
Konsistente antagelser om sulfat produsert i våtfase og CCN-produksjon

Janne Berger



Masteroppgave i geofag
Meteorologi og oseanografi
Institutt for geofag
Universitetet i Oslo
Våren 2005

Abstract

This thesis concerns certain aspects of the production of CCN. In-cloud oxidation followed by cloud droplet evaporation is an important chemical process where sulfate is produced, and only particles with radii bigger than a certain critical radius (r_c) can go through this process.

The original interval for the critical radius ($r_{cmin} = 0.05 \mu\text{m}$, $r_{cmax} = 0.2 \mu\text{m}$) has led to an overestimation of the concentration of CCN. The aim is therefore to develop a new parameterization of the critical radius and at the same time keep the consistency with realistic supersaturations in different types of clouds. An interval for the critical radius must be used because of the great variability of supersaturations.

Based on the assumption that the critical radius must equal the critical radius for activation of CCN, two sets of intervals has been developed where the first is consistent with a marine background ($r_{cmin} = 0.033 \mu\text{m}$, $r_{cmax} = 0.060 \mu\text{m}$), and the second is consistent with a continental background ($r_{cmin} = 0.044 \mu\text{m}$, $r_{cmax} = 0.16 \mu\text{m}$). These results were implemented in NCAR CCM3 (CCM-Oslo), from which results concerning cloud droplet concentration, effective cloud droplet radius and short wave indirect cloud forcing were made for the year of 2001.

Comparisons have been made with earlier results where the original interval of the critical radius has been used. Both the marine and the continental values of the critical radius are smaller than the original values, with the marine values being the smallest. This led to a greater global mean of the cloud droplet concentration (123.4 cm^{-3} for the marine r_c -interval), a smaller global mean of the effective cloud droplet radius ($10.6 \mu\text{m}$ for the marine r_c -interval) and a greater short wave cloud forcing (-54.82 Wm^{-2} for the marine r_c -interval).

Considerable parts of South-America, Northern and Central parts of Africa and Northern parts of Australia proved to have smaller concentrations of cloud droplets, and hence larger effective droplet radius and smaller short wave cloud forcing, for the smallest choice of r_{cmin} . The biases were small, especially for the cloud droplet concentration, and are probably results of a numerical error in the parameterizations of aerosol properties.

Forord

En stor takk til min hovedveileder, professor Trond Iversen, som har gitt meg en meget interessant oppgave. Takk for god veiledning og gode råd om oppgaveskriving.

En stor takk til medveileder, post.doc Alf Kirkevåg, som har hjulpet meg med å sette meg inn i modellen, og som alltid har gitt utfyllende svar på mine ikke alltid like forståelige mailer!

En stor takk til medveileder, post.doc Øyvind Seland, for god hjelp med figur-plott og nyttige råd.

Og til slutt takk til mine medstudenter på lesesalen i 12. etg. som jeg har kunnet dele alle mine frustrasjoner med!

INNLEDNING	1
1 SENTRALE SKYFYSISKE BEGREPER.....	3
1.1 KRITISKE RADIER FORBUNDET MED CCN-DANNELSE OG SULFATPRODUKSJON.....	4
1.2 OVERMETNING	6
1.3 OPTISKE EGENSKAPER.....	7
1.3 SULFAT SOM VIKTIG AEROSOLKOMPONENT.....	8
1.3.1 <i>Oksidasjonsprosessene</i>	9
2 BEREGNINGENE I CCM-OSLO	13
2.1 BAKGRUNNSAEROSOLENE.....	13
2.2 MODIFISERTE STØRRELSFORDELINGER.....	17
2.3 BAKGRUNNSTYPENE I CCM-OSLO.....	18
2.3.1 <i>Kontinental bakgrunn</i>	18
2.3.2 <i>Marin bakgrunn</i>	19
2.3.3 <i>Ørken bakgrunn</i>	20
2.3.4 <i>Polar bakgrunn</i>	21
2.4 TRANSPORTERTE BAKGRUNNSMODER.....	21
2.5 MULIGE FEIL SOM SKYLDES INKONSISTENT VALG AV R_c	22
3 RESULTATER OG DISKUSJON	24
3.1 R_c -INTERVALL OG OVERMETNING	24
3.2 FORSKJELL MELLOM MARINE OG KONTINENTALE R_c -VERDIER, SAMMENLIGNING MED AEROCOM B	28
3.2.1 <i>Generelle trekk</i>	29
3.2.1.1 Total atmosfære	29
3.2.1.2 Det antropogene bidraget.....	31
3.2.2 <i>Forskjeller mellom marint valg av r_c og kontinentalt valg av r_c</i>	36
3.2.3 <i>Sammenligning med Aerocom B</i>	41
4 SAMMENDRAG OG KONKLUSJON	44
REFERANSER.....	46
APPENDIX A	48
A.1 FORHOLD MELLOM OVERMETNING OG NATURLIG KRITISK RADIUS	48
A.1.1 <i>MINF-moden</i>	48
A.1.2 <i>SEASF-moden</i>	51
A.1.3 <i>CCN-konsentrasjon plottet mot r_{sup}</i>	54

