

## Пространственная и временная изменчивость микродисперсной фракции аэрозоля (наночастиц) на территории Сибири

М.Ю. Аршинов<sup>1</sup>, Б.Д. Белан<sup>1,2</sup>, Ж.-Д. Парис<sup>3</sup>, Г.О. Задде<sup>2</sup>, Д.В. Симоненков<sup>1\*</sup>

<sup>1</sup>Институт оптики атмосферы им. В.Е. Зуева СО РАН, Россия

634021, г. Томск, пл. Академика Зуева, 1

<sup>2</sup>Томский государственный университет

634050, г. Томск, пр. Ленина, 36, Россия

<sup>3</sup>Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement IPSL, CEA-CNRS, Saclay, France

Поступила в редакцию 2.09.2008 г.

Рассматривается пространственно-временная изменчивость образования микродисперсной фракции над Сибирью, и сделана оценка приоритетных механизмов генерации наночастиц. Анализ процессов нуклеации в свободной атмосфере показал, что она наблюдалась в 85% случаев из всех проведенных самолетных зондирований. При этом почти 80% слоев частиц образуется в диапазоне высот от 4 до 7 км. Наиболее часто мощность слоя лежит в пределах от 0,5 до 2 км. Она может достигать толщины почти 4 км. Зафиксированное ранее одновременное увеличение концентрации наночастиц и озона выражается в том, что совпадение и несовпадение слоев наночастиц и озона равновероятны на всех высотах. Горизонтальная протяженность слоев наночастиц заключена в пределах от нескольких десятков до 600 км. При этом наиболее вероятной является протяженность 100–300 км (> 50% случаев). В приземном слое минимум среднемесячных значений как общей концентрации микродисперсного аэрозоля, так и частиц нуклеационной моды приходится на летние месяцы. В свободной атмосфере концентрация частиц ( $d = 3\text{--}70$  нм) изменяется в диапазоне от 300 летом до  $30\text{ см}^{-3}$  зимой. Содержание частиц ( $d = 70\text{--}200$  нм) находится в диапазоне 10 и  $30\text{ см}^{-3}$  зимой и летом соответственно. Процессы нуклеации наночастиц происходят в пограничном слое и в свободной тропосфере совершенно независимо. Основными источниками генерации наночастиц в свободной атмосфере являются процессы нуклеации и фотохимические процессы. В пограничном слое атмосферы вклады нуклеационных, фотохимических и адвективных процессов соизмеримы.

*Ключевые слова:* наночастицы, пространственное распределение, нуклеация, сезонный цикл.

### Введение

Микродисперсная фракция, или, как теперь называют, наночастицы, образуется в воздухе *in situ* конденсационным путем из газов-предшественников и дает старт всему аэрозольному процессу в атмосфере [1]. Поэтому для понимания поведения аэрозоля в атмосфере в целом необходимо, в первую очередь, иметь представление о процессах и масштабах генерации этой стартовой фракции.

Создание в начале 90-х гг. XX в. оборудования, способного фиксировать частицы размерами 3–15 нм, привело к бурному исследованию процессов образования наночастиц в атмосфере. Полученные результаты в значительной мере уточнили представления о механизмах их образования в воздухе. К настоящему времени во многих натуральных и лабораторных экспериментах установлено, что наночастицы в воздухе

могут образовываться по следующим механизмам: бинарная нуклеация, включающая водяной пар и пары серной кислоты; тройная (в зарубежной литературе тернарная), включающая пары водяного пара, серной кислоты и аммиака; ион-индуцированная нуклеация; образование частиц в ходе окисления органических соединений; спонтанная конденсация самих органических соединений; нуклеация с участием галогенсодержащих соединений.

Несмотря на прогресс в изучении наночастиц, в понимании их роли в атмосферных процессах остается много неясных вопросов. Как показано в отчете [2], это обусловлено недостатком данных о пространственных и временных масштабах генерации этой фракции в разных географических районах, на разных высотных эшелонах, ее взаимодействием с более крупными фракциями аэрозоля и присутствующими газообразными соединениями. Более того, в зависимости от физико-географических условий изменяются и приоритетные механизмы, участвующие в генерации наночастиц. Так, например, в прибрежных районах основным становится галогенный механизм, который малоэффективен во внутриконтинентальных

\* Михаил Юрьевич Аршинов (michael@iao.ru); Борис Денисович Белан (bdd@iao.ru); Жан-Даниель Парис; Геннадий Освальдович Задде; Денис Валентинович Симоненков (simon@iao.ru).

условиях. Те же авторы сделали обзор всех данных измерений, которые были получены к 2004 г. [3]. В этом обзоре показано, что из 124 проектов, по которым опубликованы результаты натуральных измерений, нет ни одного, который бы проводился над обширной территорией России по всей толще тропосферы. Таким образом, огромная часть суши земного шара, имеющая самые разные физико-географические условия, не освещена данными наблюдений. Следовательно, оценка роли микродисперсной фракции в атмосферных процессах, без устранения этого пробела, практически невозможна.

Измерения наночастиц на территории России выполнялись в основном эпизодически и носили локальный характер [4–9], в обзоре [3] упомянута только работа [7]. Поскольку измерения производились в ходе отдельных непродолжительных экспериментов, то целостного представления о поведении наночастиц в приземном слое атмосферы они не дают.

В настоящей статье приводятся данные о пространственно-временной изменчивости образования микродисперсной фракции над значительной частью территории России (Сибирь) и сделана оценка приоритетных механизмов генерации наночастиц.

## 1. Методы и материал

Для оценки пространственных (горизонтальных и вертикальных) масштабов областей, в которых происходит образование наночастиц, использовался самолет-лаборатория Ан-30 «Оптик-Э» [10], оснащенный специально созданным в ИХКГ СО РАН

диффузионным спектрометром аэрозоля (ДСА), который позволяет измерять размер частиц в диапазонах 3–70 и 70–200 нм. Параллельно измерялись метеовеличины, дисперсный и химический состав субмикронной фракции аэрозоля, концентрация газовых компонент, навигационные характеристики [10]. В ходе полетов также отработывалась методика определения химического состава микродисперсной фракции аэрозоля с помощью многослойных фильтров, разработанных в НИФХИ им. Л.Я. Карпова.

