

ОПТИКА КЛАСТЕРОВ, АЭРОЗОЛЕЙ И ГИДРОЗОЛЕЙ

УДК 551.510.41

**Нуклеационные всплески в атмосфере  
бореальной зоны Западной Сибири.  
Часть I. Классификация и повторяемость**

**М.Ю. Аршинов<sup>1</sup>, Б.Д. Белан<sup>1</sup>, Д.К. Давыдов<sup>1</sup>, Г.А. Ивлев<sup>1</sup>, А.В. Козлов<sup>1</sup>,  
А.С. Козлов<sup>2</sup>, С.Б. Малышкин<sup>2</sup>, Д.В. Симоненков<sup>1</sup>, П.Н. Антохин<sup>1\*</sup>**

<sup>1</sup>*Институт оптики атмосферы им. В.Е. Зуева СО РАН  
634021, г. Томск, пл. Академика Зуева, 1*

<sup>2</sup>*Институт химической кинетики и горения им. В.В. Воеводского СО РАН  
630090, г. Новосибирск, ул. Институтская, 3*

Поступила в редакцию 26.02.2014 г.

Приведены классификация и статистика повторяемости всплесков образования наночастиц в атмосфере бореальной зоны Западной Сибири, основанные на данных непрерывных измерений распределения аэрозольных частиц в широком диапазоне размеров на двух станциях мониторинга атмосферного состава, принадлежащих ИОА СО РАН. Анализ данных, полученных за период 2010–2013 гг., показал, что доля нуклеационных всплесков составляет 20–30% в год. Максимальное количество всплесков наблюдается в весенний период с марта по май, вторичный максимум приходится на сентябрь. Сезонный ход и среднегодовая величина повторяемости всплесков в Западной Сибири идентичны наблюдаемым в бореальных лесах на фоновых станциях Скандинавии, при этом полученные нами данные практически полностью совпадают с многолетними данными финской станции SMEAR II (Hyytiälä).

*Ключевые слова:* нуклеационные всплески, образование новых частиц, классификация, повторяемость, атмосферный аэрозоль, наночастицы; nucleation bursts, new particle formation, classification, frequency, atmospheric aerosols, nanoparticles.

**Введение**

Несмотря на значительную роль аэрозолей в климатических изменениях, уровень понимания важности косвенного эффекта аэрозоля в радиационных изменениях до сих пор остается очень низким, что существенно осложняет прогнозирование глобального изменения климата Земли. Одна из причин этого заключается в недостатке данных о распределении в атмосфере вторичных аэрозолей. В отличие от первичного аэрозоля, поступающего в атмосферу напрямую, вторичный образуется в ходе очень сложных процессов преобразования типа газ—частица (нуклеации).

Прямой радиационный форсинг аэрозоля прежде всего связан с процессом рассеяния солнечного света, в результате которого часть света отражается обратно в космос, соответственно до поверхности Земли доходит меньшая часть солнечной радиации [1].

Количество света, отраженного аэрозольными частицами, приблизительно пропорционально общему содержанию массы аэрозольных частиц в атмосферном столбе ( $г/м^2$ ). Эффект рассеяния оказывает охлаждающее действие. Однако часть аэрозольных частиц способна поглощать солнечную радиацию, приводя к нагреву. Таким образом, общий прямой радиационный форсинг аэрозоля (отрицательный или положительный) зависит от соотношения рассеивающего и поглощающего вещества, входящего в состав аэрозольных частиц.

Косвенный эффект аэрозоля гораздо сложнее прямого, поскольку он зависит от цепочки процессов [1], связывающих количество аэрозольных частиц с концентрацией облачных ядер конденсации. В свою очередь, облачные ядра определяют концентрацию и размер облачных капель и, соответственно, альбедо облаков и время их жизни, поэтому количественные оценки имеют самые большие неопределенности.

Кроме того, в последнее десятилетие получила развитие гипотеза возможного механизма обратной связи «лес—аэрозоль—климат», предложенная авторами [2, 3]. Согласно этой гипотезе глобальное повышение температуры и рост концентрации  $CO_2$  могут привести к увеличению длительности фотосинтеза и роста лесов за счет расширения периода вегетации. В свою очередь, увеличение биомассы лесов должно

\* Михаил Юрьевич Аршинов (michael@iao.ru); Борис Денисович Белан (bbd@iao.ru); Денис Константинович Давыдов (denic@iao.ru); Георгий Алексеевич Ивлев (ivlev@iao.ru); Артем Владимирович Козлов (artem@iao.ru); Александр Сергеевич Козлов (kozlov@kinetics.nsc.ru); Сергей Борисович Малышкин (msb@ngs.ru); Денис Валентинович Симоненков (simon@iao.ru); Павел Николаевич Антохин (arn@iao.ru).

вызвать рост эмиссии биогенных неметановых летучих органических соединений, и, в конечном итоге, увеличить количество образующихся вторичных органических аэрозольных частиц. Эта гипотеза механизма обратной связи климатического эффекта CO<sub>2</sub>, лесных экосистем и аэрозоля позволяет рассматривать климатические изменения в новом аспекте [3].

Таким образом, интерес к процессам образования наночастиц *in situ* из газовой фазы (нуклеации) и их дальнейшего роста в последние годы сильно возрос [4]. Особое внимание уделяется всплескам образования частиц – нуклеационным всплескам (НВ), так как это явление на данный момент наименее изученное. Наиболее часто нуклеационные всплески наблюдаются в чистой атмосфере континентальных районов, как правило в бореальных лесах [3–7], а также в Арктике [8] и Антарктике. В [9] было показано, что бореальные леса вносят значительный вклад в наблюдаемые НВ и быстрый конденсационный рост частиц происходит вследствие мощной эмиссии летучих органических соединений (ЛОС), которые в свою очередь окисляются в атмосфере, образуя вещества, способные перейти в конденсированную фазу.

Несмотря на возрастающий интерес к этому явлению, длительных и непрерывных данных о поведении атмосферных частиц нанометрового диапазона по-прежнему мало. Наиболее длинные ряды измерений, позволившие рассчитать статистику повторяемости НВ, были получены в бореальных лесах Скандинавии [5–7, 9–12]. Статистика НВ рассчитывалась на основе классификации событий, предложенной в 2005 г. авторами [7] и уточненной в работе [13].

На территории России таких длительных измерений практически не проводилось. С учетом того что Сибирь занимает около 10% земной суши и более 50% бореальных лесов приходится на ее территорию, проведение непрерывных комплексных наблюдений за атмосферным составом (в свете вышеупомянутой гипотезы) представляется крайне необходимым. Между тем территория Сибири практически не охвачена современной наблюдательной сетью.

Первые сведения о динамике аэрозольных частиц нанометрового диапазона в атмосфере Сибирского региона приведены в работах [14–17], в которых анализируется суточный ход концентрации наночастиц, полученный на основе нескольких летних измерительных кампаний, проводившихся в 1990–1992 гг. в районе оз. Байкал и г. Новосибирска, а также усредненные спектры размеров аэрозольных частиц. Исходя из полученного суточного хода с максимумом в дневное время, авторы этих работ сделали вывод о преобладании фотохимических процессов образования аэрозольных частиц *in situ* в местах проведения экспериментов.

Первый круглогодичный мониторинг распределения аэрозольных частиц по размерам в диапазоне от 3 до 200 нм был проведен на TOR-станции ИОА СО РАН в 1996 г. Были получены характеристики суточного хода концентрации наночастиц, а также сделана оценка скорости их образования в результа-

те преобразований газ–частица для различных сезонов года [18]. Второй длительный цикл измерений на территории Сибири, проведенный с марта 2005 по март 2006 г., позволил получить первые статистические данные о повторяемости нуклеационных всплесков в данном регионе [19] и уточнить оценки скорости образования наночастиц в результате фотохимических преобразований [20]. Однако в силу того что устаревшая в то время аппаратура не позволяла измерять с хорошим временным разрешением, полноценное выявление событий НВ было затруднено, и, соответственно, их классификация была несколько упрощенной.

Модернизация аэрозольных спектрометров, проведенная в 2009 г., позволила запустить непрерывные измерения счетного распределения аэрозолей в широком диапазоне размеров на двух принадлежащих ИОА СО РАН станциях мониторинга атмосферного состава на регулярной основе. В настоящей статье приводится статистика повторяемости нуклеационных всплесков в атмосфере бореальной зоны Западной Сибири, основанная на данных измерений с использованием обновленной аппаратуры и на классификации суточной динамики спектра размеров аэрозольных частиц, предложенной авторами [7, 13].