Innledning

Spørsmålet om antropogene utslipp påvirker jordas klima er et viktig forskningstema. Mens mye av oppmerksomheten de første årene var rettet mot effekten av økte utslipp av klimagasser, har interessen for å studere effekter av antropogene aerosoler på klima vært sterkt økende de siste 10-15 årene.

Konsekvensen av økte konsentrasjoner av klimagasser er hovedsakelig oppvarming, mens aerosoler kan føre til både oppvarming og avkjøling. De mulige effektene grupperes gjerne i den direkte og den indirekte effekten på klimaet. Den direkte effekten skyldes at aerosoler kan spre og absorbere sollys, noe som kan bety at en antropogen økning dels kan øke andelen av solstråling som spres tilbake til universet og dels kan forårsake at mer solstråling blir absorbert i atmosfæren. Om netto-resultatet av den direkte effekten er oppvarming eller avkjøling, avhenger både av aerosolens evne til henholdsvis å absorbere eller å spre sollys og av den naturlige evnen jordoverflaten og atmosfæren allerede har. I områder der den naturlige albedoen er liten, vil en økt refleksjonsevne slå sterkt ut. Motsatt vil et område med høy albedo være følsom for en liten økning av absorpsjonsevnen. Sistnevnte gjelder i stor grad pol-områdene som domineres av is og snø. Av de antropogene bidragene er det særlig sulfat, nitrat og ikke-elementært organisk karbon som sprer lys, mens elementært (svart) karbon i sot absorberer effektivt.

Den indirekte effekten skyldes noen aerosolers evne til å være kondensasjonskjerner for vanndamp, slik at de kan påvirke skyer. Økt konsentrasjon av aerosoler kan føre til at det blir dannet flere kondensasjonskjerner (CCN) som vanndamp kan kondensere på. Dette kan igjen føre til at konsentrasjonen av skydråper øker mens dråpestørrelsen avtar, fordi den totale vannmengden i skyen fordeles på flere CCN. Resultatet er at den multiple spredningen i skyen øker, og at det blir en økning av albedoen ved skytoppen. Dermed vil den indirekte effekten bidra til en avkjøling av klimaet ettersom den økte albedoen fører til at mer sollys spres tilbake til universet. Dette fenomenet kalles Twomey-effekten (*Twomey et al., 1971*). En annen mulig konsekvens av at skydråpene blir mindre, er at færre skydråper vil smelte sammen og vokse seg store nok til å falle som nedbør. Dermed kan det bli mindre nedbør og skyens levetid forlenges, noe som også fører til at skydekningen og jordens albedo øker. Dette er kjent som Albrecht-effekten (*Albrecht, 1989*) og kan føre til både oppvarming og avkjøling avhengig av den relative betydning av økt refleksjon av solstråling og økt drivhuseffekt av økt skydekning. Siden det er mest antropogene aerosoler i de lavere nivåer i troposfæren er det vanlig å anta at avkjølingen vil dominere.

I denne oppgaven har jeg konsentrert meg om å studere visse aspekter ved aktivering av skykondensasjonskjerner (CCN), og hvordan dette kan parameteriseres i klimamodeller med den gitteroppløsning og fysiske beskrivelse som dagens tilgjengelige regnekraft tillater. I denne sammenheng er sulfat (SO_4) i en særstilling, blant annet fordi komponenten hovedsakelig dannes i atmosfæren ved oksidasjon av SO_2 , men særlig fordi en vesentlig del av produksjonen skjer i flytende skydråper. Siden enhver skydråpe inneholder minst nok hygroskopisk partikkelmasse til en CCN, vil sulfat dannet i skydråper normalt kunne ha minimal effekt på dannelse av nye CCN. Den kan ha en effekt i den grad ulike skytyper kan ha ulike typiske overmetninger, slik at partikler som aktiveres til CCN i en skytype ikke nødvendigvis aktiveres i en annen. Dersom klimamodellene hadde inneholdt prognostiske likninger

