

CZESŁAW GARBALEWSKI

Instytut Hydrologii i Gospodarki Wodnej, Gdynia

O WPLYWIE PROCESÓW WSPÓŁDZIAŁYWANIA ATMOSFERY I MORZA NA DYFUZJĘ I USUWANIE AEROZOLU W WARSTWIE PRZYWODNEJ

Treść: Wstęp 113; Metoda pomiarów 114; Założenia teoretyczne 114; Wyniki i ich dyskusja: 1. Krótkookresowe fluktuacje stężenia jąder 117, 2. Rozkład liczby jąder 119, Wnioski końcowe 121, Literatura 131.

Wstęp

Badania wpływu parametrów współdziałania atmosfery i morza na procesy przenoszenia aerozolu zostały podjęte w związku z problemem dotyczącym zanieczyszczenia Bałtyku. Przeprowadzone dotychczas prace (Garbalewski 1972; Garbalewski, Juśkiewicz 1972) wykazały możliwość potraktowania w tych badaniach w roli wskaźników, prócz naturalnych izotopów promieniotwórczych, również jądra soli morskiej. Zwrócono uwagę na wpływ parametrów współdziałania obu środowisk na wahanie koncentracji jąder soli w warstwie przywodnej atmosfery oraz na możliwość wykorzystania jąder dla oszacowania parametru szorstkości sfalowanej powierzchni morza (Garbalewski 1972).

Niniejsza praca poświęcona jest badaniu związku między fizycznymi charakterystykami różnych zbiorów jąder soli a kształtującym je złożonym mechanizmem współdziałania dolnej części warstwy granicznej atmosfery z powierzchnią warstwą morza. Ostatecznym jej wynikiem jest określenie czasu przebywania aerozoli nad powierzchnią morza jako charakterystyki związanej z intensywnością procesów dyfuzji turbulencyjnej i wymiany pionowej mas.

METODA POMIARÓW

Badania realizowano, dokonując pomiarów na morzu. Materiał pomiarowy został zebrany na Bałtyku podczas rejsów naukowo-badawczych w latach 1970—1972 statków „Birkut”, „Hydromet” i „Kopernik”. Jądra soli zbierano na powleczone cienką (0,03—0,05 μm) warstwą wazeliny szklane płytki (około 2,5 cm \times 7,5 cm), eksponując je w impaktorze inercyjnym pod skierowanym prostopadle ku powierzchni zbierającej strumieniem powietrza. Każdą próbkę pobierano z objętości 10—12 m³ powietrza na ~ 100 mm² powierzchni płytki przy współczynniku efektywności wychwytu $\eta = 2 \cdot 10^{-4}$ cm⁻². Pomiary cząstek soli morskiej prowadzono za pomocą mikroskopu optycznego, stosując tysiąckrotne powiększenie. Dotyczą one cząstek o promieniu $r \geq 10^{-4}$ cm. Na pole widzenia mikroskopu przypadało od 0 do kilkunastu kryształków soli. Ponadto dokonano kilku serii pomiarów ekstynkcji zebranego na płytkach osadu. Pomiary ekstynkcji przeprowadzono za pomocą fotometru Pulfricha z przystawką fotoelektryczną Elpho (Zeiss). Do pomiarów użyto filtru S-53.

ZAŁOŻENIA TEORETYCZNE

Można założyć, że o szybkości zmiany koncentracji cząstek w czasie w niekoagulacyjnym stadium ewolucji zbioru decyduje głównie różnica intensywności procesów „imigracji” i „emigracji” jąder; przy czym pierwszy proces uwarunkowany jest wydajnością źródła i dyfuzyjnym rozprzestrzenianiem aerozolu, drugi zaś tylko procesami samooczyszczania. Jeżeli q — stężenie aerozolu — jest jednorodne w kierunku osi poziomych, to na podstawie równania dyfuzji turbulencyjnej można napisać:

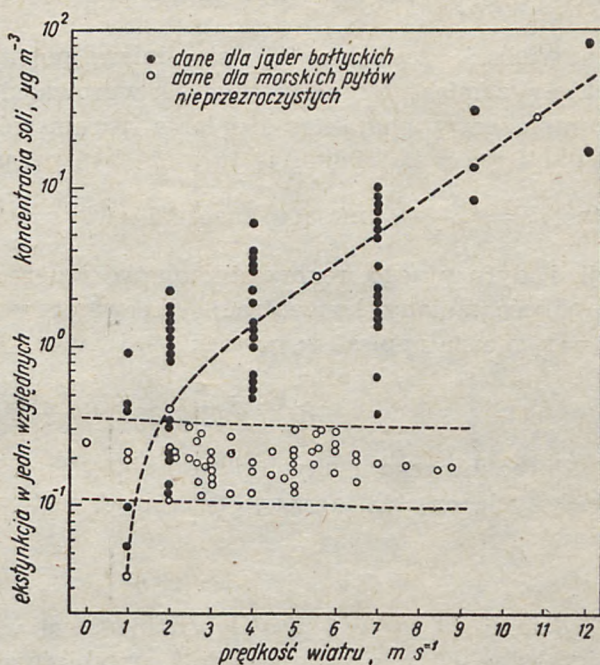
$$\frac{\partial q}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} D(t) \frac{\partial q}{\partial z} - \Lambda q, \quad (1)$$

gdzie: D — współczynnik dyfuzji, Λ — stała samooczyszczania.