Задача для самолетных измерений нетривиальная, так как получаемой навески может просто не хватить по массе для анализа. Надо подобрать необходимые расходы воздуха и решить еще ряд технических задач. Полеты осуществлялись по маршрутам Новосибирск–Якутск–Новосибирск и Новосибирск–Салехард–Хатанга–Чокурдах–Певек–Чокурдах–Якутск–Мирный–Новосибирск по оригинальной методике. Суть ее в том, что весь маршрут выполняется с переменной высотой от минимально возможной (500 м) до максимальной 7000 м. В итоге на разрезе получается несколько вертикальных профилей (шаг 50–250 км) с учетом горизонтальной составляющей полета. По полученным данным строится вертикальный разрез измеренной величины.

Таким образом, определение зон образования наночастиц может осуществляться с разрешением от 50 до 250 км по горизонтали и 50–100 м по вертикали. Последнее определяется скоростью подъема или спуска самолета, что задается диспетчером авиатрассы, и частотой регистрации ДСА. Схема полета по такой методике показана на рис. 1.

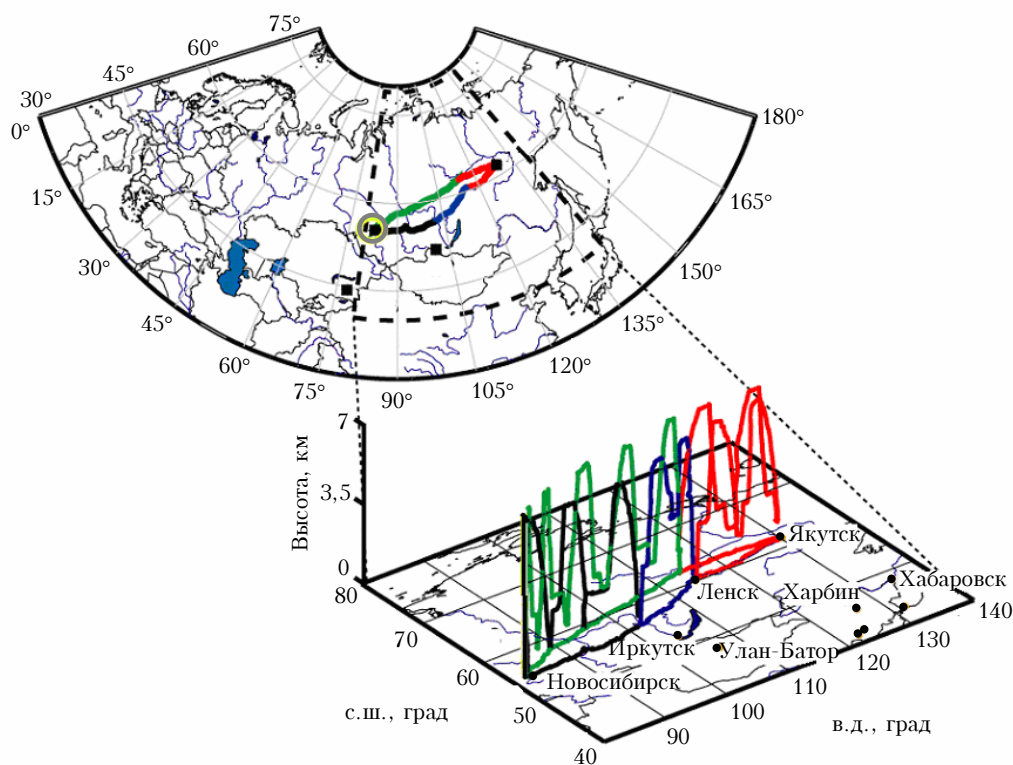


Рис. 1. Схема полета по проекту YAK-AEROSIB

Для исследования пространственного распределения наночастиц меньшего масштаба использовалась мобильная станция АКВ-2, оснащенная тем же набором приборов, что и самолет-лаборатория [11]. Станция работала по маршрутам Томск–Барнаул–Томск, Томск–Омск–Томск, Томск–Иркутск–Томск. В отличие от других мобильных станций АКВ-2 позволяет производить измерения при своем движении. Это даст возможность оценивать дополнительно и микромасштабные изменения концентрации наночастиц.

Таким образом, совмещение двух носителей оборудования позволяет охватить пространственные масштабы от 3000 до нескольких километров, т.е. от макро- до микромасштаба, с пересечением на мезомасштабе.

Временные масштабы оценивались двумя способами. Первый – с помощью данных самолета-лаборатории, получаемых ежемесячно в ходе вертикального зондирования на юге Западной Сибири. Полеты происходят над одним и тем же районом, по одной и той же методике. Второй способ заключается в организации непрерывных (круглосуточные, ежечасные) измерений концентрации аэрозолеобразующих газов: диоксида серы, сероводорода, аммиака, оксида и диоксида азота, суммарных углеводородов; газов, участвующих в фотохимических процессах: озона, оксида и диоксида углерода, метана; микродисперсной и субмикронной фракций аэрозоля; интегральной и ультрафиолетовой солнечной радиации; метеовеличин в двух районах: в фоновом и урбанизированном. Такая организация измерений позволит охватить временные масштабы от сезона до нескольких часов.

Оценка вклада различных механизмов в нуклеацию частиц выполнялась по оригинальной методике [12]. Ее суть в том, что для оценки того или иного механизма используются данные измерений газов-предшественников (сернистый ангидрид, аммиак, водяной пар, концентрация углеводородов), промежуточные компоненты (гидроксил) рассчитываются по хорошо проверенным эмпирическим соотношениям, контроль расчета ведется по концентрации наночастиц и продуктам реакций. Этот подход позволяет избежать необходимости постановки дополнительных дорогостоящих экспериментов и вместе с тем быть уверенным в надежности качественных выводов. Поскольку в условиях реальной атмосферы все вышеперечисленные механизмы работают одновременно и ряд одинаковых компонент может участвовать в разных механизмах в одно и то же время, то даже измерение всех составляющих не избавит исследователя от неуверенности при интерпретации результатов.

Объем материала оказался следующим. Два года непрерывного мониторинга микродисперсной фракции на ТОР-станции (1996 и 2005–2006 гг.) [13, 14]. Пять полетов по маршруту Новосибирск–Якутск–Новосибирск, 64 вертикальных профиля в районе Новосибирска, 2 полета по маршруту Новосибирск–Салехард–Новосибирск и 1 полет Новосибирск–Салехард–Хатанга–Чокурдах–Певек–Чокурдах–Якутск–Мирный–Новосибирск. Несколько маршрутов выполнено с помощью мобильной станции.