for aerosolpartiklers og skydråpers størrelsesfordeling, hadde dette vært mulig å beskrive direkte. Isteden må grove parameteriseringer benyttes. I denne sammenheng antas det at alle skydråper inneholder en aerosolkjerne som frigjøres ved fordampning, og at denne aerosolkjernen er større enn minste kritisk radius, r_c . All sulfat produsert i skydråper antas derfor internt blandet med partikler fra bakgrunnsaerosolen som er større enn den kritiske radius. Denne kritiske partikkelradius for sulfat dannet ved oksidasjon av SO_2 i skydråper, ses i sammenheng med den realiserte overmetning i ulike skyer over land og hav. Bakgrunnen for oppgavens problemstilling er at antagelser som er gjort i tidligere skjemaer sannsynligvis overestimerer CCN-konsentrasjonene, samt ga for høye verdier for den optiske tykkelsen til kontinentale og marine aerosoler. Dette ble kompensert for ved å bruke veldig lave verdier for overmetningen for å oppnå realistiske skydråpekonsentrasjoner. Vi ønsker å utvikle en parameterisering av den kritiske partikkelradius, r_c , for sulfat produsert i skyer, som er konsistent med fysisk realistiske overmetninger i kontinentale og marine skyer. Siden man må anta et intervall for overmetninger og ikke én skarp verdi, brukes et intervall også for r_c . Intervallet som er brukt i tidligere versjoner, var ment å gjelde for alle typer av primære bakgrunnsaerosoler (f.eks. sjøsalt og jordstøv) i modellen (*Kirkevåg et al. (2002)*). Dette er en ganske grov tilnærming ettersom løseligheten og hygroskopisiteten for ulike bakgrunnsaerosoler er ulik, og overmetningen typisk er høyere i kontinentale konvektive skyer enn tilsvarende marine skyer (*Kirkevåg et al. (2002)*, *Pruppacher og Klett (1980)*).

I denne oppgaven bruker jeg CCM-Oslo til å studere sammenhengen mellom sulfat produsert ved oksidasjon av SO_2 i skydråper og parameterisering av CCN ut fra antatte overmetninger. Jeg ønsker å oppnå en mest mulig konsistent sammenheng mellom antatt realisert overmetning og antatt størrelse på de partiklene som inneholder sulfat produsert i våtfase. En viktig del av oppgaven består i å undersøke egenskapene til to forslag til slike metoder.

I kapittel 1 presenteres sentrale skyfysiske begreper, samt en redegjørelse av oksidasjonsprosessene som fører til produksjon av sulfat. Kapittel 2 omhandler en beskrivelse av de sentrale parameteriseringene i CCM-Oslo, samt mulige feil som kan oppstå på grunn av inkonsistent valg av kritisk radius, r_c . Resultatene, i sammenheng med en diskusjon, presenteres i kapittel 3, der skydråpekonsentrasjon, effektiv dråperadius og kortbølget strålingspådriv blir vektlagt.

1 Sentrale skyfysiske begreper

Aerosolpartikler finnes både naturlig og antropogent i atmosfæren. Det skilles mellom primære partikler som tilføres atmosfæren i partikkelform, og sekundære partikler som dannes i atmosfæren ved kjemisk produksjon fra gasser tilført atmosfæren. Mens naturlige aerosoler klimatologisk domineres av primære partikler (sjøsalt, mineralstøv og biologisk materiale), er den klimatologiske betydningen av antropogene aerosoler i større grad påvirket av sekundære partikler (sulfat, nitrat, sekundære organiske partikler). Men det fins viktige eksempler på det motsatte; for eksempel finnes det biogene sulfider fra hav som produserer naturlig sulfat i atmosfæren, og antropogent sot består både av elementært karbon (BC) og organisk karbon (OC) som er primære partikler.

I mange sammenhenger har man valgt grovt å dele inn aerosoler i fire typer etter størrelse; partikler med typisk radius omkring $0.001 \mu\text{m}$ eller litt større kalles nukleasjonsmode; de med radius omkring $0.005\text{-}0.05 \mu\text{m}$ kalles Aitken-mode; de med radius mellom 0.05 og $0.5 \mu\text{m}$ er akkumulasjonsmode; og partikler med radius større enn $0.5 \mu\text{m}$ er grov mode eller gigant-partikler. Fin mode brukes noen ganger felles om nukleasjons- Aitken- og akkumulasjonsmodene.

Aerosolpartikler inneholder ofte kjemiske forbindelser som er hygroskopiske, det vil si at de lager små stabile disdråper, typisk med radius mindre enn $1 \mu\text{m}$. Hvis relativ fuktighet øker, for eksempel i en oppstigende luftstrøm som utvides adiabatisk og avkjøles, kan et utvalg av slike små disdråper plutselig vokse seg til skydråper med 10 til 100 ganger større radius. Da sies aerosolpartikkelen å være aktivert som skykondensasjonskjerne (CCN). Kun aerosolpartikler som er store nok og/eller inneholder nok hygroskopisk materiale blir CCN. Når skydråper er dannet kan det i neste omgang skje kjemiske prosesser i dem. Å parameterisere prosesser i nydannede skydråper krever beskrivelse av prosesser som påvirker dråpedannelse fra vanndamp når det er aerosolpartikler til stede.