Pierwszy wyraz prawej strony równania oznacza proces przenoszenia aerozolu na dany poziom przez dyfuzyjne rozprzestrzenianie, drugi zaś — szybkość jego usuwania. O wydajności źródła może tu świadczyć gradient koncentracji $\frac{\partial q}{\partial z}$, przy czym dla jąder soli jego wielkość powinna zależeć od czynnika wiatrowego i zasolenia akwenu.

W przypadku cząstek soli morskiej parametry dyfuzji i przenosze-

nia aerozolu w atmosferze, związane z prędkością wiatru, decydują jednocześnie o produkcji jąder podczas falowania wiatrowego. Dowodzi tego ryc. 1, na której przedstawiono wyniki pomiarów (dla stałej wysokości $z \sim 6$ m) koncentracji jąder soli otrzymane w warunkach wy-



Ryc. 1. Koncentracja cząstek soli morskiej i pyłu (na podstawie pomiarów ekstynkcji) w warstwie przywodnej atmosfery na Morzu Bałtyckim w funkcji prędkości wiatru
Fig. 1. Concentration of sea-salt particles and dust (from the measurements of extinction) in the near-water atmospheric layer over the Baltic, versus wind velocity

łącznie lokalnej cyrkulacji powietrza nad Bałtykiem, tj. przy braku adwekcji mas powietrznych. Punkty dla wartości zmierzonych układają się wzdłuż krzywej obliczonej według zależności (Garbalewski 1972):

$$q = \alpha \frac{S_m z_0 u_*^2}{\sqrt{2\pi\nu} (w+u)} + \delta, \quad z = \text{const}, \quad (2)$$

Gdzie: S_m — zasolenie akwenu w g/cm^3 , z_0 — parametr szorstkości, u_* — prędkość tarcia, ν — kinematyczny współczynnik lepkości wody, w — prędkość wiatru, u — prędkość wypadania cząstek, δ — część produkcji uwarunkowana dyfuzją z powierzchni morza i koagulacją cząstek w powietrzu z kropelkami, α — współczynnik rzędu 10^{-9} .

Krzywą obliczono, zaniedbując nieznaczny stosunkowo udział wielkości w i δ . Na tle uzyskanej zależności dla jąder soli wyraźnie kontrastuje jej brak czy raczej tendencja antykorelacji, na jaką wskazują wyniki pomiarów ekstynkcji. Dotyczą one głównie nieprzezroczystych cząstek aerozolu, a zatem nie kryształków soli morskiej. Są to przeważnie

cząstki pyłów przynoszonych znad lądu. Parametry współoddziaływania atmosfery i morza mogą odgrywać w tym przypadku tylko rolę czynników powodujących dyfuzję cząstek i ich usuwanie na powierzchnię wody, podczas gdy dla jąder soli stanowią one jednocześnie mechanizm produkujący cząstki. Toteż zamieniając w równaniu (1) gradient $\frac{\partial q}{\partial z}$

na wielkość zasolenia S_m jako miarę potencjalnej wydajności źródła, należy zamiast współczynnika D wprowadzić wielkość uwzględniającą kompleksowy charakter działania parametrów produkcji i dyfuzji w funkcji czasu t . Wielkością tą może być parametr bezwymiarowy w postaci $\xi = \frac{\alpha z_0 u^2}{uv}$ mający znaczenie wiatrowego współczynnika produk-

cji i dyfuzyjnego rozprzestrzeniania jąder soli. Wyrażenie zatem na prędkość zmiany koncentracji dla warstwy przywodnej na wysokości $z = z_1$ można napisać w postaci:

$$\frac{\partial q}{\partial t} = S_m \frac{\partial \xi}{\partial t} - \Lambda q, \quad z = \text{const.} \quad (3)$$

Z prac Jungego i innych autorów [1, 2, 4, 9] wiadomo, że w zakresie większych cząstek aerozolu znajduje zastosowanie znane prawo rozkładu:

$$n(r) \sim K r^{-\kappa}, \quad (4)$$

gdzie: n — gęstość prawdopodobieństwa w funkcji r , K — parametr niezależny od r , κ — wykładnik przybierający w przybliżeniu wartość 4 dla przyziemnej warstwy atmosfery i około 5 dla górnej troposfery (Junge 1963).

Powszechnie utrzymuje się więc, że wielkość κ jest związana z czynnikami kształtującymi aerozole. Jednakże rozkład tego typu znany jest w statystyce jako funkcja gęstości Pareta pierwszego stopnia i wiele różnych procesów czysto stochastycznych podlega temu prawu. Tym niemniej Brock (1971), podkreślając wprawdzie hipotetyczny dotąd charakter założeń dotyczących związku rozkładu wielkości cząstek z fizycznymi procesami ewolucji zbioru, dowodzi teoretycznie fizycznego znaczenia wykładnika κ dla aerozolu.

Można założyć, że w przypadku cząstek soli morskiej gęstość prawdopodobieństwa $n(r)$ dotyczy głównie zbioru w zakresie wielkości cząstek ($r \geq 10^{-4}$ cm) już nie objętych procesem koagulacji. Jedynie w stadium ewolucji kropelek macierzystych mogą wpływać na wielkość przyszłych jąder soli procesy koalescencji, chociaż udział tych procesów nie jest dotychczas wyjaśniony. Można przypuszczać, że dalsza ewolucja już w fazie skryształizowanej osiąga warunki równowagi termodynamicznej mię-

