устойчиво повторяющийся из года в год максимум в весенние месяцы, и, в-третьих, нужно было ответить на вопрос, обусловлен ли этот максимум влиянием города на измеряемые параметры, или же он характерен для региона в целом. На рис. 3 приведен временной ход параметра γ , полученный в ходе эксперимента в двух пунктах. Видно, что различие между измеренными значениями γ в Томске и Киреевске в большинстве случаев не превышает погрешности его определения и, следовательно, еще раз подтверждает, что процессы формирования субмикронного аэрозоля имеют, по крайней мере, региональный масштаб.

Для исследования влияния синоптических процессов на конденсационную активность аэрозоля данные анализировались отдельно по каждому сезону для двух основных типов воздушных масс, определяющих погоду в Западно-Сибирском регионе, — континентальной арктической и континентальной умеренной. Средние значения γ приведены в таблице.

| Сезон | Воздушная масса | | Достоверность различия, % |
|-------|-----------------|-----------------|---------------------------|
| | арктическая | умеренная | |
| Зима | $0,37 \pm 0,11$ | $0,46 \pm 0,12$ | 99 |
| Весна | $0,55 \pm 0,14$ | $0,47 \pm 0,15$ | 99 |
| Лето | $0,32 \pm 0,15$ | $0,32 \pm 0,14$ | < 10 |
| Осень | $0,42 \pm 0,16$ | $0,39 \pm 0,17$ | < 40 |

Конденсационная активность аэрозоля зимой в умеренной воздушной массе больше, чем в арктической (достоверность различия средних значений составляет 99%). Весной характер различий меняется на противоположный. Летом и осенью средние значения γ в двух воздушных массах неразличимы. По-видимому, это связано с различной предысторией воздушных масс, приходящих на территорию Западной Сибири в разные сезоны.

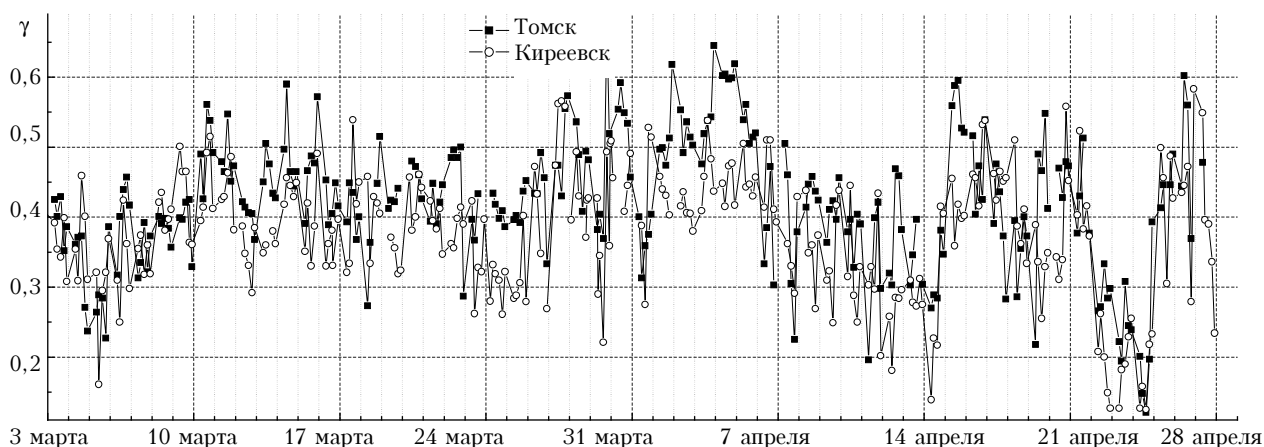


Рис. 3. Временной ход параметра конденсационной активности весной 2001 г. в Томске и фоновом лесном районе вблизи п. Киреевск

Семилетний период измерений уже позволяет сделать некоторые оценки межгодовой изменчивости параметра конденсационной активности. Среднегодовые значения параметра γ показаны на рис. 4. Здесь же приведены его среднесезонные значения для различных лет.