De optiske egenskapene til en aerosolpartikkel og dens evne til å danne CCN, avhenger av størrelse og sammensetning. Man skiller mellom to typer sammensetninger (blandinger); en luftpakke som inneholder flere typer partikler som er adskilt fra hverandre, kalles en eksternt blandet aerosol, og dersom hver partikkel inneholder en blanding av partikler av ulik opprinnelse, sies aerosolen å være internt blandet. Generelt kan man si at andelen av intern blanding øker med aerosolens alder, det vil si tiden siden partikkelmassen ble tilført luftpakken. Av de prosessene som sørger for overgang fra eksternt til intern blanding er det tre som beskrives i CCM-Oslo. Kondensasjon er avsetning av den kjemiske komponenten produsert i gassform i luft på en eksisterende partikkel. Koagulasjon er kollisjon og sammensmeltning av to partikler. Den kjemiske komponenten kan produseres kjemisk i en skydråpe som fra før inneholder løselige og uløselige partikler. Særlig er det produksjon av sulfat ved oksidasjon av SO_2 som er en viktig prosess i skydråper. For å beskrive antropogene aerosolers påvirkning av klima korrekt er det viktig å skille sulfat produsert i skydråper som i neste hånd fordamper, fra sulfat dannet i klar luft. For førstnevnte prosess er bestemmelse av størrelsen på de partiklene som assosieres med produksjon av sulfat nødvendig, og dette er hovedtemaet som jeg har konsentrert meg om i denne oppgaven. Mer om den prosess-orienterte sulfatdannelsen er beskrevet i delkapittel 2.2.

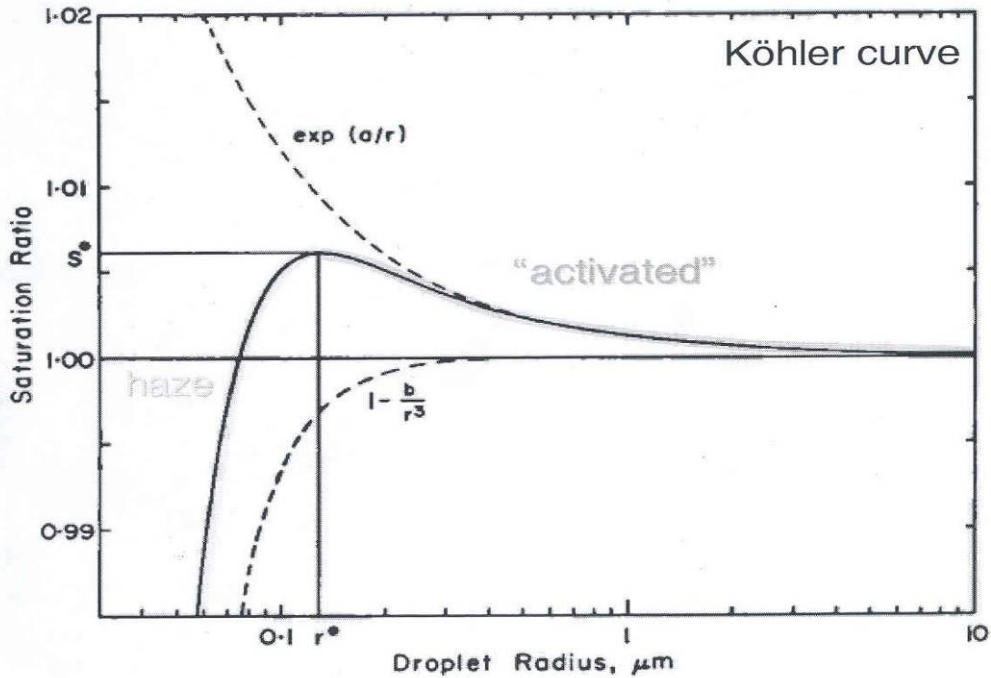
1.1 Kritiske radier forbundet med CCN-dannelse og sulfatproduksjon

Kelvin- og Köhler-ligningene beskriver hvordan størrelsen til henholdsvis en ren dråpe og en dråpe med oppløst stoff varierer med overmetning:

$$\frac{e_s(r)}{e_s(\infty)} = \exp\left(\frac{2\sigma}{rR_v\rho_L T}\right) \quad (\text{Kelvin-ligningen})$$

$$\frac{e'_s}{e_s(\infty)} = 1 + \frac{a}{r} - \frac{b}{r^3} \quad (\text{Köhler-ligningen})$$