dzy procesami przyłączania i wyrywania cząsteczek (molekuł) przez ruchy termiczne. Etap więc rozwoju zbioru drogą ewentualnej kondensacji jonów może mieć już tylko znikomy wpływ na dalszy wzrost liczby i wielkości kryształków soli. Toteż jeżeli opisując proces weźmiemy jako podstawę równanie Kołmogorova (1949) dla wzrostu gęstości prawdopodobieństwa układu dyspersyjnego, to w tym przypadku można ograniczyć się do funkcji prędkości zmiany gęstości wywołanej jedynie procesami „imigracji” cząstek ze źródła początkowego i ich „emigracji”. Funkcja zatem będzie miała postać:

$$R = \sum_i r_i f_i(x, t) \sim \sigma n(x, t). \quad (5)$$

Pierwszy wyraz prawej części równania oznacza napływ cząstek ze źródła i o gęstości f_i i o wydajności określonej przez współczynnik r_i . Drugi wskazuje na szybkość odpływu cząstek, gdy miarą okresu ich przebywania w zbiorze jest stała σ^{-1} . Ogólne rozwiązanie układu równań związanych z wyrażeniem (5) dla długiego czasu t prowadzi do uzyskania asymptotycznej gęstości Pareta w postaci:

$$n(x, t) \sim A(t) x^{-(1+\sigma/\beta)} \quad (6)$$

Zatem dla aerozolu atmosferycznego można przyjąć $x \sim (1 + \sigma/\beta)$, przy czym gdy $x = 4\pi r^2$ stosunek σ/β , współczynników „emigracji” do „imigracji”, waha się wokół jedności. Podstawiając do równania (6) odpowiednie wartości z wyrażenia (3) można też napisać:

$$n(r, t) = A(t) r^{-2} \left(1 + \frac{\Delta q}{s_m \partial \xi / \partial t} \right). \quad (7)$$

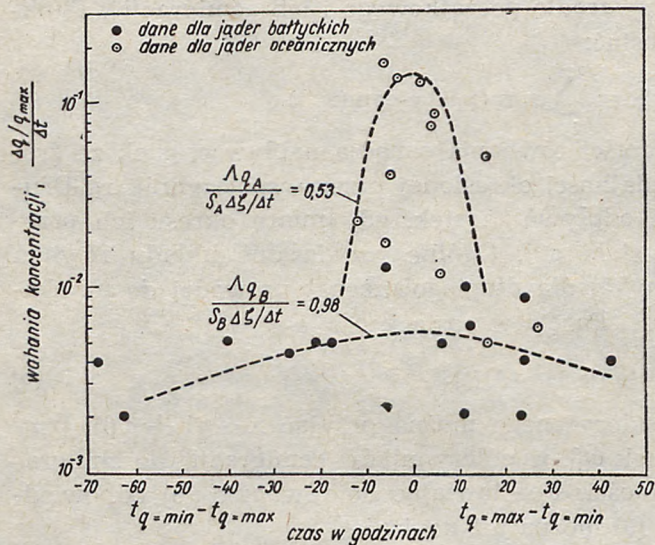
WYNIKI I ICH DYSKUSJA

1. KRÓTKOOKRESOWE FLUKTUACJE STĘŻENIA JĄDER

Analiza materiału z ponad stu pomiarów, dokonanych w warunkach „suchej” pogody w różnych porach roku oraz na przestrzeni prawie całego Bałtyku (bez Zatoki Botnickiej) na ogół potwierdza powyższe założenia teoretyczne. Występowanie krótkookresowych fluktuacji stężeń cząstek soli morskiej, z wyłączeniem wpływu czynnika adwekcyjnego, zaznacza się zarówno w warunkach cyrkulacji lokalnej, jak i powietrza oceanicznego nad Bałtykiem. Przy tym, jak to widać na ryc. 2, prędkość zmiany koncentracji w funkcji czasu przy przejściu od wartości minimalnych do maksymalnych lub odwrotnie różni się dla obu rodzajów

cyrkulacji w sposób uderzający. Zmiana wielkości $\Delta q/\Delta t$ w funkcji czasu t występuje dla jąder bałtyckich w postaci znacznie dłuższej fali o małej amplitudzie wahań, podczas gdy dla jąder oceanicznych amplituda wahań $\Delta q/\Delta t$ jest duża.

Na podstawie danych uwidoczonych na ryc. 2 można przyjąć, że realny wzrost lub spadek koncentracji jąder soli wynosi średnio około



Ryc. 2. Przebieg prędkości zmiany koncentracji jąder soli w warunkach cyrkulacji lokalnej na Morzu Bałtyckim oraz powietrza przynieszonego z Oceanu Atlantyckiego

Fig. 2. The rate of change in sea-salt nuclei concentration in the local air circulation conditions over the Baltic and the air masses from over the Atlantic respectively

$\pm 650 \text{ ng/m}^3 \text{ godz.}$ w warunkach zalegania nad Bałtykiem mas powietrznych przynieszonych z Atlantyku i około $\pm 4 \text{ ng/m}^3 \text{ godz.}$ przy cyrkulacji lokalnej powietrza w rejonie akwenu. Korzystając z wstępnych oszacowań (Garbalewski 1972) można też przyjąć, że Λ nad powierzchnią morza ma wartość w przybliżeniu równą $1 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$. Na podstawie więc zmierzonych wartości stężeń jąder soli $q_A = 0,02 \text{ ng/cm}^3$ i $q_B = 0,005 \text{ ng/cm}^3$, gdy zasolenie $S_A = 35 \cdot 10^{-3} \text{ g/cm}^3$ i $S_B = 7,5 \cdot 10^{-3} \text{ g/cm}^3$ (wskaźnik A i B odnosi się odpowiednio do wartości dla Oceanu Atlantyckiego i dla Morza Bałtyckiego), można dla przytoczonych wyżej realnych prędkości zmian koncentracji jąder otrzymać:

$$S_A \Delta \xi / \Delta t = 3,8 \cdot 10^{-16} \text{ g/cm}^3 \text{ s},$$

$$S_B \Delta \xi / \Delta t = 0,511 \cdot 10^{-16} \text{ g/cm}^3 \text{ s}.$$

Obliczając na podstawie tych samych danych stosunek wyrazów prawej części równania (3) można też otrzymać:

$$\frac{\Lambda q_A}{S_A \Delta \xi / \Delta t} = 0,53 \text{ dla Oceanu Atlantyckiego}$$

oraz

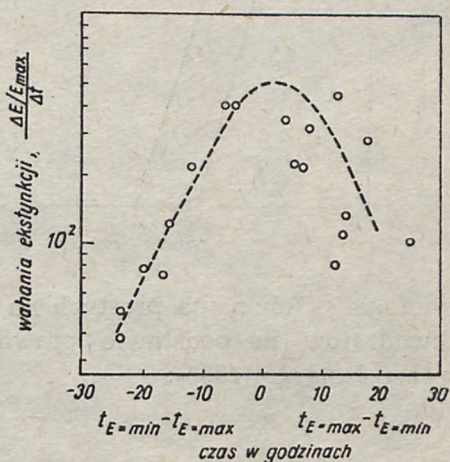
$$\frac{\Delta q_B}{S_B \Delta \xi / \Delta t} = 0,98 \text{ dla Morza Bałtyckiego,}$$

a stąd odpowiednio wartości $\kappa_A = 3,06$ i $\kappa_B = 3,96$.

Uzyskane w ten sposób dwie różne wartości wykładnika κ związane są z niejednakową wydajnością obu źródeł oraz z mechanizmem dyfuzyjnego rozprzestrzeniania cząstek oceanicznych i bałtyckich. W związku z tym interesujące jest porównanie wahania wielkości $\Delta q / \Delta t$ otrzymanego na ryc. 3 dla nieprzezroczystej składowej aerozolu na Bałtyku.

Ryc. 3. Przebieg prędkości zmiany koncentracji pyłu nad powierzchnią Morza Bałtyckiego w warunkach przenoszenia powietrza z nad lądu oraz cyrkulacji lokalnej

Fig. 3. The rate of change in the dust concentration above the Baltic water surface, for continental air masses or local circulation conditions

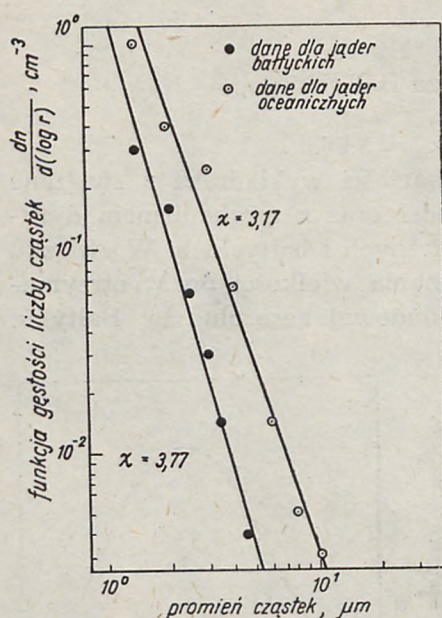


Jest to wahanie stężenia pyłów przynoszonych z nad lądu. Tym niemniej przypomina ono wahanie charakterystyczne dla jąder oceanicznych.

Podobieństwo wahań może wskazywać, że w przypadku adwekcji mechanizm rozprzestrzeniania aerozolu — cząstek pyłu z nad lądu, jak i jąder soli z nad oceanu przy pionowym gradiencie stężenia dodatnim i wypadkowej rozprzestrzeniania się skierowanej ku powierzchni morza — jest ten sam.

2. ROZKŁAD LICZBY JĄDER

Fizyczne znaczenie wykładnika κ potwierdziły też wyniki analizy składu dyspersyjnego w zakresie cząstek o promieniu $r \geq 10^{-4}$ cm. Badania wykazały mianowicie, że nad Bałtykiem występują jądra soli o dwóch różnych typach rozkładu ich wielkości (ryc. 4). Wyniki otrzymano, analizując oddzielnie dane dotyczące warunków cyrkulacji lokalnej i adwekcji oceanicznej (odpowiednio 1170 i 2790 zmierzonych jąder soli



Ryc. 4. Rozkład liczby cząstek soli morskiej pochodzenia lokalnego i oceanicznego na Morzu Bałtyckim

Fig. 4. Size distribution of sea-salt particles above the Baltic, of local and oceanic origins respectively

morskiej). Równania prostych na ryc. 4 obliczono metodą najmniejszych kwadratów na podstawie prawa rozkładu w postaci zaproponowanej przez Jungego (1955):

$$\frac{dn}{d(\log r)} = Kr^{-\alpha}. \quad (8)$$

Otrzymano w ten sposób dwa równania:

$$n = 4,57 r^{-3,17} \text{ dla jąder oceanicznych,}$$

$$n = 1,54 r^{-3,77} \text{ dla jąder bałtyckich.}$$

Wartości zatem wykładnika α (3,17 i 3,77), otrzymane z analizy rozkładu wielkości jąder, są podobne do wartości α (3,06 i 3,96) uzyskanych na podstawie badania fluktuacji $\partial q / \partial t$. Biorąc pod uwagę zasadniczą różnicę obu metod można stwierdzić, iż zgodność wyników jest na ogół bardzo dobra. W ten sposób uzyskano interesujące potwierdzenie fizycznego znaczenia wykładnika α . Na danym etapie badań trudno byłoby cokolwiek powiedzieć o przyczynie stosunkowo niedużego odchylenia wartości α uzyskanej przy zastosowaniu tych dwóch różnych metod. Dla jąder oceanicznych jest ono dodatnie (0,11), dla jąder bałtyckich zaś ujemne (−0,19) w stosunku do wielkości α uzyskanych na podstawie analizy rozkładu. Wielkość odchylenia, chociaż o przeciwnym znaku, związana jest najprawdopodobniej tylko z niejednakowymi granicami rozrzutu analizowanych danych oraz z mniejszą dokładnością na danym etapie badań metody opartej na podstawie wahań $\partial q / \partial t$.