## 2. Пространственное распределение наночастиц

Рассмотрение пространственного распределения микродисперсной фракции аэрозоля в атмосфере разобьем на две части. Отдельно рассмотрим вертикальное распределение, которое проведем по профилям, снятым во время подъема и спуска самолета. Горизонтальное распределение – на основании вертикальных разрезов, построенных по данным вертикального зондирования при полетах по вышеперечисленным маршрутам.

### 2.1. Вертикальное распределение

За рубежом первые эпизодические эксперименты были проведены в середине XX в. Они дали лишь общее представление о вертикальном распределении аэрозоля, включая микродисперсную фракцию [15]. В последние годы исследованием микродисперсных аэрозольных частиц применительно к проблеме облакообразования в свободной атмосфере занимаются сборные группы американских ученых, представляющих различные институты и университеты США, объединяемые различными совместными программами или проектами [16–19]. Однако данными группами в основном проводятся самолетные исследования нуклеации и вертикального распределения аэрозоля в атмосфере экваториальных районов Тихого океана, которые вначале были нацелены на изучение процессов облакообразования. За последние пять лет ими же был проведен ряд экспериментов по изучению процессов образования аэрозоля в свободной атмосфере удаленных морских районов.

Эти исследования показали [16, 18, 19], что при определенных условиях нуклеация может быть достаточно интенсивной, вплоть до появления аэрозольных слоев, в которых концентрация микродисперсных частиц превышает таковую в пограничном слое. Работы над континентом проводятся и европейскими группами ученых, однако из-за сильной антропогенной нагрузки Европы по имеющимся результатам трудно выявить природные процессы аэрозолеобразования в свободной тропосфере [20–22].

Проведенные нами эксперименты [23] показали, что в пограничном слое атмосферы содержание наночастиц изменяется вначале по модели Jaenicke, а в свободной тропосфере наблюдаются слои с повышенной концентрацией. Нетрудно сделать вывод, что эти слои являются результатом процессов образования новых частиц непосредственно в средней тропосфере, так как сами частицы и аэрозолеобразующие соединения из нижележащих слоев не поступали. Нельзя объяснить их появление и дальним переносом, так как время жизни микродисперсных частиц ( $d < 70$  нм) в атмосфере невелико из-за высокой скорости конденсационного роста.

Анализ распределения концентрации более старых и долгоживущих частиц ( $d > 70$  нм) показал, что она, по сравнению с вновь образовавшимися, была более низкой и монотонно убывала практически от самой поверхности земли. При дальнем переносе концентрации частиц  $d < 70$  нм и  $d > 70$  нм были

бы соизмеримы, так как для формирования последней фракции было бы достаточно времени.

Накопленный к настоящему времени объем данных позволяет в первом приближении оценить повторяемость событий нуклеации частиц в свободной атмосфере и повторяемость совпадения слоев наночастиц и озона. Оказалось, что нуклеация в свободной атмосфере наблюдалась в 85% случаев. Из них 45% — хорошо выраженные процессы, 40% — слабо. В 15% случаев нуклеации в свободной атмосфере не зафиксировано.

Вертикальные профили приведены в [23], поэтому перейдем сразу к статистическим данным. На рис. 2 представлена повторяемость образования частиц микродисперсной фракции аэрозоля ( $d < 70$  нм) над южными районами Западной Сибири. Повторяемость рассчитана по данным 64 вертикальных профилей.

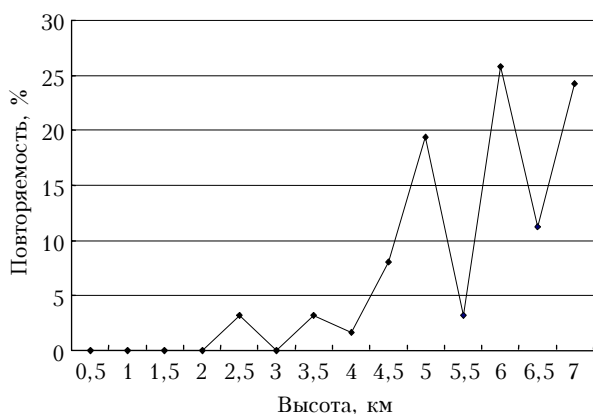


Рис. 2. Повторяемость слоев образования наночастиц на разных высотах

Из рис. 2 видно, что почти 80% слоев частиц образуется в диапазоне высот от 4 до 7 км. Ниже 2 км, внутри пограничного слоя атмосферы, выделение слоев затруднено, так как здесь могут находиться шлейфы от мелких пожаров. Неуверенность в происхождении повышенной концентрации частиц заставляет отбрасывать подобные случаи. Непонятны также и провалы на высотах 5,5 и 6,5 км, поскольку благоприятные условия для генерации частиц на этих высотах и соседних мало отличаются [12].

Небезинтересно также рассмотреть данные о толщине слоев воздуха, в которых в свободной тропосфере наблюдаются процессы нуклеации. Такие данные представлены на рис. 3.

Они показывают, что наиболее часто толщина слоя, в котором происходит новообразование частиц, составляет 1 км (почти 35% случаев). Она может достигать толщины почти 4 км, но в более чем 60% случаев заключена в пределах от 0,5 до 2 км.

В большинстве полетов было также зафиксировано, что слои наночастиц в свободной атмосфере совпадают с уровнями повышенной концентрации озона. Оценка повторяемости показывает, что на 72% профилей слои озона совпадают со слоями наночастиц. Как это распределяется по высоте, иллюстрирует рис. 4.