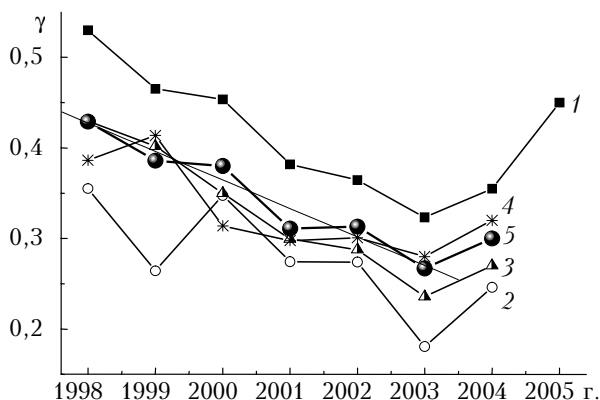


Рис. 4. Межгодовая изменчивость параметра конденсационной активности: 1 – весна; 2 – лето; 3 – осень; 4 – зима; 5 – среднегодовое значение

Видно, что в период 1998–2003 гг. наблюдается снижение γ от года к году, причем оно проявляется не только для всего года в целом, но и для каждого сезона в отдельности. Вместе с этим, как видно на рис. 2, в это время наблюдается и уменьшение амплитуды годового хода. Так, максимальные значения γ , реализующиеся в конце марта – начале апреля, составляют $\sim 0,6$ в 1998–2000 гг. и лишь $\sim 0,45$ в 2003 г. Однако начиная с 2004 г. намечается тенденция к увеличению среднегодового и среднесезонных значений γ ; так, среднее значение для весны 2005 г. уже достигло уровня 1999–2000 гг.

Как было сказано выше, основной причиной появления различных значений γ являются вариации содержания веществ различной растворимости в составе аэрозольных частиц. К сожалению, мы не располагаем данными систематических измерений химического состава аэрозоля в пункте наблюдения за эти годы. Следующей возможной причиной может быть различная конденсационная активность частиц разных размеров. Для проверки этой гипотезы по данным о функции распределения частиц по размерам, измеряемой фотоэлектрическим счетчиком, входящим в состав аэрозольной станции, был рассчитан параметр X , представляющий собой отношение концентраций субмикронной (радиус частиц $r = 0,2\text{--}0,5$ мкм) и грубодисперсной ($r = 0,5\text{--}2$ мкм) фракций частиц: $X = N_{\text{сбм}}/N_{\text{гр}}$. На рис. 5 показан временной ход среднесуточных и среднемесячных значений этого параметра в течение 1999–2003 гг. [12]. Налицо тенденция увеличения его значений, т.е. увеличения относительного содержания более мелких частиц в спектре размеров аэрозоля. В настоящей статье преждевременно интерпретировать подобный межгодовой ход относительного содержания субмикронных частиц как основную причину снижения параметра конденса-

ционной активности. Исследования конденсационной активности частиц разных размеров в нашем пункте наблюдения только недавно начаты [13], однако данный факт может служить подтверждением того, что в исследуемом регионе в этот период действительно происходили заметные межгодовые изменения характеристик аэрозоля.

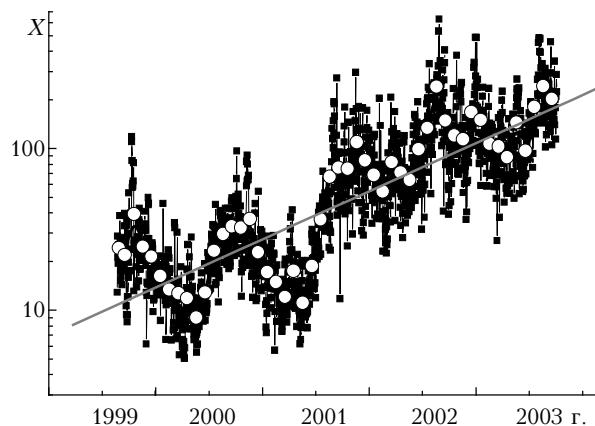


Рис. 5. Временной ход отношения концентраций субмикронной и грубодисперсной фракций частиц: квадраты – среднесуточные значения, кружки – среднемесячные

Суммируя результаты в целом, подчеркнем, что выявленное устойчиво повторяющееся из года в год межсезонное изменение параметра конденсационной активности субмикронного аэрозоля (особенно ярко проявляющееся при переходе от холодного периода к теплomu) дает основания полагать, что этот процесс типичен для атмосферы (по крайней мере, для рассматриваемого географического района).