Wielkość współczynnika samooczyszczania Λ określona na podstawie danych uzyskanych z analizy rozkładu wynosi odpowiednio:

$$\Lambda = \frac{S_A \frac{\Delta \xi}{\Delta t}}{q_A} = 1,12 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1} \text{ dla adwekcji oceanicznej,}$$

$$\Lambda = \frac{S_B \frac{\Delta \xi}{\Delta t}}{q_B} = 0,91 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1} \text{ dla cyrkulacji lokalnej.}$$

WNIOSKI KOŃCOWE

Obliczone w opisany sposób wartości Λ są nieco mniejsze od wielkości tego parametru ($\Lambda = 1,4 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$) otrzymanej w pierwszym etapie takich badań na Bałtyku (Garbalewski 1972). Wcześniejszego oszacowania dokonano jednak tylko na podstawie analizy wahań koncentracji jąder. W niniejszej pracy w przybliżeniu identyczne wyniki uzyskano, stosując dwie różne metody.

Toteż w zasadzie z lepszym przybliżeniem definiują one wielkość stałej samooczyszczania $\Lambda = (0,9-1,1) \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ uzyskanej dla przywodnej warstwy atmosfery nad powierzchnią morza w warunkach bez mgły i opadów. Odpowiednio do Λ średni czas przebywania cząstek aerozolu morskiego w powietrzu nad wodą jest $\tau = 31$ godz. w cyrkulacji lokalnej nad Bałtykiem oraz $\tau = 25$ godz. w warunkach powietrza przynoszonoego znad oceanu.

Nieco wyższa wartość Λ i odpowiednio krótszy czas τ , otrzymane dla warunków oceanicznej cyrkulacji mas powietrznych nad Bałtykiem, nie przeczą możliwości występowania bardziej intensywnych procesów samooczyszczania atmosfery od aerozolu, towarzyszących adwekcji powietrza znad Atlantyku. Wartości jednak Λ i τ mogą też być związane z intensywnością tych procesów na samym oceanie. Uzyskany w niniejszym badaniu czas przebywania aerozolu nad powierzchnią morza dotyczy cząstek, których masa jest średnio rzędu 10^{-10} g. Należy nadmienić, że dotychczasowe oszacowania Erikssona (1957) na podstawie produkcji ($\tau = 0,6$ dnia) oraz sedymentacji ($\tau = 2,6$ dnia), jak również Jungego ($\tau = 1,0$ dzień) (Junge 1972) dla tych wielkości cząstek, zgodnie oszacowując przedział wielkości τ , na ogół nie są sprzeczne z danymi niniejszej pracy.

Za udostępnienie fotometru Pulfricha i pomoc przy dokonywaniu pomiarów ekstynkcji autor wyraża podziękowanie kierownikowi Pracowni Chemii Wody Morskiej Oddziału Morskiego IMGW dr inż. Annie Trzosińskiej.

Literatura na s. 131.

CZESŁAW GARBALEWSKI

Maritime Department of the Institute for Meteorology
and Water Economy — Gdynia, Poland

ON THE EFFECT OF AIR-SEA INTERACTION ON THE DIFFUSION AND REMOVAL OF AIRBORNE PARTICULATE MATTER

Contents: Introduction 123, Measurement method 124, Theoretical assumptions 124, Results and their discussion 127. 1. Short-term fluctuations of nuclei concentration 127, 2. Nuclei size distribution 129; Conclusion 130, References 131.

Introduction

Investigations into the effect the various parameters of the air-sea interaction have on the transfer processes of marine aerosols were undertaken in conjunction with the problem regarding the pollution of the Baltic. The studies carried out so far (Garbalewski 1972; Garbalewski, Juśkiewicz 1972) were indicative of the possible eventuality also of using the sea-salt nuclei as tracers in these researches, next to the natural radioactive isotopes. Attention was paid to the influence of the parameters of interaction the two environments mutually exert on each other, on the fluctuations in the concentration level of the sea-salt nuclei in the near-water atmospheric layer and on the possibility of using these nuclei for the assessment of the roughness parameter of the undulated sea surface (Garbalewski 1972).

The present study has been devoted to investigating the relationship existing between the physical characteristics of the various populations of the sea-salt nuclei and their formative complex mechanism of inte-

reaction between the lower air boundary layer and the surface layer of the sea. Its ultimate conclusion is the estimation of the residence time of the marine aerosols above the sea surface, in terms of its dependence on the intensity of eddy diffusion processes and vertical mass exchange.