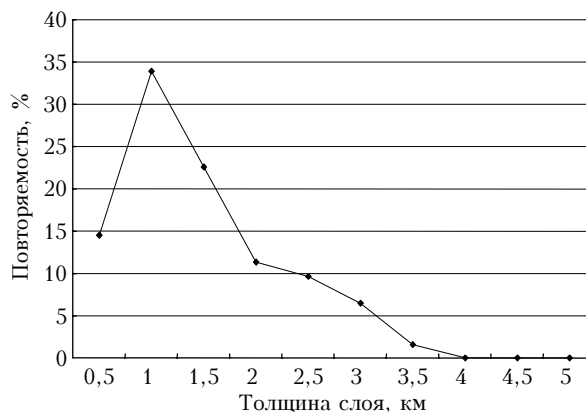


Рис. 3. Повторяемость толщины слоев, в которых происходит нуклеация

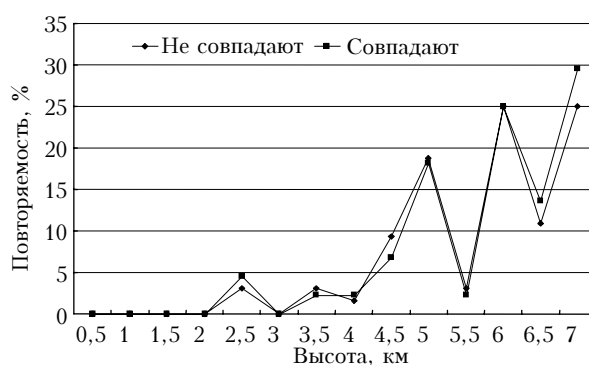


Рис. 4. Повторяемость совпадения и несовпадения слоев повышенных концентраций наночастиц и озона

Видно, что совпадение и несовпадение слоев наночастиц и озона равновероятны на всех высотах и в целом повторяют высотный ход повторяемости появления слоев нуклеации. Это, на наш взгляд, говорит о том, что процессы образования повышенных концентраций озона и наночастиц в свободной атмосфере одни и те же.

Расчет вертикальных потоков микродисперсной и субмикронной фракций в пограничном слое и свободной атмосфере, выполненный в [23], показал, что средняя тропосфера эффективно отделена от их источника — подстилающей поверхности. Положительные потоки, наблюдающиеся в пограничном слое, при переходе через верхнюю границу слоя перемешивания изменяют знак на отрицательный. В результате от поверхности земли происходит экспоненциальное уменьшение концентрации наночастиц до границы слоя перемешивания, где наблюдается ее минимум.

## 2.2. Горизонтальное распределение

Протяженность слоев образования наночастиц по горизонтали рассмотрим с помощью вертикальных разрезов, построенных по данным маршрутных измерений с переменным профилем полета. Пример такого разреза приведен на рис. 5.

Здесь верхний блок показывает распределение аккумуляционной моды микродисперсной фракции,

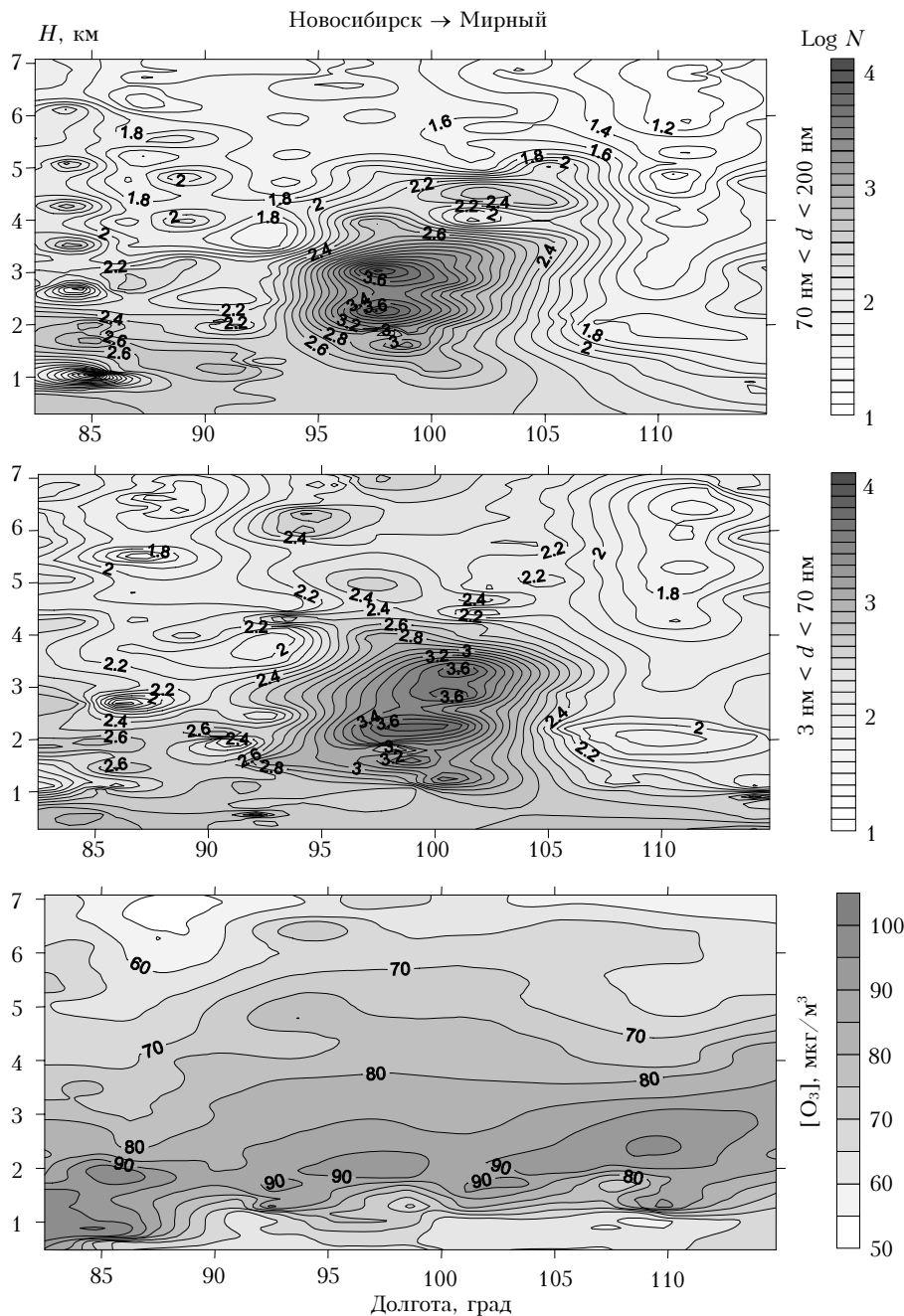


Рис. 5. Пространственное распределение концентрации наночастиц и озона (07.09.2006)

средний объединяет нуклеационную моду и моду Айткена и нижний дает распределение озона. Из-за большого диапазона изменения концентрации наночастиц данные по ним представлены в виде логарифма.

Видно, что в свободной атмосфере имеются зоны повышенной концентрации наночастиц, у которых можно определить горизонтальную протяженность. По данным с таких разрезов составлена табл. 1.