## 1. Район исследований и аппаратура

Непрерывные измерения счетного распределения аэрозоля в широком диапазоне размеров (от 3 нм до 30 мкм) были начаты на двух автоматических постах мониторинга атмосферного состава (табл. 1, рис. 1, цв. вклейка), которыми располагает ИОА СО РАН: на TOR-станции в марте 2010 г. и на территории обсерватории «Фоновая» в мае 2011 г.

Таблица 1

Координаты постов

Пост	Широта	Долгота	Высота над у.м.
TOR-станция	56°28'41"	85°03'15"	133
Обсерватория «Фоновая»	56°25'07"	84°04'27"	80

Полный перечень измеряемых параметров приведен в табл. 2, а режим работы постов подробно описан в [21]. Оборудование постов полностью автоматизировано и требует лишь периодической замены расходных материалов. Для оперативного контроля измерений и состояния систем ежедневно осуществляется сбор информации с каждого из постов путем передачи ее через локальную сеть (с обсерватории «Фоновая» посредством GSM-модема) на центральный сервер. Это позволяет отслеживать состояние атмосферы практически в режиме *on-line*.

Для измерений распределения аэрозольных частиц по размерам используются два типа приборов. К первому типу относятся диффузионные спектрометры аэрозоля (ДСА), которые позволяют восстанавливать счетное распределение наноаэрозолей в диапазоне размеров от 3 до 200 нм в 20 интервалах [22, 23]. ДСА состоит из 8-канальной диффузионной батареи

(ДБ) сетчатого типа и конденсационного счетчика частиц (КСЧ).

В 2010 г. два ДСА, приобретенные в свое время в ИХКиГ СО РАН, были модернизированы. Вся устаревшая электроника заменена на контроллер МСВ2300 архитектуры ARM (Advanced RISC Ма-

chine), вместо КСЧ на парах дибutilфталата были установлены счетчики WCPC-3781 (TSI inc., США) и Grimm #5.403 (GRIMM Aerosol Technik GmbH, Германия), а оригинальные клапаны переключения воздушных трактов были заменены на электропневматические распределители Camozzi серии 623-15G-A60.

Таблица 2

Состав измерительных комплексов и их характеристики

Блок	Прибор/датчик	Параметр	Диапазон	Погрешность	Постоянная времени, с
<i>ТОР-станция</i>					
Метеокомплекс	НИН-3602-С	$t$ , °С	-40...+85	± 0,1 °С	1
	НИН-3602-С	$U$ , %	0...100	± 2%	1
	М-63	dd, град	0...360	± 10°	1
	М-63	$V$ , м/с	1,2...40	± (0,5 + 0,05 $V$ )	1
	MPX4115AP	$P$ , гПа	150...1150	± 1,5	0,001
Газоаналитический комплекс	G2301-m	CO <sub>2</sub> , ppm	0...1000	< 0,2 ppm	1
		CH <sub>4</sub> , ppm	0...20	< 0,0015 ppm	1
		H <sub>2</sub> O, ppm	0...70000	< 150 ppm	1
	3.02-П	O <sub>3</sub> , мкг/м <sup>3</sup>	0...500	± 20%	1
	P-310	NO/NO <sub>2</sub> , мкг/м <sup>3</sup>	0...1000	± 25%	160
	K-100	CO, мг/м <sup>3</sup>	0...50	± 20%	1
Аэрозольный комплекс	API 100E	SO <sub>2</sub> , ppm	0...20	± 0,5%	20
	Brewer 049	OCO, е.Д.	—	± 1%	120
Аэрозоны	GRIMM #1.109	$D_p$ , мкм (31 канал) $N$ , см <sup>-3</sup>	0,25...32 0...2000	— ± 3%	6
	Диффузионный спектрометр аэрозоля	$D_p$ , нм (20 каналов) $N$ , см <sup>-3</sup>	3...200 0...500000	— ± 10%	80
Аэроионы	«Сапфир-3М»	$N$ , см <sup>-3</sup>	0...2500000	± 5%	4
Радиационный блок	M-115	$\lambda$ , мкм $Q$ , Вт/м <sup>2</sup>	0,3...2,4 0...1500	± 10%	< 40
	YES UVB-1	$\lambda$ , нм $I$ , Вт/м <sup>2</sup>	280...320 0...2,5	— < 5%	0,1
	Brewer 049	$\lambda$ , нм $I$ , Вт/м <sup>2</sup>	290...325 —	— —	265
Гамма-фон	Индикатор радиационного фона	$\gamma$ -фон, мкР/ч	1...1000	30%	1
<i>Обсерватория «Фоновая»</i>					
Метеокомплекс	НИН-3602-С	$t$ , °С	-40...+85	± 0,1 °С	1
	НИН-3602-С	$U$ , %	0...100	± 2%	1
	М-63	dd, град	0...360	± 10°	1
	М-63	$V$ , м/с	1,2...40	± (0,5 + 0,05 $V$ )	1
	MPX4115AP	$P$ , гПа	150...1150	± 1,5	0,001
Газоаналитический комплекс	FGGA Model 907-0010	CO <sub>2</sub> , ppm	20...10000	0,2 ppm	1
		CH <sub>4</sub> , ppm	0,005...50	0,001 ppm	
		H <sub>2</sub> O, ppm	150...70000	100 ppm	
	LI-840	CO <sub>2</sub> , ppm	0...1000	< 0,2 ppm	1
	3.02-П	O <sub>3</sub> , мкг/м <sup>3</sup>	0...500	± 20%	1
	P-310	NO/NO <sub>2</sub> , мкг/м <sup>3</sup>	0...1000	± 25%	160
Аэрозольный комплекс	K-100	CO, мг/м <sup>3</sup>	0...50	± 20%	1
	C-310	SO <sub>2</sub> , мг/м <sup>3</sup>	0...2	± 25%	142
Аэрозоны	GRIMM #1.108	$D_p$ , мкм (15 каналов) $N$ , см <sup>-3</sup>	0,3...20 0...2000	— ± 3%	6
	Диффузионный спектрометр аэрозоля	$D_p$ , нм (20 каналов) $N$ , см <sup>-3</sup>	3...200 0...1000000	— ± 10%	160
Аэроионы	«Сапфир-3М»	$N$ , см <sup>-3</sup>	0...2500000	± 5%	4

В качестве модуля ДБ оставлены оригинальные 8-канальные ДБ сетчатого типа. После каждого сканирования всех каналов ДБ происходит восстановление спектра размеров с использованием алгоритма, разработанного авторами [24] с учетом эффективности счета WSPC-3781 и Grimm #5.403. Использование этих конденсационных счетчиков, имеющих время отклика менее 2 (WSPC-3781) и 3,9 с (Grimm #5.403), позволило получать полное распределение наночастиц по размерам в диапазоне от 3 до 200 нм за 80 и 160 с соответственно.

Оригинальные диффузионные спектрометры, производившиеся в ИХКиГ СО РАН, ранее неоднократно проходили интеркалибровку с зарубежными приборами [22, 23], однако в связи с тем, что в настоящее время нами используется их современная модификация, встал вопрос о проведении калибровки для проверки качества измерений. Для проведения калибровки аэрозольных приборов с целью определения их характеристик в разных диапазонах размеров необходимы стабильные тестовые аэрозоли, которые подаются к приборам, подлежащим сравнению. Обычно для этого используются генераторы аэрозоля (ГА) с заданными характеристиками. Поскольку мы планировали проведение исследований в атмосфере, то желательно, чтобы популяция генерируемых аэрозолей имела распределение по размерам, близкое к наблюдаемому в реальной атмосфере.

В эксперименте мы использовали генератор аэрозолей Grimm #7.811, работающий на принципе распыления водных растворов или суспензий с последующим осушением. Концентрация генерируемых аэрозольных частиц была выбрана с помощью регулировки воздушных потоков пневматической системы генератора. В качестве наиболее подходящего исходного раствора для генерации аэрозоля нужного нам распределения по размерам был взят раствор хлорида натрия (0,5%). Получаемые на выходе генератора аэрозольные частицы имеют размеры от 10 до 100 нм с максимумом распределения в районе 30 нм. Схема экспериментальной установки представлена на рис. 2 (цв. вклейка).

Измерения распределений аэрозольных частиц по размерам с использованием модифицированного ДСА проводились по приведенной выше схеме при уровнях концентрации тестовых аэрозолей 100 000 и 40 000 см<sup>-3</sup>. Типичные счетные распределения тестовых аэрозолей, полученные в ходе калибровки, представлены на рис. 3 (цв. вклейка).