MEASUREMENT METHOD

Researches were organized by carrying out measurements at sea. The measurement data were collected in the Baltic, during the exploration cruises of the *Birkut*, *Hydromet* and *Kopernik*, in the 1970—1972 period. Sea-salt nuclei were collected on slides (about 2.5 by 7.5 cm each), previously coated by a thin layer of vaseline (0.03—0.05 μm thick) and exposed in an inertia impactor to the action of an air stream directed perpendicularly to the collecting surface (Garbalewski 1972). Every sample was taken from an air volume of 10 to 12 cu. m. on a microscopic slide area of about 100 sq. mm, at the capture effectivity coefficient $\eta = 2.10^{-4} \text{ cm}^{-2}$. Sea-salt particles were measured using an optical microscope with a magnification of 1000 times. Measurements referred to particles of $r \geq 10^{-4}$ cm radius. Zero to less than a score of salt crystals were found in the field of view. Additionally several measurement series were run to assess light extinction in the layer of aerosol particles collected on micro slides. To achieve this, extinction was measured using the Pulfrich photometer with an Elpho (Zeiss) photoelectric attachment. S-53 filter was used.

THEORETICAL ASSUMPTIONS

One can assume that it is predominantly the difference in intensity of the nuclei „immigration” and „emigration” processes that will decide on the rate of change of particle concentration in time, t , at the non-coagulative stage of evolution of the aerosol population. In this respect the former process will depend on the source productivity and the diffusive dispersion of aerosols, the latter depending mainly on the self-cleaning processes only. If q — being the aerosol concentration — is uniform in the horizontal axis direction, then the deduced form of the equation of turbulent diffusion will take the form:

$$\frac{\partial q}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} D(t) \frac{\partial q}{\partial z} - \Lambda q, \quad (1)$$

where D — diffusion coefficient, Λ — self-cleaning constant. The first expression constituting the right side of the equation denotes the aerosol transference process to certain level, by its diffusive spreading, the second member standing for its rate of removal. The source productivity

is described by the concentration gradient, $\frac{\partial q}{\partial z}$, whereby its value for the sea-salt nuclei should depend on the wind factor and salinity of the water area in question.

In the case of sea-salt nuclei the parameters of diffusion and the airborne transfer of aerosols in the atmosphere related to the wind velocity, will, at the same time, determine the production rate of nuclei during the undulation of wind-origin waves. This is proved by Fig. 1, which presents the measurement results in the near-water atmospheric layer (at $z \sim 6$ m), concerning to the concentration of sea-salt nuclei recorded under the only local circulation of air above the Baltic, viz. when there was no advection of air masses present. The points for the measured values are arrayed lengthwise along the calculated curve, following the relation (Garbalewski 1972):

$$q = \alpha \frac{S_m z_0 u_*^2}{\sqrt{2\pi\nu} (w + u)} + \delta, \quad z = \text{const}, \quad (2)$$

where S_m — water salinity, in g/cu.cm, z_0 — roughness parameter, u_* — frictional velocity, ν — kinematic coefficient of air viscosity, w — particles gravitational fallout speed, δ — part of aerosol production influenced by molecular diffusion from the sea surface and coagulation of particles with the droplets in air, α — coefficient, of an order of 10^{-9} .

The curve in Fig. 1 (page 115) was calculated while neglecting the comparatively insignificant input of values for w and δ . Against the dependency obtained for the sea-salt nuclei there is the spectacular absence of it, or rather the anticorrelation tendency visible in the results of the measurements of extinction. They refer in the main, to the non-transparent aerosol particles, meaning the particulate matter other than the sea-salt nuclei. They comprise, predominantly, airborne dust from over the land areas. The parameters of air-sea interaction in this instance can merely play the role of the factors responsible for the diffusion of particles and their removal onto the water surface, where, as with the sea-salt nuclei, they simultaneously constitute the mechanism that produces the airborne particulate matter. If we therefore substitute salinity

value, S_m , for $\frac{\partial q}{\partial x}$ gradient in equation (1), as the measure of the potential source productivity, some value encompassing the complex character of the parameters of production and diffusion versus time, t , should also be introduced to replace coefficient D . Such value will be found, e.g., in the dimensionless parameter in its form of $\xi = \frac{\alpha z_0 u_*^2}{u v}$, standing for the wind coefficient of production and diffusive spreading of the sea-salt nuclei. Hence the formula to denote the rate of concentration change for the near-surface atmospheric layer at the elevation level of $z = z_a$, can be expressed by

$$\frac{\partial q}{\partial t} = S_m \frac{\partial \xi}{\partial t} - \Lambda q, \quad z = \text{const.} \quad (3)$$

From the studies by Junge and other authors (Bader 1970, Blifford, Ringer 1969; Clark, Whitby 1967; Junge 1953) we are aware that within the range of greater-size particles of airborne matter the known law on statistical distribution

$$n(r) \sim K r^{-\kappa} \quad (4)$$

will apply, where n — probability density versus r , K — parameter independent of r , κ — exponent, assuming the approximate value of 4 for the lower atmospheric layers and about 5 for the upper troposphere (Junge 1963). It is therefore the common belief that the κ value is somehow connected with the factors influencing the aerosols. However, this particular distribution pattern is known in statistics as the Pareto function of density and quite a number of purely stochastic processes will follow this law. All the same, Brock (1971) admittedly stressing the present hypothetical character of the assumptions referring to the relation between the particle size distribution and the physical evolution processes of the population, does theoretically prove the physical meaning of exponent κ for the aerosols.