Данные табл. 1 показывают, что горизонтальная протяженность слоев наночастиц лежит в пределах от нескольких десятков до 600 км. При этом наиболее вероятной является протяженность 100–300 км (> 50% случаев). Если принять среднюю скорость ветра на этих высотах 10 м/с, то можно

Таблица 1

**Горизонтальная протяженность слоев наночастиц в свободной атмосфере**

Протяженность, км	Повторяемость, %
< 100	11
100–199	26
200–299	32
300–399	16
400–499	11
500–599	5

получить оценку временной продолжительности процесса от 2 до 7 ч. Именно столько времени необходимо после начала процесса нуклеации для

распространения наночастиц на полученные расстояния. Эта оценка верна, если газы-предшественники появились на высоте новообразования частиц не в виде слоя, в котором нуклеация прошла одновременно.

### 3. Временная изменчивость

Анализ временной изменчивости начнем с годового хода микродисперсной фракции аэрозоля. Вначале рассмотрим динамику в приземном слое, а затем в свободной тропосфере.

Годовой ход микродисперсной фракции аэрозоля и отдельно нуклеационной моды представлен на рис. 6.

Минимум среднемесячных значений как общей концентрации микродисперсного аэрозоля, так и частиц нуклеационной моды приходится на летние месяцы. Другой характерной особенностью годового хода является то, что один из максимумов наблю-

дается в весеннее время и его можно считать характерным, так как он выделяется на всех кривых, представленных на рис. 6.

Оценки скоростей образования частиц, сделанные в [13], указывают на то, что процессы нуклеации не ослабевают в летнее время, а скорости образования частиц незначительно превышают зимние значения. Тогда, в силу локальности процессов *in situ*, можно утверждать, что интенсивность генерации микродисперсного аэрозоля не имеет жесткой сезонной зависимости. На первый взгляд, это кажется несколько нелогичным, поскольку источником как первичного аэрозоля, так и веществ-предшественников вторичного аэрозоля является подстилающая поверхность, а значит, «строительного материала» для формирования микродисперсного аэрозоля должно быть больше летом. Однако, согласно классической теории нуклеации [1], скорость образования стабильных зародышей очень сильно зависит от температуры воздуха и будет выше при низких температурах.

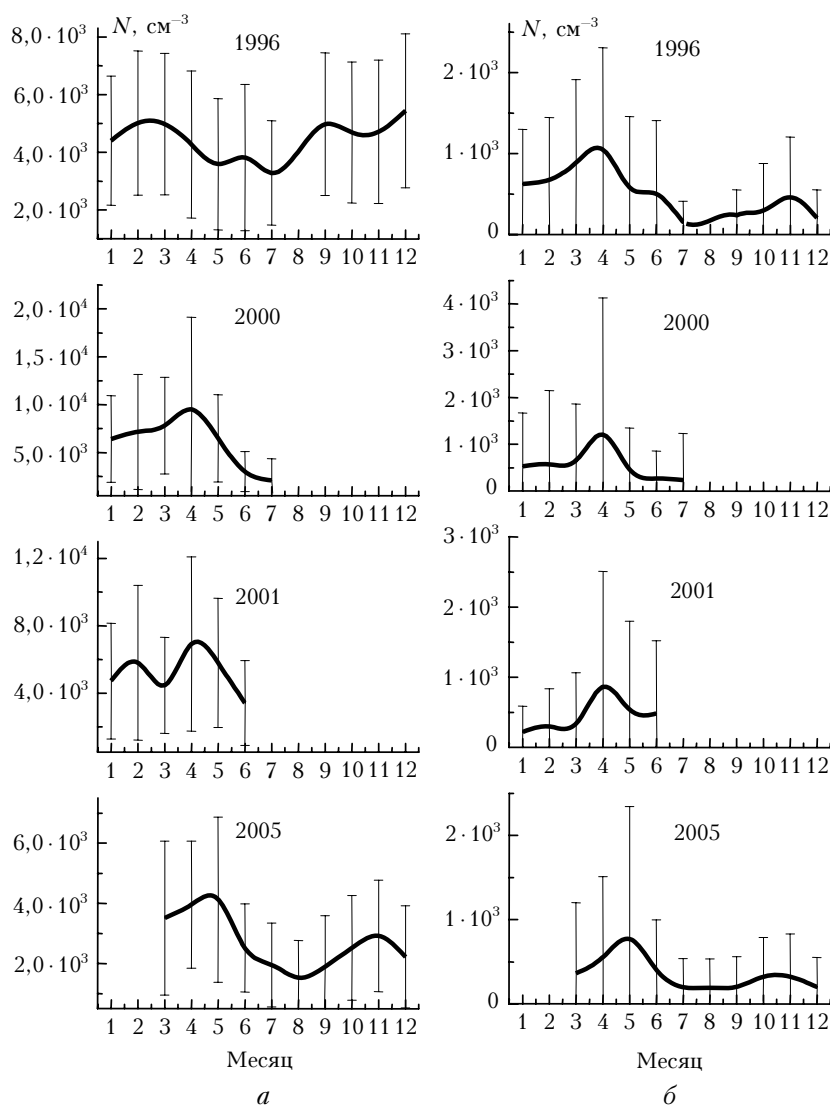


Рис. 6. Годовой ход общей (а) счетной концентрации микродисперсного аэрозоля и частиц нуклеационной моды (б)

С другой стороны, обилие паров аэрозолеобразующих соединений летом приводит к повышению скорости нуклеации и подвижности кластеров, чей размер при этом уменьшается. Вероятность образования аэрозольных наночастиц значительно падает, так как зародыши быстро стекают на присутствующих в атмосфере аэрозоль.

Таким образом, если характер генерации аэрозоля остается относительно постоянным в течение года, то концентрация аэрозоля в приземном слое должна определяться объемом, в котором он рассеивается, т.е. высотой слоя перемешивания. По данным самолетного зондирования над Западной Сибирью [24], годовой ход высоты слоя перемешивания имеет прямо противоположный ход с максимумом в летние месяцы, а это значит, что летом приземная концентрация будет разбавляться за счет турбулентного перераспределения аэрозольных частиц в большем объеме воздуха пограничного слоя атмосферы. Это же обстоятельство, скорее всего, сказывается и на «размытии» максимума в суточном ходе общей счетной концентрации микродисперсной фракции [13], так как летом высота слоя перемешивания претерпевает и значительные суточные изменения. Чтобы проверить этот факт, нужна информация о вертикальном распределении аэрозольных частиц в тропосфере (рис. 7).