Основным отличием счетных распределений аэрозолей по размерам, измеренных с помощью ДСА, от распределения тестовых частиц, генерируемых Grimm #7.811, является наличие второй моды с максимумом в районе 140 нм (рис. 3, цв. вклейка). Это связано с тем, что часть аэрозольных частиц успевает коагулировать в расширительной камере и подводящих воздуховодах, формируя вторичную моду. Несмотря на это, положение основной моды достаточно точно совпадает с максимумом распределения тестовых аэрозольных частиц, заявленного производителем.

Проведенные сравнительные измерения тестовых аэрозолей, имеющих распределение по размерам, близ-

кое к наблюдаемому в атмосфере, с использованием двух диффузионных спектрометров аэрозоля показали хорошее согласие. Это дало основание для дальнейшего использования модифицированных ДСА.

## 2. Результаты и обсуждение

### 2.1. Классификация всплесков образования наночастиц (нуклеационных всплесков)

К настоящему времени массив данных наблюдений счетного распределения аэрозоля по размерам на TOR-станции включает в себя более 1 млн 300 тыс. и обсерватории «Фоновая» – 480 тыс. измерений.

Максимальные концентрации, наблюдавшиеся на обеих станциях, составляли десятки тысяч частиц в 1 см<sup>3</sup>. Средняя счетная концентрация аэрозольных частиц за весь период измерений на TOR-станции составила 4575 см<sup>-3</sup> ( $\pm 4568$  см<sup>-3</sup>, медиана = 3330 см<sup>-3</sup>) и на станции «Фоновая» – 2947 см<sup>-3</sup> ( $\pm 3079$  см<sup>-3</sup>, медиана = 2403 см<sup>-3</sup>). Согласно [25] такие значения характерны для удаленных континентальных и сельских районов, что полностью соответствует положению наших станций: TOR-станция находится в лесном массиве на восточной окраине г. Томска, а обсерватория «Фоновая» – в 60 км западнее него на правом берегу реки Оби (ближайший населенный пункт – с. Киреевск находится в 5 км южнее станции). Несмотря на то что первая расположена вблизи крупного мегаполиса, влияние антропогенных выбросов на измерения незначительны вследствие преобладания ветров южного и юго-западного направления. Влияние города чаще всего наблюдается в зимний период во время формирования смоговых ситуаций при мощных инверсиях температуры и безветренной погоде. В целом концентрация аэрозоля на обеих наблюдательных пунктах значительно ниже уровней, характерных для урбанизированных районов, где она составляет  $\approx 1,4 \cdot 10^5$  см<sup>-3</sup> [25].

Накопленный ряд данных позволил классифицировать суточную динамику счетного распределения аэрозолей в атмосфере бореальной зоны Западной Сибири, а также получить статистику повторяемости нуклеационных всплесков. Нуклеацию как таковую современными методами зафиксировать не удается, так как предел обнаружения частиц большинства конденсационных счетчиков составляет 2–10 нм. Однако в связи с тем, что образование частиц нуклеационного диапазона связано с ростом стабильных кластеров, образующихся в результате нуклеации, всплески образования наночастиц назовем нуклеационными всплесками.

В настоящее время не существует какого-либо уникального математического критерия или метода, способного выделить и описать событие всплеска образования наночастиц в атмосфере. Поэтому для его идентификации использовался способ пошагового визуального анализа полного распределения аэрозоля по размерам за каждые сутки в отдельности. После выявления такого события осуществлялась его классификация по трем критериям, предложенным

авторами [7, 13], для того чтобы наши результаты по повторяемости всплесков можно было сравнить с данными других авторов. После визуального анализа дальнейшая выборка осуществлялась по следующим критериям: 1) нуклеационная мода должна быть явно выражена; 2) должна наблюдаться не менее 1 ч; 3) ее поведение во времени должно иметь признаки роста частиц (увеличение среднегеометрического диаметра частиц  $D_{pg}$ ).

Таким образом, вначале все дни наблюдений разделялись на три основные группы: 1) дни с событиями образования наночастиц, 2) дни с неопределенным типом и отсутствием образования частиц *in situ*, т.е. когда нуклеационная мода на протяжении всего дня явно не прослеживалась, и 3) дни с полным счетным распределением частиц, преимущественно бимодальным (мода частиц Айткена + аккумуляционная мода).

Выбранные события образования частиц подразделялись на три типа. Первый характеризуется высокой концентрацией образующихся частиц нуклеационного диапазона ( $D_p < 16$  нм) и невысокой концентрацией присутствующих в атмосфере частиц больших размеров. Тип 1 отражает событие интенсивного и явно выраженного образования частиц наименьшего диапазона размеров, сопровождающегося непрерывным ростом частиц, который длится от 7 до 10 ч.

Для событий второго типа характерно поведение, подобное типу 1, но выраженное чуть слабее, а именно: наблюдаются отдельные флуктуации в распределении по размерам, при этом признаки образования и дальнейшего роста частиц, длящегося немногим меньше, чем при типе 1 (менее 5 ч), достаточно хорошо прослеживаются. Несмотря на эти отличия, расчеты скорости образования и роста возможны для обоих этих типов с хорошим уровнем достоверности.

К третьему типу относятся случаи, когда имеются отдельные признаки образования новых частиц, но одна из стадий прослеживается не очень четко. Например, в некоторых случаях начавшийся процесс образования и роста частиц мог быть прерван вследствие влияния ряда факторов, таких как резкое падение притока солнечной радиации из-за облачности, смена воздушной массы (прохождения атмосферного фронта), дождь и т.д. Также к этому типу относятся случаи со слабым или не явно выраженным ростом размеров частиц.

Безусловно, такая классификация нуклеационных всплесков является субъективной, поэтому при анализе данных возможны ошибки при распознавании типов, которые зачастую вызваны «тонкой» гранью между ними. Из-за этого первые два называют еще случаями интенсивной нуклеации, а третий – слабой.

Дни, во время которых не наблюдалось образование частиц *in situ*, также представляют интерес и классифицируются при анализе как случаи отсутствия нуклеации (тип  $\bar{A}$ ). Когда эволюцию счетного распределения частиц в течение суток невозможно было отнести ни к первым трем типам, ни к послед-

нему, то такие дни классифицировались как неопределенные (тип 0).

На рис. 4 (цв. вклейка) представлены примеры каждого из описанных типов. В связи с субъективностью этой классификации, ниже мы приведем статистику повторяемости нуклеационных всплесков с учетом и без учета неопределенного типа (тип 0), для того чтобы более критически исследовать причины, обуславливающие появление нуклеационных всплесков либо их отсутствие.

## 2.2. Статистика повторяемости всплесков образования наночастиц

Нами были проанализированы 1303 дня измерений на TOR-станции начиная с 4 марта 2010 г. и по 1 февраля 2014 г. включительно и 817 дней на территории обсерватории «Фоновая» начиная с 13 мая 2011 г. и по 1 февраля 2014 г., что составляет 91 и 82% от всего периода наблюдений соответственно. В табл. 3 сведена общая информация по количеству классифицированных дней на обоих постах.

Таблица 3

Общее количество дней, когда наблюдалось образование наночастиц *in situ* (типы 1, 2 и 3), с неопределенным типом (тип 0) и с отсутствием нуклеации (тип  $\bar{A}$ ) за весь период измерений

Месяц	Тип 1	Тип 2	Тип 3	Тип 0	Тип $\bar{A}$	НД*	ОКД**
<i>TOR-станция</i>							
I	1	2	7	17	89	8	116
II	3	2	4	10	63	3	82
III	20	20	9	23	40	12	112
IV	30	11	7	21	31	20	100
V	15	19	6	28	52	4	120
VI	3	6	15	18	63	13	105
VII	2	10	6	22	58	26	98
VIII	7	12	7	24	66	8	116
IX	17	11	7	18	64	3	117
X	8	10	5	19	75	7	117
XI	3	2	5	9	85	16	104
XII	2	2	4	9	99	8	116
<i>Всего</i>	111	107	82	218	785	128	1303
<i>Обсерватория «Фоновая»</i>							
I	0	3	7	8	60	15	78
II	4	1	7	9	36	0	57
III	7	5	5	6	25	14	48
IV	10	11	9	5	20	5	55
V	3	5	8	5	31	41	52
VI	2	2	6	9	53	18	72
VII	1	4	3	5	60	20	73
VIII	3	4	6	5	66	9	84
IX	17	8	6	7	39	13	77
X	7	5	0	7	53	21	72
XI	2	1	6	5	65	11	79
XII	0	1	3	7	59	23	70
<i>Всего</i>	56	50	66	78	567	190	817