One may assume that in the case of sea-salt particles the probability density, $n(r)$, will refer mainly to the populations within the particle size range of $r \geq 10^{-4}$ cm that are no longer covered by the coagulation process. It is only at the evolution stage of mother droplets that the coalescence processes may affect the size of the future salt nuclei, even though the share of these processes has not yet been explained. One can expect that further evolution in the already established phase will attain its thermodynamic equilibrium between processes of condensation and tearing away of the molecules by thermal motions. Thus the stage of development of the population by means of ionic condensation, if

any, can merely have a negligible effect on further growth in number and size of the salt crystals. If we therefore describe the process according to the Kolmogorov (1949) equation for the increasing probability density of the dispersive system, we can then go no further than the function of the density rate of changes caused by the "immigration" processes of the particles from their original source and their "emigration" only. The function therefore will assume the form:

$$R = \sum_i r_i f_i(x, t) - \sigma n(x, t). \quad (5)$$

The first expression on the right side of equation denotes the inflow of particles from their source, i , of f_i density, and the source productivity defined by coefficient r_i . The second member indicates the removal velocity of the particles when constant value δ^{-1} expresses their time of stay within the population. The general solution of the equation system connected with the expression (5) for the longer time, t , leads to the obtaining of Pareto's asymptotic density in the form

$$n(x, t) \sim A(t) x^{-(1+\sigma/\beta)} \quad (6)$$

It may, therefore, be assumed for the airborne aerosols that $n \sim (1 + \sigma/\beta_1)$ and when $x = 4\pi r^2$, the σ/β_1 ratio of the "emigration" to "immigration" coefficients is about one. When substituting in equation (6) the respective values from expression (3), we can also say:

$$n(r, t) = A(t) r^{-2} \left(1 + \frac{\Delta q}{S_m \partial \xi / \partial t} \right). \quad (7)$$

RESULTS AND THEIR DISCUSSION

1. SHORT-TERM FLUCTUATIONS OF NUCLEI CONCENTRATION

The analysis of material derived from over one hundred measurements carried out under "dry" weather conditions in various seasons of the year and throughout almost the whole of the Baltic (with the exception of the Gulf of Bothnia), generally tends to confirm the above theoretical assumptions. The occurrence of short-period fluctuations in the sea-salt particles concentration — apart from the effect of the advection factor — is substantial under both the local circulation and the ocean-air advection conditions over the Baltic. Thereby, as can be seen from Fig. 2 (page 118) the rate of change of concentration versus time, when

passing from the minimum to the maximum values or vice-versa, is strikingly different for both circulation types. The time-dependent change in the magnitude of $\Delta q/\Delta t$ ratio in time yields a much longer wave of a low amplitude of fluctuations for the Baltic nuclei, whereas the amplitude of fluctuations is high for the ocean nuclei.

From the data cited in Fig. 2 one may assume that the actual rise or drop in the salt nuclei concentration is about ± 650 ng/cu.m per hour on an average whenever air masses of Atlantic origin extend over the Baltic, and about ± 4 ng/cu.m. per hour when the air circulation is local within the Baltic sea area. When availing ourselves of the preliminary estimates (Garbalewski 1972), it can also be assumed that Λ above the sea surface equals $\sim 1.10^{-5} \text{s}^{-1}$ approximately. Therefore, starting from the measured concentration values for the salt nuclei:

$q_A = 0.02$ ng/cu.cm and $q_B = 0.005$ ng/cu.cm when water salinity is $S_A = 35.10^{-3}$ g/cu.cm and $S_B = 7.5.10^{-3}$ g/cu.cm (A and B. indices indicating the Atlantic Ocean and Baltic values respectively), the values obtained for the above quoted rates of change in the nuclei concentrations are:

$$S_A \Delta \xi / \Delta t = 3.8 \cdot 10^{-16} \text{g/cu.cm s,}$$

$$S_B = \Delta \xi / \Delta t = 0.511 \cdot 10^{-16} \text{g/cu.cm s.}$$

Also when calculating the ratio of the expressions on the right side of equation (3) for the same data we obtain

$$\frac{\Delta q_A}{S_A \Delta \xi / \Delta t} = 0.53 \text{ for the Atlantic Ocean,}$$

and

$$\frac{\Delta q_B}{S_B \Delta \xi / \Delta t} = 0.98 \text{ for the Baltic Sea —}$$

and hence the values for α_A and α_B are 3.06 and 3.96 respectively.

The two values for exponent α obtained in this manner are correlated with the diverse source productivity and they follow from the diffusiwe spreading mechanism of the ocean-origin and the Baltic particles respectively. In this context it is interesting to compare the fluctuations in value of $\Delta q/\Delta t$ ratio obtained in Fig. 3 (page 119) for the non-transparent component of the Baltic aerosols. This is a fluctuation in the dust concentrations mainly brought from above the continent. Despite their essentially different origin, they nevertheless resemble the fluctuations that are characteristic for the ocean nuclei.

The similarity in fluctuations in the case of advection may indicate identical mechanism of the aerosol spreading — whether they be the

land-origin dust particles or ocean-origin salt nuclei with their vertical concentration gradient positive and their resultant spreading directed towards the sea surface.