Her er $e_s(r)$ er likevektsvanndamptrykket over en sfærisk dråpe med radius r og $e_s(\infty)$ er likevektsvanndamptrykket over en plan flate med rent vann. Forholdet mellom dem (s) gir relativ fuktighet ved metning i forhold til dråper med radius r , slik at overmetningen S i prosent er $S = (s - 1) \cdot 100\%$. Videre er σ overflatespenningen til dråpen, R_v er gasskonstanten for vanndamp, ρ_L er tettheten til vann, T er temperaturen i omgivelsene, og a og b er parametere som er funksjoner blant annet av overflatespenningen og temperaturen i omgivelsene (fra *Rogers og Yau (1996)*). I Kelvin-ligningen er det tydelig at jo større dråpen er, desto mindre vanndamptrykk kreves for likevekt. Uttrykket viser at $e_s(r)$ alltid er større enn $e_s(\infty)$ for en gitt temperatur og at jo mindre dråperadien er, desto høyere overmetning kreves for videre vekst ved kondensasjon. I Köhler-ligningen beskriver det andre leddet krumningseffekten eller Kelvin-effekten, som i likhet med Kelvin-ligningen gjør at overmetningen for videre vekst øker når dråperadien minker. Det tredje leddet i Köhler-ligningen (løsningseffekten) uttrykker hvordan en partikkel minker damptrykket og dermed også kravet til overmetning for CCN-aktivering. Begge leddene i Köhler-ligningen øker med minkende dråperadius, men det er tydelig at løsningsleddet øker mest pga r^3 -avhengigheten. Plotter man Köhler-ligningen i et r versus S -diagram, får man Köhler-kurven. For rene vanndråper faller det siste leddet bort, slik at ligningen reduseres til en tilnærmet versjon av Kelvin-ligningen ($\exp(a/r) \approx 1 + a/r$ for store r). Figur 2-1 viser disse kurvene i samme diagram:



Figur 2-1: Kelvin-kurven (øverste striplet), Köhler-kurven (midterste heltrukket) og kurven som viser løsningseffekten (nederste striplet). Metningsradien s på y -aksen og dråperadien r på x -aksen.

Her er den striplede kurven over linjen for $s = 1$ Kelvin-ligningen, mens den striplede linjen under er "løsningseffekten". Vanndamptrykket over en ren vanndråpe er som sagt alltid større enn omgivelsenes metningsvanndamptrykk, men damptrykket over en dråpe i løsning kan imidlertid være større eller mindre enn $e_s(\infty)$ avhengig av om løsningsleddet er mindre eller større enn Kelvin-leddet. Dette betyr at en dråpe i løsning kan være i likevekt ved undermetning og den bratte stigningen for små r representerer dette.

Toppunktet på kurven representerer den radien og overmetningen hvor aerosolpartikkelen som er løst opp i den stabile dråpen aktiveres som en kondensasjonskjerne (CCN) som vanndamp som diffunderer inn mot dråpen kan fortsette å kondensere på. Denne radien er vist som r^* på figuren, men vil i det følgende kalles naturlig kritisk radius r_{sup} , og defineres som den minste radien en aerosolpartikkel kan ha for å bli aktivert som CCN ved en gitt overmetning S .

Som antydnet ovenfor er oksidasjon av SO_2 i skydråper en viktig prosess som kan skje etter at dråpen har blitt aktivert. I dette tilfellet må partikkelen i skydråpen være større enn en bestemt kritisk radius r_c for at produksjon av sulfat skal finne sted. Denne radien er ikke den samme som den naturlige kritiske radien r_{sup} , men kan først defineres etter at dråpen har blitt CCN-aktivert, som den minste partikkelradius som sulfat produsert i en skydråpe kan blandes internt med etter fordampning av dråpen. Med andre ord; den minste radius til en bakgrunns-partikkel som blir CCN-aktivert er r_{sup} , og den minste radius en residualpartikkel kan ha etter fordampning av skydråper og før pålegg av sulfat er r_c . Fordi koalescens kan ha økt innholdet av partikkelmasse i dråper, kan r_c være større, men ikke mindre enn r_{sup} . Appendix A gir en grundigere gjennomgang av forholdet mellom r_c , r_{sup} og S .