Из рис. 7, а, б видно, что концентрация частиц  $d = 3-70$  нм изменяется от 300 летом до  $30 \text{ см}^{-3}$  зимой, частиц  $d = 70-200$  нм –  $10 \text{ см}^{-3}$  летом и  $30 \text{ см}^{-3}$  зимой. Изменчивость наночастиц выше в июне и июле из-за более короткого времени жизни в атмосфере [25, 26]. Наиболее важная особенность на рис. 7 – различие концентраций аэрозольных частиц в пограничном слое и свободной атмосфере. Выше по-

граничного слоя происходит падение концентрации, хотя в этот период имеется интенсивный источник биогенных аэрозолеобразующих паров и выше скорость ионного кластерообразования. Пока этот результат непонятен.

Рис. 7, в показывает отношение мод на разных высотах в течение года. Видно, что в свободной атмосфере оно изменяется от 0,1 до 10. Возможно, это отражение случайного характера в нуклеационных процессах свободной атмосферы. Вторичный максимум приходится на ноябрь, что, возможно, является отражением процессов гниения в осенний период.

Суточный ход микродисперсной фракции имеет хорошо выраженный вид и подробно описан в [13], поэтому останавливаться на нем не будем.

Из других временных закономерностей можно выделить 2-месячный цикл, а также 3- и 7-дневный. Последние, скорее всего, обусловлены синоптическими процессами: средним временем жизни циклона или антициклона и их пары. Более короткие флуктуации зафиксированы как нами, так и другими группами [4–9]. Они могут изменяться от нескольких минут до нескольких часов. Но надежной статистики по ним пока нет.

В табл. 2 приведены абсолютные максимумы и минимумы из всех измерений отдельно для пограничного слоя атмосферы (ПСА) и для свободной тропосферы (СТ).

Таблица 2

$3 \text{ нм} < d < 70 \text{ нм}$	$N_{\min}, \text{ см}^{-3}$	$N_{\max}, \text{ см}^{-3}$
ПСА	10	55455
СТ	6	1536

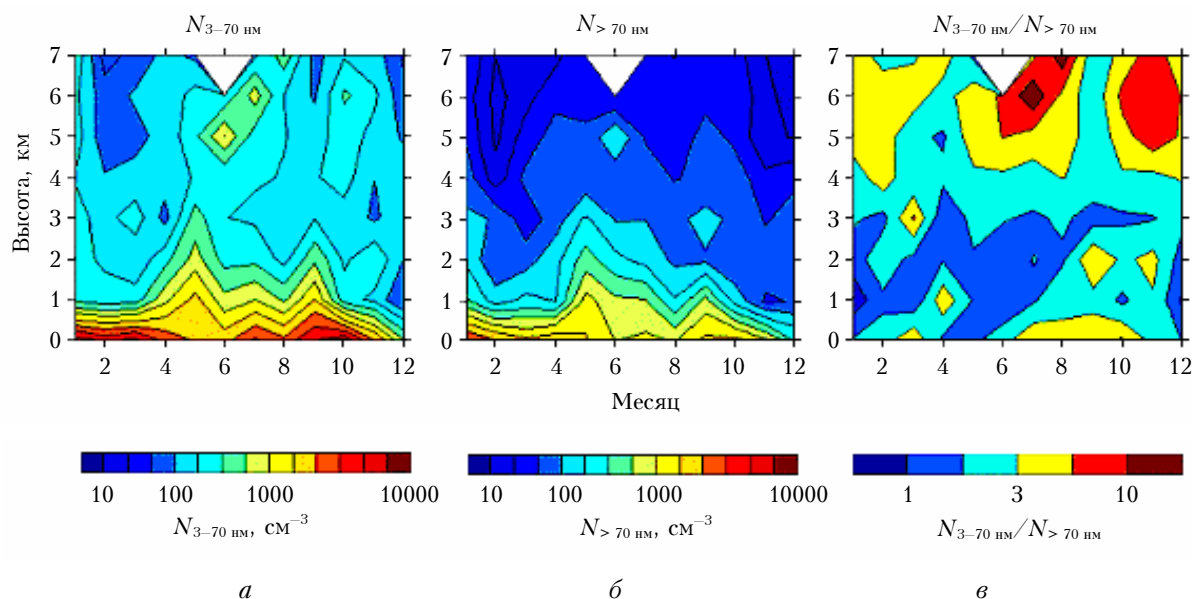


Рис. 7. Годовой ход микродисперсной фракции и аккумуляционной моды аэрозоля и их отношения на разных высотах над Западной Сибирью



#### 4. Анализ нуклеационных процессов

Оценка вклада нуклеационных и фотохимических процессов в генерацию частиц производилась по данным измерений газов-предшественников: диоксида серы, оксида и диоксида азота, озона, микродисперсной и субмикронной фракций аэрозоля, УФ-солнечной радиации в диапазоне 295–310 нм. Рассматривались: бинарная гетеромолекулярная нуклеация серной кислоты и воды; трехкомпонентная нуклеация серной кислоты, воды и аммиака; бинарная нуклеация азотной кислоты и воды. Вначале по концентрации газов рассчитывалось количество образовавшихся частиц размером 3 нм. Полученное значение сопоставлялось с данными прямых измерений. Для бинарной нуклеации  $\text{H}_2\text{O}$  и  $\text{H}_2\text{SO}_4$  получилась скорость  $0,4\text{--}0,5 \text{ см}^{-3} \cdot \text{с}^{-1}$ . Это значит, что бинарная нуклеация  $\text{H}_2\text{O}$  и  $\text{H}_2\text{SO}_4$  не может обеспечить образование наночастиц в том количестве, которое реально наблюдается. Добавление  $0,05 \text{ млрд}^{-1} \text{ NH}_3$  при концентрации  $\text{H}_2\text{SO}_4 \cdot 10^7 \text{ см}^{-3}$  приводит к увеличению скорости до  $10 \text{ см}^{-3} \cdot \text{с}^{-1}$ . Эта величина близка к реально фиксируемым скоростям образования наночастиц в атмосфере. В то же время расчеты и сопоставление с прямыми измерениями показали, что азотная кислота скорее участвует в процессах гетерогенной конденсации наряду с некоторыми легколетучими органическими соединениями, чем в процессах гомогенной нуклеации. Подобный вывод имеется и в работе [27], из которой следует, что для достижения значимых скоростей нуклеации при различных вариантах трехкомпонентной гомогенной нуклеации с участием азотной кислоты ее концентрации должны быть не менее  $10^{16}\text{--}10^{18} \text{ см}^{-3}$ , что невозможно в условиях земной атмосферы.