\* НД – нет данных, т.е. дни, когда по тем или иным причинам аппаратура не работала; \*\* ОКД – общее количество проанализированных дней

Из всех дней, когда аппаратура функционировала нормально, на TOR-станции было выделено

300 событий нуклеационных всплесков (типы 1, 2 и 3; 23,02%), 785 дней отсутствия образования аэрозоля *in situ* (тип 3; 60,25%) и 218 неопределенных случаев (тип 0; 16,73%). Несмотря на менее длительный ряд данных, полученный в районе обсерватории «Фоновая», общая повторяемость событий, выраженная в процентах, сопоставима с данными TOR-станции и составляет: 172 (21,05%), 567 (69,40%) и 78 (9,55%) соответственно. Расхождения в основном связаны с разным количеством дней неопределенного типа. Если же их исключить из расчетов (т.е. вычесть из об-

щего количества дней дни, когда наблюдался тип 0), то расхождения между повторяемостью отсутствия случаев НВ (тип 3) на TOR-станции и обсерватории «Фоновая» уменьшатся и будут равны 72,4, и 76,7% соответственно. При этом количество событий НВ увеличится до 27,6% на TOR-станции и 23,3% в районе обсерватории «Фоновая». Большее количество неопределенных случаев на TOR-станции обусловлено антропогенным влиянием при наличии ветра со стороны г. Томска. В графическом виде статистика повторяемости представлена на рис. 5.

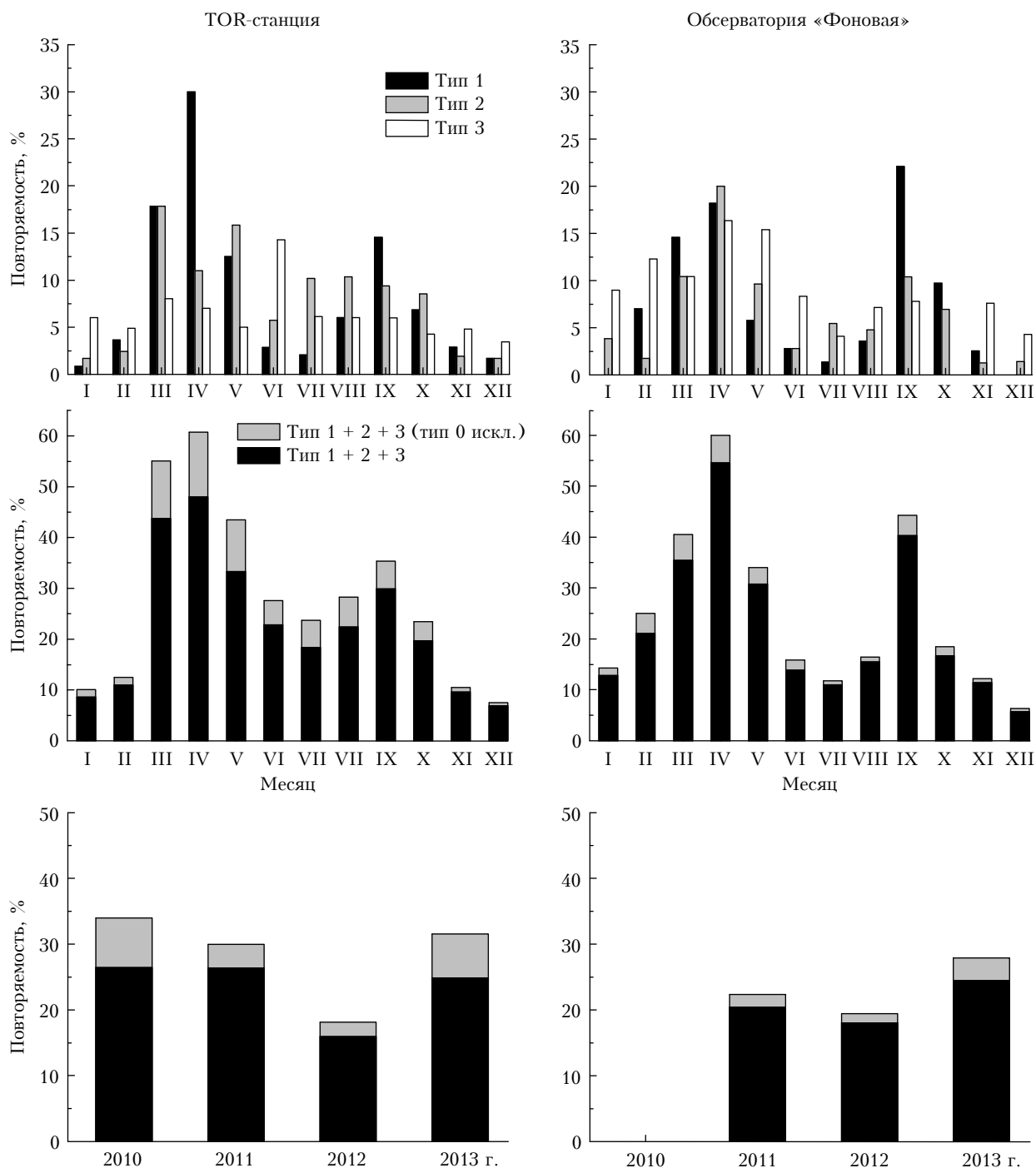


Рис. 5. Повторяемость классифицированных событий НВ

Видно, что максимальное количество НВ наблюдается в весенний период с марта по май включительно. Второй максимум приходится на сентябрь. Именно на эти два периода приходится максимальное число событий интенсивных НВ (типы 1 и 2), когда они могут следовать несколько дней подряд целыми сериями (рис. 6, цв. вклейка). В марте–мае и сентябре наблюдается до 57% всех НВ (типы 1, 2 и 3) на TOR-станции и до 55% – на «Фоновая». Минимальное число случаев НВ приходится на зимние и летние месяцы.

Для того чтобы более подробно рассмотреть начало периода интенсивных нуклеационных всплесков и их межгодовую изменчивость, можно воспользоваться динамикой совокупного числа НВ в течение года (рис. 7, цв. вклейка).

Видно, что резкое увеличение совокупного числа всплесков наблюдается в основном в начале марта, затем наступает некоторое снижение темпа роста событий НВ, переходящее поздней осенью и зимой в стагнацию из-за снижения интенсивности естественной нуклеации. Такая тенденция прослеживается из года в год за исключением 2012 г. Характерной особенностью 2012 г. стало чрезвычайно низкое количество событий НВ, наблюдавшихся в летний период на обеих станциях, обусловленное сильным задымлением атмосферы лесными пожарами, охватившими обширную территорию Сибири. Большое количество выброшенного в атмосферу дымового аэрозоля привело к снижению совокупного числа НВ в 2012 г. (см. рис. 5) и к стагнации числа событий в летний период (см. рис. 7), поскольку одним из условий, благоприятствующим нуклеации и образованию наночастиц *in situ*, является низкая суммарная поверхность аэрозоля, присутствующего в атмосфере.

### 2.3. Нуклеационные всплески и органический компонент атмосферного аэрозоля

Кроме непрерывных измерений дисперсного состава аэрозоля в 2013 г. нами проводился самолетный отбор проб аэрозоля в тропосфере над Караканским бором (Новосибирской обл.) с целью анализа органических соединений, входящих в состав аэрозольного вещества. Это позволило выявить сезонную динамику массовой концентрации нормальных углеводородов ( $n$ -НС), находящихся в аэрозольной фазе, и сопоставить ее с количеством наблюдавшихся нуклеационных всплесков (рис. 8).

Максимум суммарной массовой концентрации  $n$ -алканов в аэрозольных пробах приходится на апрель–май, минимум – на декабрь и январь, что достаточно хорошо согласуется с сезонной зависимостью числа нуклеационных всплесков, зарегистрированных на TOR-станции и обсерватории «Фоновая». Это свидетельствует в пользу того, что основная часть естественных аэрозолей, образующихся *in situ* в атмосфере бореальной зоны Сибири, является продуктом эмиссии биогенных летучих органических соединений (БЛОС), способных перейти в аэрозольную фазу.