1.2 Overmetning

Som antydnet over, spiller overmetning en stor rolle i forbindelse med dråperadius og dens utvikling. Endring av overmetning S mhp tiden t kan uttrykkes

$$\frac{dS}{dt} = q_1 \frac{dz}{dt} - q_2 \frac{d\chi}{dt}.$$

Her er $\frac{dz}{dt}$ vertikalhastigheten og $\frac{d\chi}{dt}$ er kondensasjonsraten, slik at $q_1 \frac{dz}{dt}$ representerer produksjon av overmetning ved avkjøling pga adiabatisk oppstigning og $q_2 \frac{d\chi}{dt}$ tap av overmetning pga kondensasjon av vanndamp på dråpene. q_1 og q_2 er funksjoner av blant annet temperatur og tetthet (fra *Rogers og Yau (1996)*). Kvalitativt kan man også forstå dråpevekst ut fra uttrykket for endring av S . Når temperaturen synker ved adiabatisk oppstigning øker metningen til en gitt luftpakke. Partiklene absorberer vanndamp, men avkjølingsraten er mye større i forhold slik at luftpakken blir overmettet. Etterhvert aktiveres de største dråpene etterfulgt av mindre dråper.

Som nevnt innledningsvis er typiske verdier for overmetning er sterkt varierende. *Pruppacher* kom i 1980 med typiske verdier for ulike skytyper (tabell 2-1), men det må understrekes at dette er høyst usikkert fordi det er vanskelig å foreta empiriske målinger av realisert overmetning. Generelt gjelder det at når vanndamp kondenseres til en sky vil det være betydelig variasjon i vertikalhastigheten omkring et gjennomsnitt. Dette gir opphav til en fordeling av overmetninger, og dermed et intervall av verdier for r_{sup} (mer om dette i delkapittel 3.1).

Tabell 2-1: Typiske overmetninger for ulike skytyper over hav og land.

Skytype	Oppstigningshastighet (ms ⁻¹)	Overmetning (%)	Referanse
Cumulus, kontinental	~ 1-17	0.25-0.7	<i>Pruppacher og Klett (1980)</i>
Cumulus, maritim	~ 1-2.5	0.3-0.8	<i>Pruppacher og Klett (1980), Mason (1971)</i>
Stratiform	~ 0-1	~ 0.05	<i>Pruppacher og Klett (1980)</i>
Tåke	-	~ 0.1	<i>Pandis og Seinfeld (1989)</i>

Den relative fuktigheten i ulike skyer og tåke varierer omkring metning 100%. For tåke kan avvikene imidlertid være forholdsvis store; rapporter fra ulike steder (*Pick (1929, 1931), Neiberger og Wurtele (1949), Mahrous (1954), Reiquam og Diamond (1959), Kumai og Francis (1962)*) vitner om relative fuktigheter helt nede i 81%. For skyer er avvikene noe mindre. *Politovich og Cooper (1988)* gjorde noen målinger med fly gjennom 147 skyer over Montana, USA, og fant at overmetningene lå mellom -0.5% til 0.5%. I nyere tid er instrumenter utviklet for å måle relativ fuktighet direkte; f.eks. ble det såkalte duggpunkt-hygrometeret utviklet i 1980 (fra *Pruppacher og Klett (1997)*).

1.3 Optiske egenskaper

Jeg har konsentrert meg om den indirekte effekten på grunn av en endring av den kritiske radien for sulfat produsert i skydråper. *Twomey (1977)* fant en relasjon mellom den optiske tykkelsen til en sky, τ , og antallskonsentrasjonen til skydråper, N_d :