#### Заключение

Анализ процессов нуклеации в свободной атмосфере показал, что она наблюдалась в 85% случаев из всех проведенных самолетных зондирований. Из них 45% — хорошо выраженные процессы, 40% — слабо. В 15% случаев нуклеации в свободной атмосфере не зафиксировано.

При этом почти 80% слоев частиц образуются в диапазоне высот от 4 до 7 км. Ниже 2 км, внутри пограничного слоя атмосферы, выделение слоев затруднено, так как здесь могут находиться шлейфы от мелких пожаров.

Наиболее часто мощность слоя, в котором происходит новообразование частиц, составляет 1 км (почти 35% случаев). Она может достигать толщины почти 4 км, но в более чем 60% случаев лежит в пределах от 0,5 до 2 км.

Зафиксированное ранее одновременное увеличение концентрации наночастиц и озона выражается в том, что совпадение и несовпадение слоев наночастиц и озона равновероятны на всех высотах и в целом повторяют высотный ход повторяемости появления слоев нуклеации. Это говорит о том, что процессы образования повышенных концентраций

озона и наночастиц в свободной атмосфере одни и те же.

Горизонтальная протяженность слоев наночастиц лежит в пределах от нескольких десятков до 600 км. При этом наиболее вероятной является протяженность 100–300 км (> 50% случаев).

В приземном слое минимум среднемесячных значений как общей концентрации микродисперсного аэрозоля, так и частиц нуклеационной моды приходится на летние месяцы.

В свободной атмосфере концентрация частиц  $d = 3\text{--}70 \text{ нм}$  изменяется в диапазоне от 300 летом до  $30 \text{ см}^{-3}$  зимой. Содержание частиц  $d = 70\text{--}200 \text{ нм}$  находится в диапазоне  $10 \text{ см}^{-3}$  зимой и  $30 \text{ см}^{-3}$  летом.

Процессы нуклеации наночастиц происходят в пограничном слое и в свободной тропосфере совершенно независимо. Основными источниками генерации наночастиц в свободной атмосфере являются процессы нуклеации и фотохимические процессы. При этом данные измерения показали, что в пограничном слое атмосферы, обогащенном аэрозолеобразующими парами, вклады нуклеационных, фотохимических и адвективных процессов соизмеримы.

Работа выполнена при поддержке программы № 16 Президиума РАН, программ № 9 и 11 Отделения наук о Земле РАН, грантов РФФИ № 07-05-00645, 08-05-10033, 08-05-92499, проектов МНТЦ № 3032 и 3275.

1. Фукс Н.А. Механика аэрозолей. М.: АН СССР, 1955. 351 с.
2. Petaja T., Kulmala M. / Ed. Formation and growth of secondary atmospheric aerosols // Report series in aerosol science. Helsinki. 2006. N 80. 82 p.
3. Kulmala M., Vehkamäki H., Petaja T., Dal Maso M., Lauri A., Kerminen V.-M., Birmili W., McMurry P.H. Formation and growth rates of ultrafine atmospheric particles: a review of observations // J. Aerosol Sci. 2004. V. 35. N 2. P. 143–176.
4. Козлов А.С., Анкилов А.Н., Бакланов А.М., Веселовский Е.Д., Власенко А.Л., Еременко С.И., Малышкин С.Б., Пащенко С.Э., Шитов А.В. Исследование характеристик аэрозоля Телецкого озера // Оптика атмосфер. и океана. 1998. Т. 11. № 6. С. 640–644.
5. Козлов А.С., Анкилов А.Н., Бакланов А.М., Власенко А.Л., Еременко С.И., Малышкин С.Б., Пащенко С.Э. Экспериментальная оценка относительного вклада гомогенного механизма образования аэрозоля в Западной Сибири // Оптика атмосфер. и океана. 1999. Т. 12. № 12. С. 1098–1104.
6. Смирнов В.В., Сальм Я.Й., Мякела Ю.М., Паатеро Ю. Динамика атмосферного аэрозоля, ионов и минорных газов при вторжениях арктического воздуха // Оптика атмосфер. и океана. 2004. Т. 17. № 1. С. 71–80.
7. Koutsenogii P.K., Jaenicke R. Number concentration and size distribution of atmospheric aerosol in Siberia // J. Aerosol Sci. 1994. V. 25. N 3. P. 377–383.
8. Загайнов В.А., Лушников А.А., Бирюков Ю.Г., Ходжер Т.В., Алоян А.Е., Аримото Р. Исследование нуклеации в атмосфере фоновых районов // Труды Междунар. конф. «Аэрозоли и безопасность». Обнинск, 2005. С. 38–40.
9. Цицкишвили М.С., Загайнов В.А., Минашкин В.М., Кардозахия Г.И., Чхартавили А.Г., Шатбершви