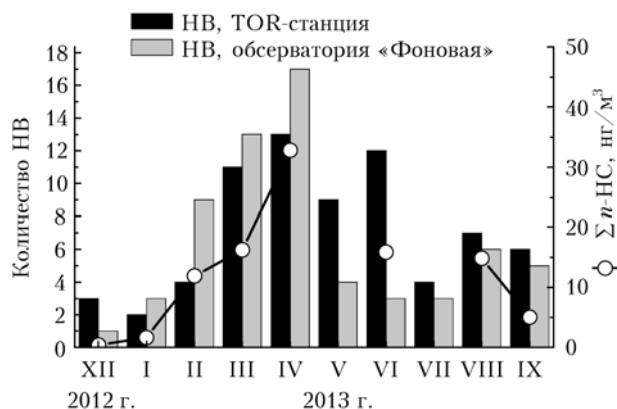


Рис. 8. Изменение количества событий (дней) нуклеационных всплесков и суммарной массовой концентрации нормальных углеводородов ( $\Sigma n$ -НС)

Это же подтверждается сопоставлением наших данных о сезонной зависимости повторяемости НВ с данными, опубликованными в [10, 12], где указывается на то, что к интенсивному образованию наночастиц весной в бореальной зоне приводит эмиссия БЛОС во время возобновления фотосинтеза после зимнего периода [26]. Авторами [26] была сделана попытка исследования связи интенсивности весенних нуклеационных всплесков с фотосинтетической активностью. Основываясь на зависимости фотосинтеза от температуры, в качестве показателя его активности был выбран так называемый параметр состояния функциональных компонентов растений  $S$ , выраженный в градусах Цельсия.

Под функциональными компонентами подразумеваются ферменты, пигменты, клеточные мембраны и т.д. Суть параметра  $S$  состоит в том, что он связывает фотосинтетическую эффективность с предельной температурой окружающего воздуха, позволяя спрогнозировать начало фотосинтеза в лесу [27]. В ходе анализа данных авторами [26] было установлено, что весенний рост числа нуклеационных всплесков начинается при значениях  $S$  выше  $-10^\circ\text{C}$ . Однако взаимосвязь между фотосинтетической эффективностью и образованием частиц *in situ* является нелинейной. Нуклеационные всплески наиболее вероятны при  $S$  от  $-5$  до  $+10^\circ\text{C}$  с максимумом при  $S = 0^\circ\text{C}$ , когда фотосинтетическая эффективность составляет всего 30% от своей максимальной величины.

Зимний минимум, вероятно, является следствием снижения поступления веществ в атмосферу путем испарения. Наиболее ярко показать сезонные изменения, происходящие в составе углеводородов, возможно на примере сравнения распределений по длине цепи, полученных в апреле и декабре (рис. 9). С общим повышением температуры окружающего воздуха в пробах увеличивается количество тяжелых ( $C > 20$ ) алканов, повышается общая концентрация и расширяется диапазон обнаруживаемых веществ.

В отличие от весеннего пика числа НВ каких-либо гипотез о природе осеннего максимума, наблюдаемого в чистых районах бореальных лесов, в литературе найти не удалось. Однако наблюдения,

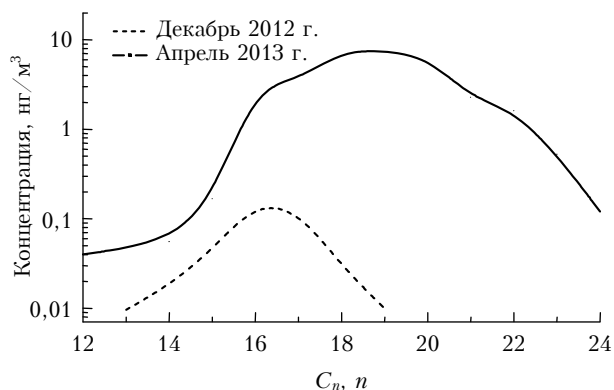


Рис. 9. Распределение концентрации  $n$ -алканов по длине цепи (количеству атомов углерода) для декабря 2012 г. и апреля 2013 г.

проведенные на TOR-станции и на территории обсерватории «Фоновая», позволяют предположить, что увеличение числа всплесков осенью вызвано обратным процессом. То есть вероятность всплесков возрастает в момент, когда фотосинтез практически заканчивается и начинается резкое «пожелтение» листьев, сопровождаемое интенсивной эмиссией БЛОС в преддверии зимы, в том числе и хвойными деревьями. Причем это происходит при температуре воздуха ниже  $+10^{\circ}\text{C}$ .

### Заключение

Непрерывные измерения счетного распределения аэрозоля в широком диапазоне размеров, проведенные в последние годы в бореальной зоне Западной Сибири, позволили получить более качественную информацию о таком явлении, как естественные нуклеационные всплески, и уточнить статистику их повторяемости в данном регионе (см. [19]). Так, в работе [19] отмечено, что за период с марта 2005 по март 2006 г. только 10% дней можно было отнести к событиям НВ. Анализ данных за период 2010–2013 гг. показал, что доля нуклеационных всплесков составляет 20–30% в год. Сезонный ход и среднегодовая величина повторяемости всплесков в Западной Сибири идентичны наблюдаемым в бореальных лесах на фоновых станциях Скандинавии [10]. При этом полученные нами данные о повторяемости НВ практически полностью совпадают с многолетними данными финской станции SMEAR II (Hyytiälä).

Высокая активность нуклеационных всплесков в весенний период наблюдается и в других физико-географических районах, например в сельских районах Центральной Европы [28], в урбанизированных районах [29–31] и сильно загрязненных областях Китая [32]. Однако для районов с высокой антропогенной нагрузкой характерна высокая повторяемость образования частиц *in situ* и в зимний период (более 20%).

Несмотря на повышенный интерес к данной проблеме, вопрос о природе самого механизма, приводящего к нуклеационным всплескам в бореальных лесах, все еще остается открытым. Тем не менее по-

лученные данные уже позволили спланировать и провести комплексный аэрозольный эксперимент во второй половине сентября 2013 г. в момент начала всплесков.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (гранты № 11-05-00516, 14-05-00590, 14-05-00526) и Сибирского отделения РАН (Междисциплинарный интеграционный проект № 35), программы Президиума РАН № 4, программы ОНЗ РАН № 5.

1. Seinfeld J.H., Pandis S.N. Atmospheric chemistry and physics from air pollution to climate change. Hoboken, New Jersey: John Wiley & Sons, Inc., 2006. 2nd ed. 1225 p.
2. Kulmala M., Suni T., Lehtinen K.E.J., Dal Maso M., Boy M., Reissell A., Rannik Ü., Aalto P., Keronen P., Hakola H., Bäck J., Hoffmann T., Vesala T., Hari P. A new feedback mechanism linking forests, aerosols, and climate // Atmos. Chem. Phys. 2004. V. 4, N 2. P. 557–562.
3. Kulmala M., Riipinen I., Kerminen V.-M. Aerosols and Climate Change, in From the Earth's Core to Outer Space / Ed. by I. Naapala // Springer Lecture notes in Earth Sci. 2012. V. 137. P. 219–226.
4. Смирнов В.В., Сальм Я.Й., Мякелä Ю.М., Паатеро Ю. О взрывном появлении сверхмалых аэрозольных частиц в атмосфере // Метеорол. и гидрол. 2005. № 4. С. 40–55.
5. Mäkelä J., Aalto J.M., Jokinen P., Pohja V., Nissinen T., Palmroth A., Markkanen S., Seitsonen T., Lihavainen K., Kulmala M. Observations of ultrafine particle formation and growth in boreal forest // Geophys. Res. Lett. 1997. V. 24, N 10. P. 1219–1222.
6. Kulmala M., Toivonen A., Mäkelä J.M., Laaksonen A. Analysis of the growth of nucleation mode particles observed in boreal forest // Tellus B. 1998. V. 50, N 5. P. 449–462.
7. Dal Maso M., Kulmala M., Riipinen I., Wagner R., Hussein T., Aalto P.P., Lehtinen K.E.J. Formation and growth of fresh atmospheric aerosols: eight years of aerosol size distribution data from SMEAR II, Hyytiälä, Finland // Boreal Environ. Res. 2005. V. 10, N 5. P. 323–336.
8. Wiedensohler A., Covert D.S., Swietlicki E., Aalto P., Heintzeberg J., Leck C. Occurrence of an ultrafine particle mode less than 20 nm in diameter in the marine boundary layer during Arctic summer and autumn // Tellus B. 1996. V. 48, N 2. P. 213–222.
9. Tunved P., Hansson H.-C., Kerminen V.-M., Strom J.M.D., Lihavainen H., Viisanen Y., Aalto P., Komppula M., Kulmala M. High natural aerosol loading over boreal forests // Science. 2006. V. 312, N 5771. P. 261–263.
10. Dal Maso M., Sogacheva L., Aalto P., Riipinen I., Komppula M., Tunved P., Korhonen L., Suuruskki V., Hirsikko A., Kurten T., Kerminen V., Lihavainen H., Viisanen Y., Hansson H., Kulmala M. Aerosol size distribution measurements at four Nordic field stations: identification, analysis and trajectories analysis of new particle formation bursts // Tellus B. 2007. V. 59, N 3. P. 350–361.
11. Vehkamäki H., Dal Maso M., Hussein T., Flanagan R., Hyvärinen A., Lauros J., Merikanto P., Mönkkönen M., Pihlatie K., Salminen K., Sogacheva L., Thum T., Ruuskanen T.M., Keronen P., Aalto P.P., Hari P., Lehtinen K.E.J., Rannik Ü., Kulmala M. Atmospheric particle formation events at Värriö measurement station in Finnish Lapland 1998–2002 // Atmos. Chem. Phys. 2004. V. 4, N 7. P. 2015–2023. DOI: 10.5194/acp-4-2015-2004.
12. Tunved P., Hansson H.-C., Kulmala M., Aalto P., Viisanen Y., Karlsson H., Kristensson A., Swietlicki E., Dal Maso M., Ström J., Komppula M. One year boundary layer aerosol size distribution data from five Nordic