$$\tau = h \left[\frac{9\pi w_L^2 N_d}{2\rho^2} \right]^{1/3},$$

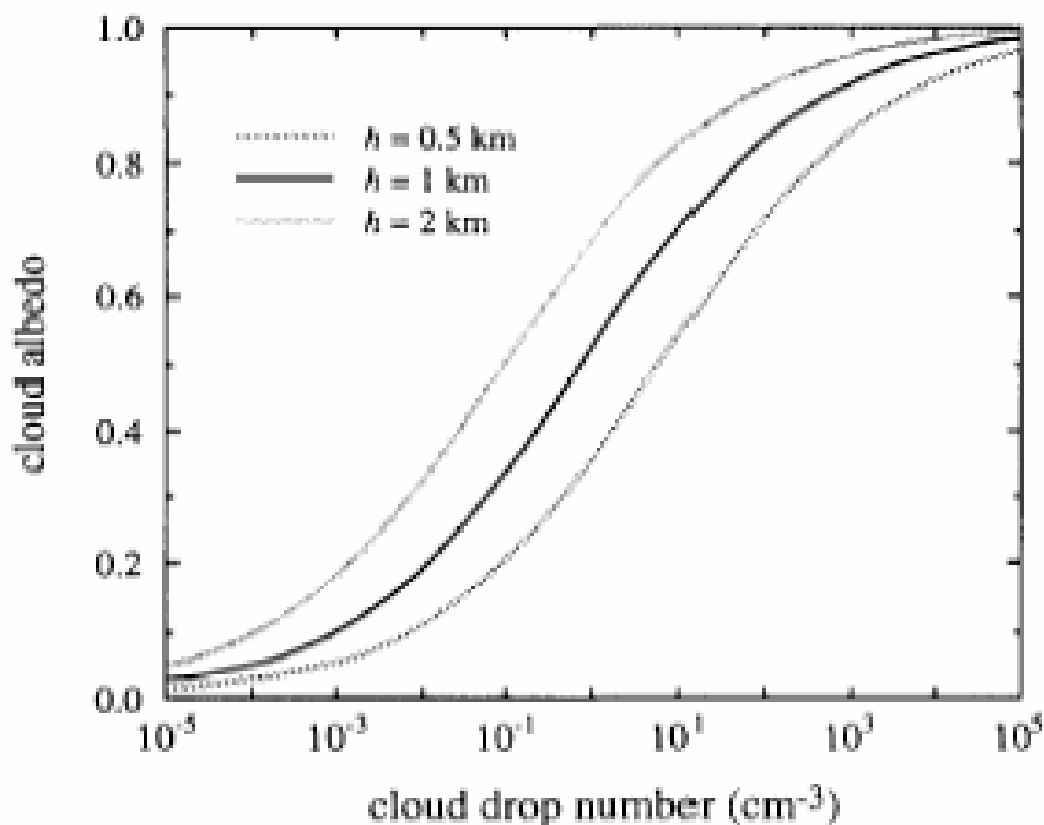
hvor er h skyens vertikale utstrekning, w_L er skyvannsinnhold og ρ er tettheten til vann. Vi ser at den optiske tykkelsen øker når skydråpekonsentrasjonen øker. *Lacis og Hansen (1974)* fant en relasjon mellom optisk tykkelse og skytopp-albedo, α_c , som kan uttrykkes slik:

$$\alpha_c = \frac{\tau}{\tau + 7.7},$$

slik at en økning i N_d gir en økning i albedoen til skyen. Det er slik at 30% økning i skydråpe-konsentrasjonen fører til ca 2% økning i skytopp-albedo. *Twomey (1991)* fant ut fra disse to relasjonene skytopp-albedoens følsomhet for endring i dråpekonsentrasjonen:

$$\frac{\partial \alpha_c}{\partial \ln N_d} = \frac{\alpha_c(1 - \alpha_c)}{3}.$$

Ut fra dette uttrykket finner man at albedoen er mest følsom for en endring i dråpekonsentrasjonen når $\alpha_c = 0.5$. Videre er det slik at når skyens tykkelse øker, øker også den optiske tykkelsen og dermed også albedoen. (Disse uttrykkene er fra *Chuang og Penner (1995)*). Figur 2-2 viser også at når skyen er tynn, vil en endring i dråpekonsentrasjon føre til større endring i albedoen. *Twomey (1984)* fant også ut at økningen i albedoen overgår minkningen pga absorberende materiale i aerosolene når realistiske verdier for absorpsjonen var valgt.



Figur 2-2: Variasjon av skyalbedo som funksjon av skydråpekonsentrasjonen for tre ulike skydybder h (Chuang og Penner, 1995).

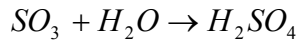
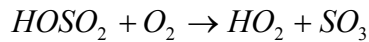
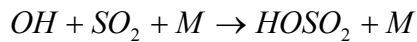
Når det gjelder den direkte effekten som aerosoler utøver, ligger det globale middelet av strålingspådrivet på mellom -1 og 0 Wm^{-2} (Kristjánsson (2002)). Fordi aerosoler har en relativt kort levetid (typisk under en uke), er strålingspådrivet særlig tydelig over kildeområdene. Eventuelle klimaendringer avhenger imidlertid av atmosfærens og havets respons, og likner som regel lite på det geografiske mønsteret til pådrivet. Størrelsen på den indirekte effekten er svært usikker, fordi skyers egenskaper i seg selv er blant det mest usikre i klimasystemet og i klimamodeller. Estimer som er gjort tyder på at denne effekten varierer mellom -2 og -1 Wm^{-2} (Kristjánsson (2002)). Den netto effekten er altså et negativt strålingspådriv (avkjøling), og dette kan bidra til å motvirke den oppvarmende effekten som drivhusgassene har.