2. NUCLEI SIZE DISTRIBUTION

The physical importance of exponent x is likewise confirmed by the results of analysis of the dispersive composition of aerosols within the range of particle radius $r \geq 10^{-4}$ cm. They actually demonstrate two types of nuclei size distribution patterns (Fig. 4, page 120) to be found above the Baltic. The results were obtained by independent analyses of the data referring to the local circulation and ocean advection (measured were 1170 and 2790 sea-salt nuclei respectively). The equations of two straight lines in Fig. 4 were calculated by method of least squares, according to the statistical distribution law in the form proposed by Junge (1955):

$$\frac{dn}{d(\lg r)} = K r^{-x}, \quad (8)$$

and consequently two equations were obtained:

$$n = 4,57 r^{-3.17} \text{ for ocean nuclei,}$$

$$n = 1,54 r^{-3.77} \text{ for the Baltic nuclei.}$$

It was thus found that the values for exponent x (3.17 and 3.77) from the nuclei size distribution analysis resemble fairly closely, the values for x (3.06 and 3.96) found from the investigations of fluctuation, $\partial q/\partial t$, versus time, t . Considering the basic difference of the two methods, it must be admitted that there is a generally good incidence of results. This is how an interesting confirmation of the physical meaning of exponent x was provided. It would be difficult to say anything more about the reason for the relatively small deviation in the values for x by these two methods at this particular stage of researches. The deviation is positive (0.11) for the ocean-origin nuclei, being negative (-0.19) for the Baltic nuclei values as against x obtained from the distribution analysis. The magnitude for this deviation, even with its opposite signs, might in all probability, be attributed to the different scatter boundaries of the data analysed and to the lesser exactitude of the $\partial q/\partial t$ fluctuation-based method at this stage of researches.

The values for the self-cleaning coefficient, Λ , found from the data obtained from the distribution analysis, are:

$$\Lambda = \frac{0,59 S_A \Delta \xi / \Delta t}{q_A} = 1.12 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1} \text{ for ocean advection, and}$$

$$\Lambda = \frac{0.89 S_B \Delta \xi / \Delta t}{q_B} = 0.91 \times 10^{-5} \text{s}^{-1} \text{ for local circulation on the Baltic respectively.}$$

CONCLUSIONS

The values for Λ calculated in the manner described above are somewhat lower than obtained ($\Lambda = 1.4 \times 10^{-5} \text{s}^{-1}$) in the first stage of such investigations in the Baltic (Garbalewski 1972). The earlier estimates, however, were derived from an analysis in the fluctuations of the nuclei concentrations only. The present study yields almost identical results, arrived at by two different methods. In principle they consequently define, with better approximation than heretofore, the self-cleaning constant, Λ , for the near-water atmospheric layer above the sea surface, in fogless and precipitationless weather. Accordingly, the mean residence time of marine aerosols in air above water is $\tau = 31$ hours in local over Baltic and $\tau = 25$ hours in oceanic air circulation cases.

The somewhat higher value for Λ and the correspondingly shorter time τ as found to exist for the ocean circulation of air masses above the Baltic does not exclude the possibility of more intense processes of selfpurification of atmosphere from aerosols to accompany the advection of air masses from above the Atlantic. Still, the values for Λ and τ may also depend on the intensity of those processes over the ocean itself. The residence time τ of aerosols in air above the sea area refers to the particles having their mass of an order of 10^{-10}g on an average. It should be added that the estimates by Eriksson (1957) that are based upon the production rate ($\tau = 0.6$ of a day) and sedimentation ($\tau = 2.6$ of a day) and by Junge (1972; $\tau = 1.0$ day), all for identical particle sizes, while equivocally assessing the range of magnitude for τ , upon the whole, do not contradict the present findings.

I wish to express my gratitude to dr. ing. Anna Trzosińska, the manager of the Sea Water Chemistry Laboratory in the Maritime Department of the Institute for Meteorology and Water Economy for affording the use of the Pulfrich photometer and for her assistance in extinction measurements.

LITERATURA

REFERENCES

- Bader H. (1970), *The hyperbolic distribution of particle sizes*, J. Geophys. Res., vol. 75, no. 15, p. 2822—2830.
- Blifford I.H., Ringer L.D. (1969), *The size and number distribution of aerosols in the continental troposphere*, J. Atmos. Sci., 26, p. 716—725.
- Brock J.R. (1971), *On size distribution of atmospheric aerosols*, Atm. Environment Perg. Press, vol. 5, p. 833—841.
- Clark W.E., Whitby T.K. (1967), *Concentration and size distribution measurements of atmospheric aerosols and a test of the theory of self-preserving size distribution*, J. Atmos. Sci., 24, p. 677—678.
- Eriksson E. (1957), *The chemical composition of Hawaiian rainfall*, Tellus, 9, p. 509—520.
- Garbaléwski C. (1972), *The use of polonium radionuclides and sea-salt nuclei as the natural tracers of the vertical exchange processes of pollutants at air sea interface*. ICES Symp. on the Physical Processes Responsible for the Dispersal of Pollutants in the Sea with Special Reference to the Nearshore Zone. Aarhus.
- Garbalewski C., Juśkiewicz A. (1972), *Large and giant sea-salt nuclei in processes connected with pollutants transfer from the Baltic to near-water atmospheric layer*. 8-th Conference of Baltic Oceanographers, Copenhagen.
- Garbalewski C. (1972), *Opređenije veličiny parametra šerochovatosti dla vzvolnovannoj poverchnosti moria s ispolzovanijem jader morskoj soli*, Symp. on the Mathematical Modelling of the Ocean-Atmosphere Interaction. Sov. Inst. Oceanology, Bulg. Committee Oceanogr. and others, Varna.
- Junge C.E. (1955), *The size distribution and ageing of natural aerosols as determined from electrical and optical data of the atmosphere*, J. Meteor., 12, p. 13—25.
- Junge C.E. (1963), *Air chemistry and radioactivity*, Academic Press, New York.
- Junge C.E. (1972), *Our knowledge of the physico-chemistry of aerosols in the undisturbed marine environment*, J. Geophys. Res., vol. 77, no. 27, p. 5183—5200.
- Kolmogorov A.N. (1949), *Riealnyj smysl riezultatow dispersionnogo analiza*, Trudy II Vsesojuzn. sov. po matemat. statistike, Taškent.