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке РФФИ (гранты № 98-05-65206 и 03-05-64787), программы ARM (USA, контракт № 5012) и программы № 2.12 ОФН РАН.

1. Kasten F. Visibility forecast in the phase of precondensation // *Tellus*. 1969. V. 21. N 3. P. 631–635.
2. Hanel G. The properties of atmospheric aerosol particles as function of relative humidity at the thermodynamic equilibrium with surrounding moist air // *Adv. in Geophys.* 1976. V. 19. P. 73–188.
3. Ferron G.A., Karg E., Bush B., Heyder J. Hygroscopicity of ambient aerosol // *J. Aerosol Sci.* 1999. V. 30. Suppl. 1. P. 19–20.
4. Massling A., Birmili W., Wiedensohler A., Stock M., Voutilainen A. Diurnal behavior of hygroscopic properties of submicrometer urban aerosol particles // *J. Aerosol Sci.* 2004. V. 35. Suppl. 1. P. 13–14.
5. Kandler K., Bartz J., Bush B., Heyder J., Karg E., Kramer M., Shultz L., Sprengard-Eichel C., Tschiersch J. Hygroscopic properties and water-soluble fraction of atmospheric particles in the diameter range from 50 nm to 4 μm // *Abstracts of 8 Scientific Assembly of International Association of Meteorology and Atmospheric Sciences*. 10–18 July 2001. Innsbruck, Austria. P. 68.
6. Kozlov V.S., Panchenko M.V., Tumakov A.G., Shmarunov V.P., Yausheva E.P. Some peculiarities of the mutual variability of the content of soot and submicron

- ron aerosol in the near-ground air layer // *J. Aerosol Sci.* 1997. V. 28. Suppl. 1. P. 231–232.
7. Горчаков Г.И., Емиленко А.С., Свириденков М.А. Однопараметрическая модель приземного аэрозоля // *Изв. АН СССР. Физ. атмосф. и океана.* 1981. Т. 17. № 1. С. 39–49.
 8. Бартенева О.Д., Довгялло Е.И., Полякова Е.А. Экспериментальные исследования оптических свойств приземного слоя атмосферы // *Тр. ГГО.* 1967. Вып. 220. 265 с.
 9. Гаврилов В.А. О нефелометрическом методе определения прозрачности атмосферы // *Метеорол. и гидрол.* 1951. № 8.
 10. Панченко М.В., Терпугова С.А., Тумаков А.Г., Белан Б.Д., Рассказчикова Т.М. Методические аспекты самолетных нефелометрических исследований тропосферного аэрозоля в региональном масштабе // *Оптика атмосф. и океана.* 1994. Т. 7. № 8. С. 1022–1033.
 11. Панченко М.В., Польшкин В.В., Терпугова С.А., Тумаков А.Г., Шмаргунов В.П., Яушева Е.П. О формировании среднерегионального аэрозольного фона // *Оптика атмосф. и океана.* 1995. Т. 8. № 7. С. 1112–1114.
 12. Pol'kin V.V. Temporal variability of microstructural parameters of near-ground aerosol. Part 1. Annual and seasonal variability // *Proc. SPIE.* 2004. V. 5743. P. 358–363.
 13. Панченко М.В., Свириденков М.А., Терпугова С.А., Козлов В.С. Активная спектронефелометрия в исследовании микрофизических характеристик субмикронного аэрозоля // *Оптика атмосф. и океана.* 2004. Т. 17. № 5–6. С. 428–436.

M.V. Panchenko, S.A. Terpugova, V.S. Kozlov, V.V. Pol'kin, E.P. Yausheva. Annual behavior of the condensation activity of submicron aerosol in the atmospheric surface layer of Western Siberia.

The data of long-term measurements of the dependence of the submicron aerosol scattering coefficient on relative humidity in the near-ground layer of the atmosphere carried out at the Aerosol Monitoring Station of IAO SB RAS are analyzed.

To study the dynamics of the optical characteristics under the effect of relative humidity, the approach was applied based on separate investigation of the optical parameters of the dry matter of aerosol particles and their change during the process of humidification.

The characteristic peculiarities in the annual behavior of the parameter of submicron aerosol condensation activity are revealed. Their stability from year to year is shown. The effect of different air masses in every season is analyzed. It is shown that formation of the principal optical characteristics of submicron aerosol is governed by the processes of at least regional scale.