- background stations // *Atmos. Chem. Phys.* 2003. V. 3, N 6. P. 2183–2205. DOI: 10.5194/acp-3-2183-2003.
13. Hamed A., Joutsensaari J., Mikkonen S., Sogacheva L., Dal Maso M., Kulmala M., Cavalli F., Fuzzi S., Facchini M.C., Decesari S., Mircea M., Lehtinen K.E.J., Laaksonen A. Nucleation and growth of new particles in Po Valley, Italy // *Atmos. Chem. Phys.* 2007. V. 7, N 2. P. 355–376. DOI: 10.5194/acp-7-355-2007.
  14. Загайнов В.А., Лушников А.А., Никитин О.Н., Кравченко Л.Е., Ходжер Т.В., Петрянов-Соколов И.В. Фоновый аэрозоль над Байкалом // Докл. РАН СССР. 1989. Т. 308, № 5. С. 1179–1087.
  15. Bashurova V.S., Dreiling V., Hodger T.V., Jaenicke R., Koutsenogii K.P., Koutsenogii P.K., Kraemer M., Makarov V.I., Obolkin V.A., Potjomkin V.L., Pusep A.Y. Measurements of atmospheric condensation nuclei size distributions in Siberia // *J. Aerosol Sci.* 1992. V. 23, N 2. P. 191–199.
  16. Куценогий П.К. Концентрация и спектр размеров атмосферных аэрозолей Сибири // Оптика атмосфер. и океана. 1994. Т. 7, № 8. С. 1055–1058.
  17. Koutsenogii P., Jaenicke R. Number concentration and size distribution of atmospheric aerosol in Siberia // *J. Aerosol Sci.* 1994. V. 25, N 2. P. 377–383.
  18. Аршинов М.Ю., Белан Б.Д. Суточный ход концентрации микродисперсной фракции аэрозоля // Оптика атмосфер. и океана. 2000. Т. 13, № 11. С. 983–990.
  19. 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.
  20. Аршинов М.Ю., Белан Б.Д., Симоненков Д.В. Фотохимическое образование микродисперсного аэрозоля в атмосфере континентального района // Оптика атмосфер. и океана. 2006. Т. 19, № 4. С. 328–339.
  21. Аршинов М.Ю., Белан Б.Д., Давыдов Д.К., Ивлев Г.А., Козлов А.В., Пестунов Д.А., Покровский Е.В., Толмачев Г.Н., Фофанов А.В. Посты для мониторинга парниковых и окисляющих атмосферу газов // Оптика атмосфер. и океана. 2007. Т. 20, № 1. С. 53–61.
  22. Reisch G.P., Majerowicz A., Ankilov A., Eremenko S., Mavliev R. Comparison of the Novosibirsk Automated Diffusion Battery with the Vienna Electro Mobility Spectrometer // *J. Aerosol Sci.* 1991. V. 22, N 2. P. 223–228.
  23. Ankilov A., Baklanov A., Colhoun M., Enderle K.H., Gras J., Julianov Y., Kaller D., Lindner A., Lushnikov A.A., Mavliev R., McGovern F., Mirme A., O'Connor T.C., Podzimek J., Preining O., Reischl G.P., Rudolf R., Sem G.J., Szymanski W.W., Tamm E., Vrtala A.E., Wagner P.E., Winklmayr W., Zagaynov V. Intercomparison of number concentration measurements by various aerosol particle counters // *Atmos. Res.* 2002. V. 62, N 3–4. P. 209–237.
  24. Eremenko S., Ankilov A. Conversion of the diffusion battery data to particle size distribution: Multiple Solutions Averaging algorithm (MSA) // *J. Aerosol Sci.* 1995. V. 26, suppl. 1. P. 749–750.
  25. Jaenicke R. Tropospheric aerosols // *Aerosol-Cloud-Climate Interactions* / Ed. by P.V. Hobbs. San Diego, CA: Academic Press, 1993. P. 1–31.
  26. Dal Maso M., Hari P., Kulmala M. Spring recovery of photosynthesis and atmospheric particle formation // *Boreal Environ. Res.* 2009. V. 14, N 4. P. 711–721.
  27. Hari P., Kolari P., Bäck J., Mäkelä A., Nikinmaa L. Photosynthesis // *Boreal forest and climate change, Advances in Global Change Research* / Eds. by P. Hari and L. Kulmala. Dordrecht, Netherlands: Springer, 2008. V. 34. P. 231–241.
  28. Birmili W., Berresheim H., Plass-Dülmer C., Elste T., Gilge S., Wiedensohler A., Uhrner U. The Hohenpeissenberg aerosol formation experiment (HAFEX): A long-term study including size-resolved aerosol, H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, OH, and monoterpenes measurements // *Atmos. Chem. Phys.* 2003. V. 3, N 2. P. 361–376. DOI: 10.5194/acp-3-361-2003.
  29. Stanier C.O., Khlystov A.Y., Pandis S.N. Nucleation Events During the Pittsburgh Air Quality Study: Description and Relation to Key Meteorological, Gas Phase, and Aerosol Parameters // *Aerosol Sci. Technol.* 2004. V. 38, suppl. 1. P. 253–264.
  30. Stanier C.O., Khlystov A.Y., Pandis S.N. Ambient aerosol size distributions and number concentrations measured during the Pittsburgh Air Quality Study (PAQS) // *Atmos. Environ.* 2004. V. 38, N 20. P. 3275–3284.
  31. Watson G.J., Chow C.J., Park K., Lowenthal H.D. Nanoparticle and Ultrafine Particles Events at the Fresno Supersite // *J. Air Waste Manage. Assoc.* 2006. V. 56, N 4. P. 417–430.
  32. Wu Z., Hu M., Liu S., Wehmer B., Bauer S., Wiedensohler A., Petäjä T., Dal Maso M., Kulmala M. New particle formation in Beijing, China: Statistical analysis of a 1-year data set // *J. Geophys. Res.* 2007. V. 112, D09209. DOI: 10.1029/2006JD007406.

M.Yu. Arshinov, B.D. Belan, D.K. Davydov, G.A. Ivlev, A.V. Kozlov, A.S. Kozlov, S.B. Malyshekin, D.V. Simonenkov, P.N. Antokhin. **Nucleation bursts in the atmosphere over boreal zone in West Siberia. Part I. Classification and frequency.**

We present a classification and a frequency of the new particle formation (NPF) bursts observed in the atmosphere over boreal zone of West Siberia, which are based on the data of continuous in situ measurements of the aerosol size distribution carried out in a wide range at two stations for atmospheric composition monitoring IAO SB RAS owned. Analysis of the data obtained from 2010 to 2013 showed that NPF bursts happen during 20–30% days analyzed. The most part of the NPF events are observed in spring (from March to May), and a secondary maximum is typical for September. Seasonal pattern and annual mean NPF frequency observed in West Siberia are similar to ones observed in boreal forests at background stations of Scandinavia, at that our data are in close agreement with long-term observations of SMEAR II station (Hyttälä).