- ли И.Г., Нинуа Т.Л. Экология атмосферы – мониторинг глобальной динамики фонового аэрозольного компонента атмосферы в средних широтах северного полушария на международных станциях Северного и Южного Кавказа // Труды Междунар. конф. «Аэрозоли и безопасность». Обнинск, 2005. С. 43–45.
10. Зуев В.Е., Белан Б.Д., Кабанов Д.М., Ковалевский В.К., Лукьянов О.Ю., Мелешкин В.Е., Микушев М.К., Панченко М.В., Пеннер И.Э., Покровский Е.В., Сакерин С.М., Тертугова С.А., Толмачев Г.Н., Тумаков А.Г., Шаманаев В.С., Щербатов А.И. Самолет-лаборатория Ан-30 «Оптик-Э» для экологических исследований // Оптика атмосф. 1992. Т. 5. № 10. С. 1012–1021.
  11. Аршинов М.Ю., Белан Б.Д., Давыдов Д.К., Иелев Г.А., Козлов А.В., Пестунов Д.А., Покровский Е.В., Симоненков Д.В., Ужегова Н.В., Фофанов А.В. Мобильная станция АКВ-2 и ее применение на примере г. Томска // Оптика атмосф. и океана. 2005. Т. 18. № 8. С. 643–648.
  12. Аршинов М.Ю., Белан Б.Д., Симоненков Д.В. Фотохимическое образование микродисперсного аэрозоля в атмосфере континентального района // Оптика атмосф. и океана. 2006. Т. 19. № 4. С. 328–339.
  13. Аршинов М.Ю., Белан Б.Д. Суточный ход микродисперсной фракции аэрозоля // Оптика атмосф. и океана. 2000. Т. 13. № 11. С. 983–990.
  14. Dal Maso M., Sogacheva L., Anisimov M.P., Arshinov M., Baklanov A., Belan B., Khodzher T.V., Obolkin V.A., Staroverova A., Vlasov A., Zagaynov V.A., Lushnikov A., Lyubovtseva Y.S., Riipinen I., Kerminen V.-M., Kulmala M. Aerosol particle formation events at two Siberian stations inside the boreal forest // Boreal Environ. Res. 2008. V. 13. N 2. P. 81–92.
  15. Weickmann H. Recent measurements of the vertical distribution of Aitken nuclei, artificial stimulation of rain // Proc. 1st Conf. Physics Clouds and Precipitation particles. H. Weickmann and W. Smith. New York: Pergamon Press, 1957. 81 p.
  16. Clarke A.D., Li Z., Litchy M. Aerosol dynamics in the equatorial Pacific Marine Boundary layer: Microphysics, diurnal cycles and entrainment // Geophys. Res. Lett. 1997. V. 23. N 7. P. 733–736.
  17. Clarke A.D., Eisele F.L., Kapustin V.N., Moore K., Tanner D., Mauldin L., Litchy M., Lienert B., Carroll M.A., Albercook G. Nucleation in the equatorial free troposphere: Favorable environments during PEM-Tropics // J. Geophys. Res. D. 1999. V. 104. N 5. P. 5735–5744.
  18. Clarke A.D., Varner J.L., Eisele F.L., Mauldin R.L., Tanner D., Litchy M. Particle production in the remote marine atmosphere: Cloud outflow and subsidence during ACE1 // J. Geophys. Res. D. 1998. V. 103. N 13. P. 16397–16409.
  19. Weber R.J., McMurry P.H., Mauldin R.L., III, Tanner D.J., Eisele F.L., Clarke A.D., Kapustin V.N. New particle formation in the remote troposphere: A comparison of observation at various sites // Geophys. Res. Lett. 1999. V. 26. N 3. P. 307–310.
  20. Keil A., Wendisch M. Bursts of Aitken mode and ultrafine particles observed at the top of continental boundary layer clouds // J. Aerosol Sci. 2001. V. 32. N 5. P. 649–660.
  21. Brock C.A., Schröder F., Kärcher B., Petzold A., Busen R., Fiebig M. Ultrafine particle size distribution measured in aircraft exhaust plumes // J. Geophys. Res. D. 2000. V. 105. N 21. P. 26555–26567.
  22. Brock C.A., Washenfelder R.A., Trainer M., Ryeerson T.B., Wilson J.C., Reeves J.M., Huey L.G., Holloway J.S., Parrish D.D., Hübler G., Fehsenfeld F.C. Particle growth in the plumes of coal-fired power plants // J. Geophys. Res. D. 2002. V. 107. N 12. doi: 10.1029/2001JD001062.
  23. Аршинов М.Ю., Белан Б.Д. Вертикальное распределение наночастиц в тропосфере континентального района // Оптика атмосф. и океана. 2004. Т. 17. № 7. С. 547–557.
  24. Белан Б.Д. Динамика слоя перемешивания по аэрозольным данным // Оптика атмосф. и океана. 1994. Т. 7. № 8. С. 1044–1054.
  25. Jobson B.T., McKeen S.A., Parrish D.D., Fehsenfeld F.C., Blake D.R., Goldstein A.H., Schauffler S.M., Elkins J.C. Trace gas mixing ratio variability versus lifetime in the troposphere and stratosphere: Observations // J. Geophys. Res. D. 1999. V. 104. N 13. P. 16091–16113.
  26. Young L.H., Benson D.R., Montanaro W.M., Lee S.H., Pan L.L., Rogers D.C., Jensen J., Stith J.L., Davis C.A., Campos T.L., Bowman K.P., Cooper W.A., Lait L.R. Enhanced new particle formation observed in the northern midlatitude tropopause region // J. Geophys. Res. 2007. V. 112. doi:10.1029/2006JD008109.
  27. Napari I., Kulmala M., Vehkam K.H. Ternary nucleation of inorganic acids, ammonia, and water // J. Chem. Phys. 2002. V. 117. N 18. P. 8418–8425.

*M.Yu. Arshinov, B.D. Belan, J.-D. Paris, G.O. Zadde, D.V. Simonenkov. Spatial and temporal variability of microdispersion fraction of aerosol (nanoparticles) at the Siberian territory.*

Spatio-temporal variability of the ultrafine and fine particle formation over Siberia is discussed. An estimate of preemptive processes of nanoparticle formation has been done. Analysis of the nucleation processes in the free atmosphere showed that nucleation events were observed in 85% of all airborne soundings performed over Siberia. In 80% of cases nanoparticle layers are formed between heights of 4 and 7 km. More frequently layer thickness varies between 0.5 and 2.0 km, and sometimes it can reach 4 km. Simultaneous increase in concentration of nanoparticles and ozone, stated earlier, appears with equal probability of coincidence or non-coincidence of nanoparticle and ozone layers at all altitudes. Horizontal length of nanoparticle layers varies between tens and 600 km. At that, the most possible length is from 100 to 300 km (> 50 % of cases). Minimum of monthly mean values of both total nanoparticle and nucleation mode particle concentration in the ground layer is observed during summertime. Concentration of particles with diameters between 3 and 70 nm in the free troposphere varies from 300 in summer down to 30 cm<sup>-3</sup> in winter. The number density of bigger particles (70 nm < d<sub>p</sub> < 200 nm) varies between 10 (in winter) and 30 cm<sup>-3</sup> (in summer). Nucleation in the atmospheric boundary layer and free troposphere occurs absolutely independently. Main sources of new-particle formation in the free atmosphere are nucleation and photochemical processes. Contribution of nucleation, photochemical, and advective processes in the atmospheric boundary layer are comparable.