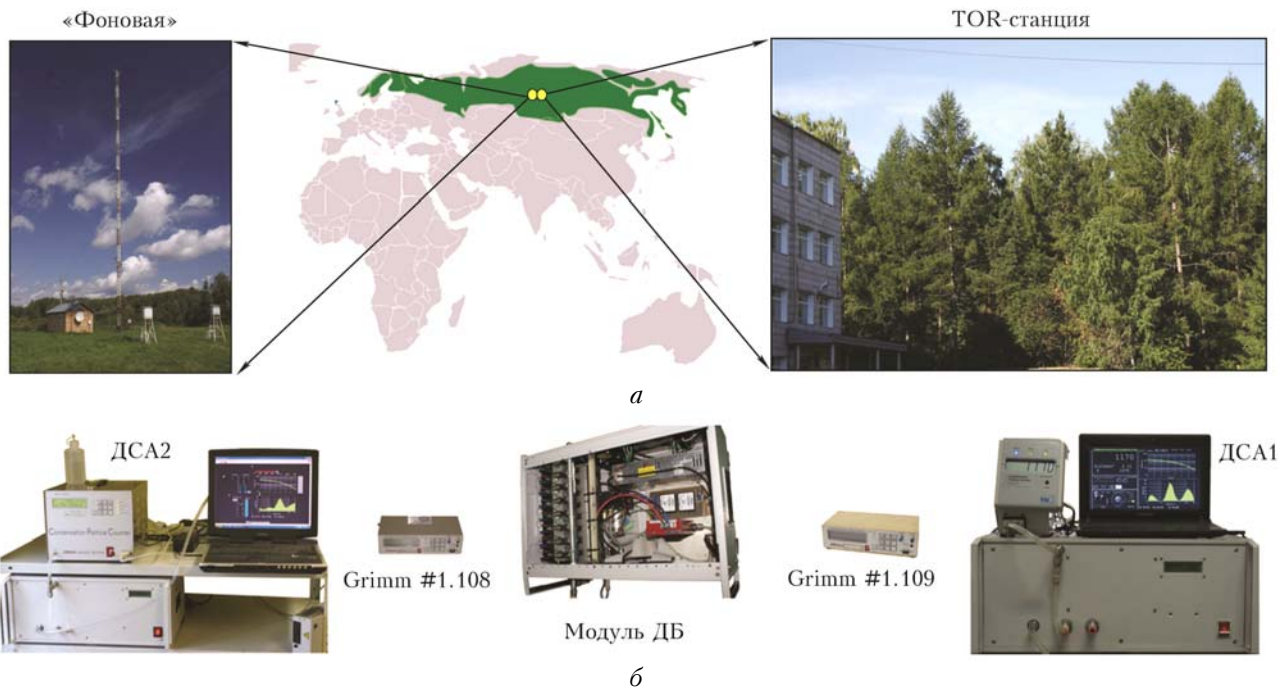


Рис. 1. Схема расположения станций (а) и внешний вид аэрозольных приборов (б). Зеленым цветом на карте обозначена зона бореальных лесов

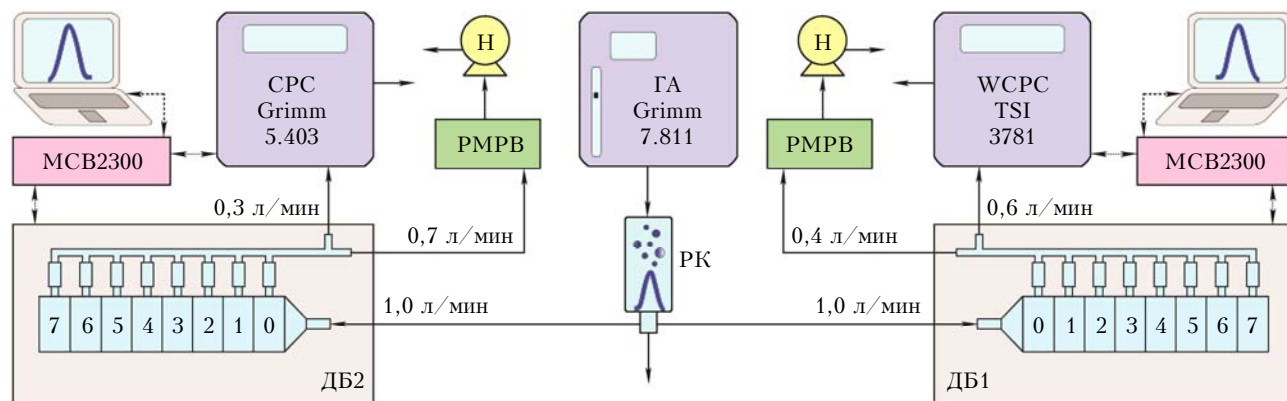


Рис. 2. Схема установки для проведения калибровки: ДБ – диффузионные батареи; (W)CPC – конденсационные счетчики; PMPB – регулятор массового расхода воздуха; ГА – генератор аэрозоля; РК – расширительная камера; MCB2300 – ARM-контроллер

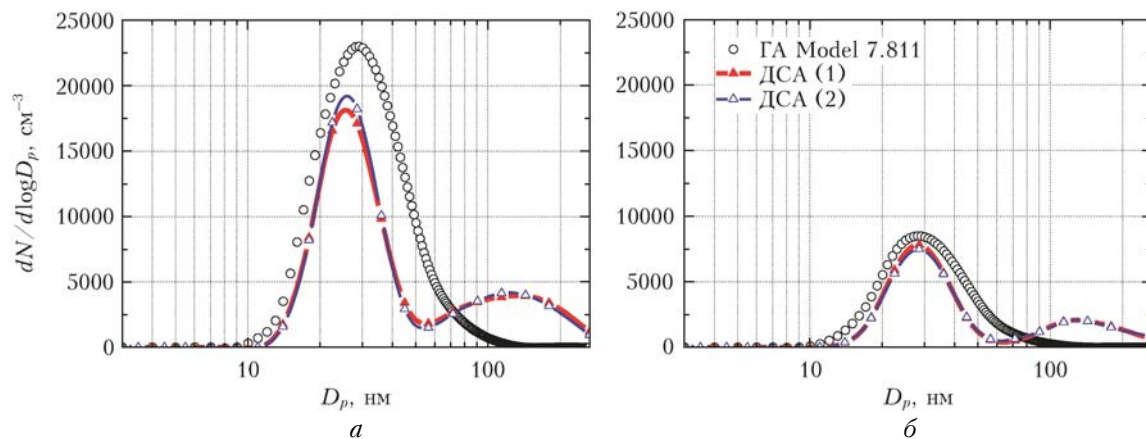


Рис. 3. Счетные распределения тестовых аэрозольных частиц (NaCl). Концентрация генерируемых частиц 100 000 (а), 40 000  $\text{см}^{-3}$  (б)

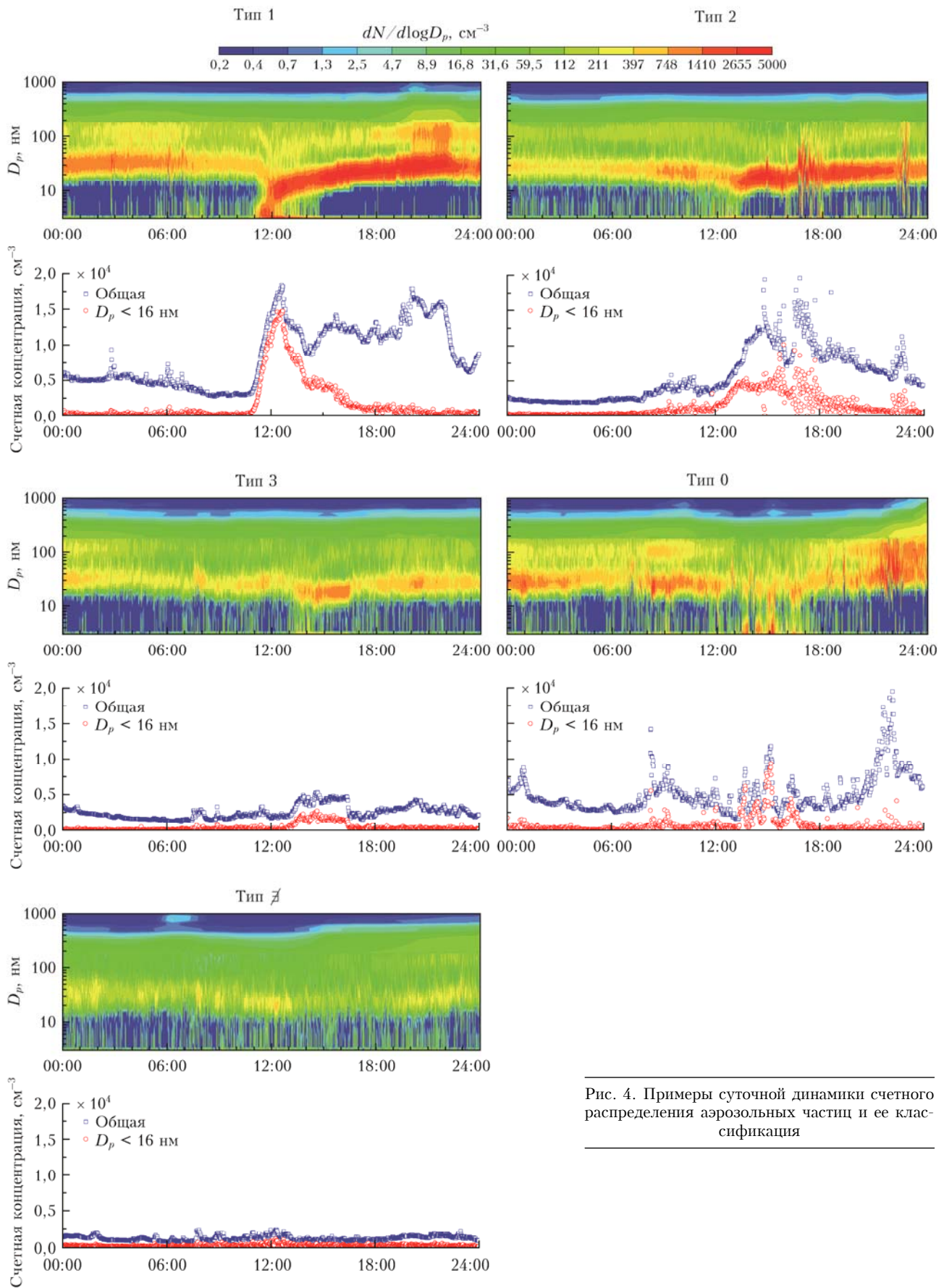
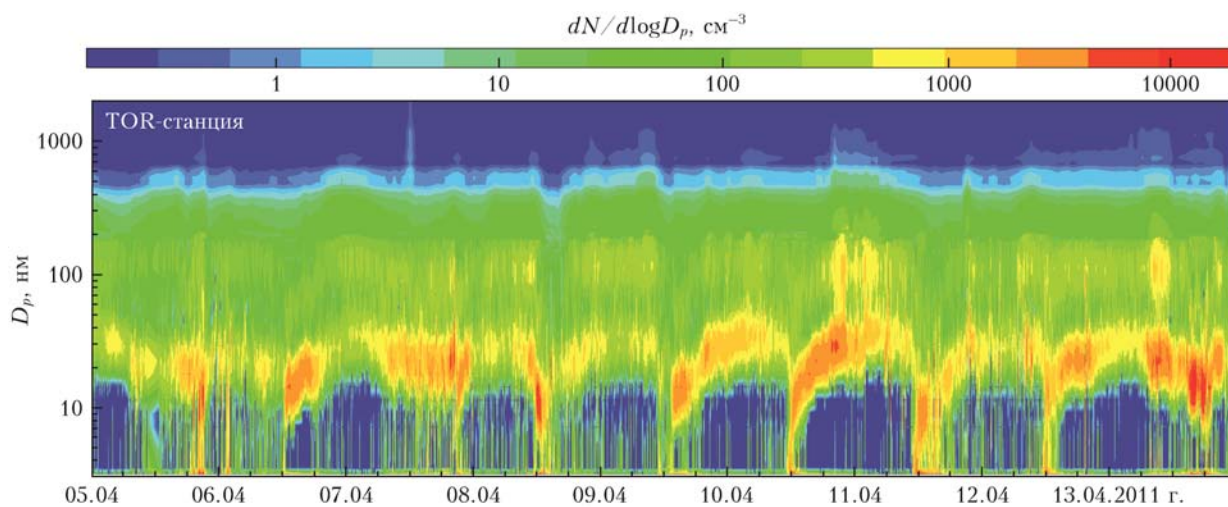
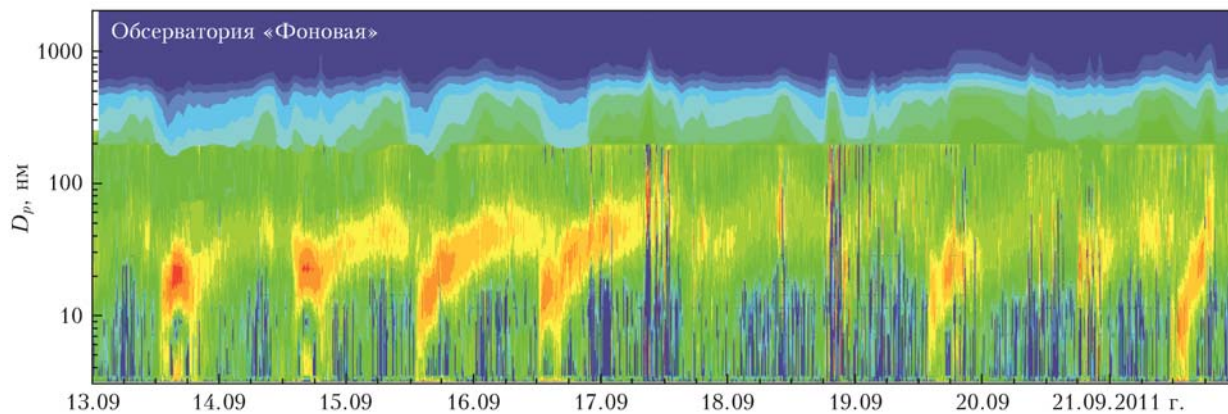


Рис. 4. Примеры суточной динамики счетного распределения аэрозольных частиц и ее классификация



а



б

Рис. 6. Пример серии НВ, наблюдавшихся в апреле и сентябре 2011 г. в районе TOR-станции (а) и обсерватории «Фоновая» (б)

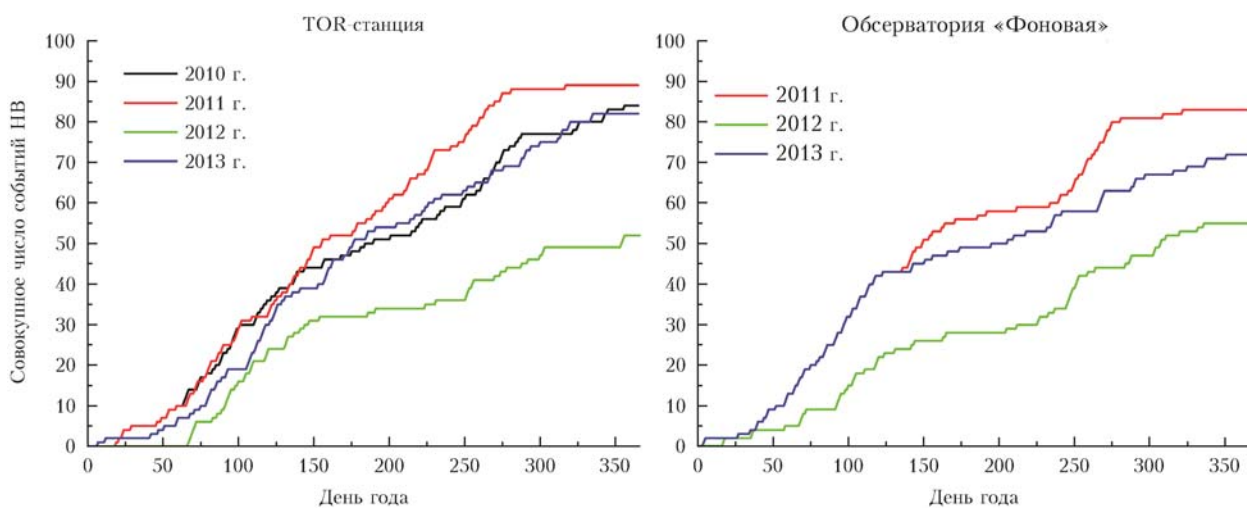


Рис. 7. Накопленное от начала года число событий НВ, наблюдавшихся на TOR-станции и в районе обсерватории «Фоновая» в разные годы