1.3 Sulfat som viktig aerosolkomponent

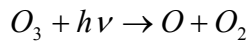
Sulfat spiller en betydelig rolle som komponent i troposfæriske aerosoler. Svovelkjemi i atmosfæren har lenge opptatt forskerne, men tidligere mest på grunn av at økt svovel-konsentrasjon fører til såkalt sur nedbør. Svovel i form av sulfat-aerosoler som kan påvirke Jordens strålingsbalanse og klima, har imidlertid også fått betydelig oppmerksomhet de siste 10-15 årene.

1.3.1 Oksidasjonsprosessene

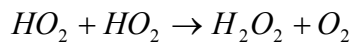
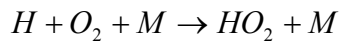
De nevnte oksidasjonsprosessene av SO_2 til sulfat er grunnleggende i forståelsen av sulfats påvirkning av skyer og klima. Forskjellige kjemiske komponenter innvirker på de ulike oksidasjonsprosessene. For a1-moden er det særlig OH-radikalet som er oksidanten, mens for a3-moden er det H_2O_2 , O_3 og O_2 + katalyse, samt CH_2O , Fe, Mn, Co, Cu og Ni som som gjør seg gjeldende som oksidanter (*Brasseur et al. (1999)*). SO_2 er et vanlig mellomledd i oksidasjonen av alle reduserte svovelkomponenter, samt at den i stor grad slippes ut direkte. Nedenfor står reaksjonsligninger som illustrerer henholdsvis a1- og a3-moden (*Brasseur et al. (1999)*):



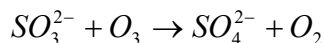
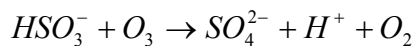
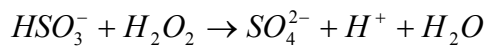
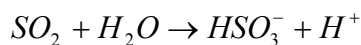
H_2O_2 og O_3 er som sagt viktige oksidanter for oksidasjon til sulfat i skydråper. Fotolyse-reaksjonen



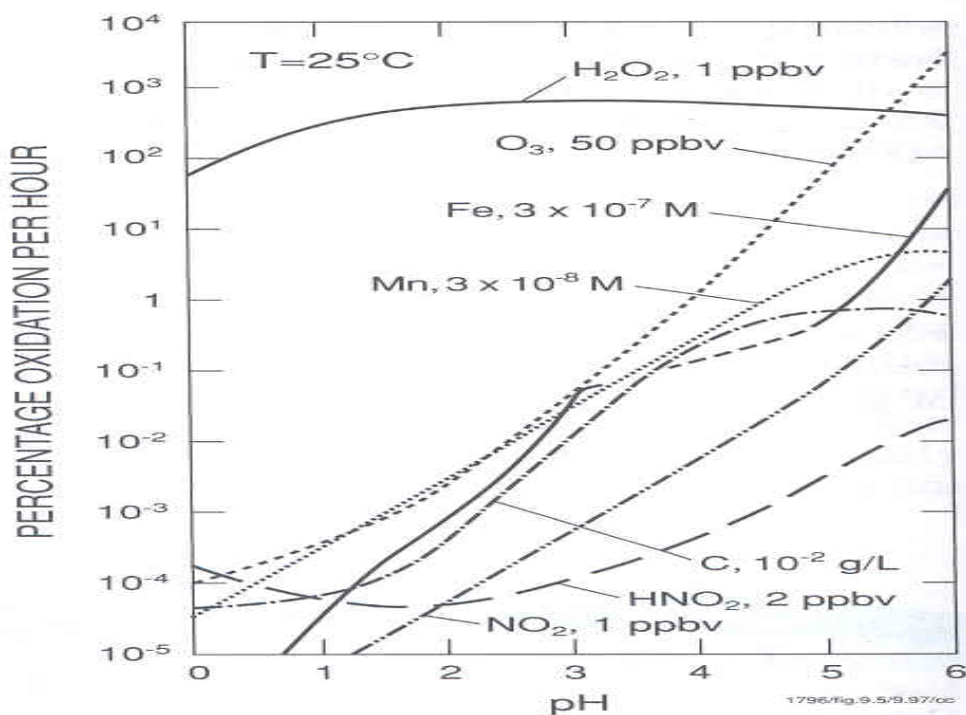
initierer produksjonen av blant annet H_2O_2 :



Oksidasjon av SO_2 i skydråper kan da oppsummeres slik:



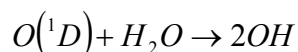
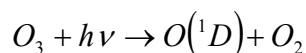
Se for øvrig *Iversen og Seland (2002)*. Om det er O_3 eller H_2O_2 som dominerer som oksidasjonskomponent avhenger av pH-verdien i luften. Figur 2-3 viser dette:



Figur 2-3: Oksidasjonsandel (%) av totalt sulfat for ulike oksidanter som funksjon av pH-verdi (fra Brasseur et al., 1999).

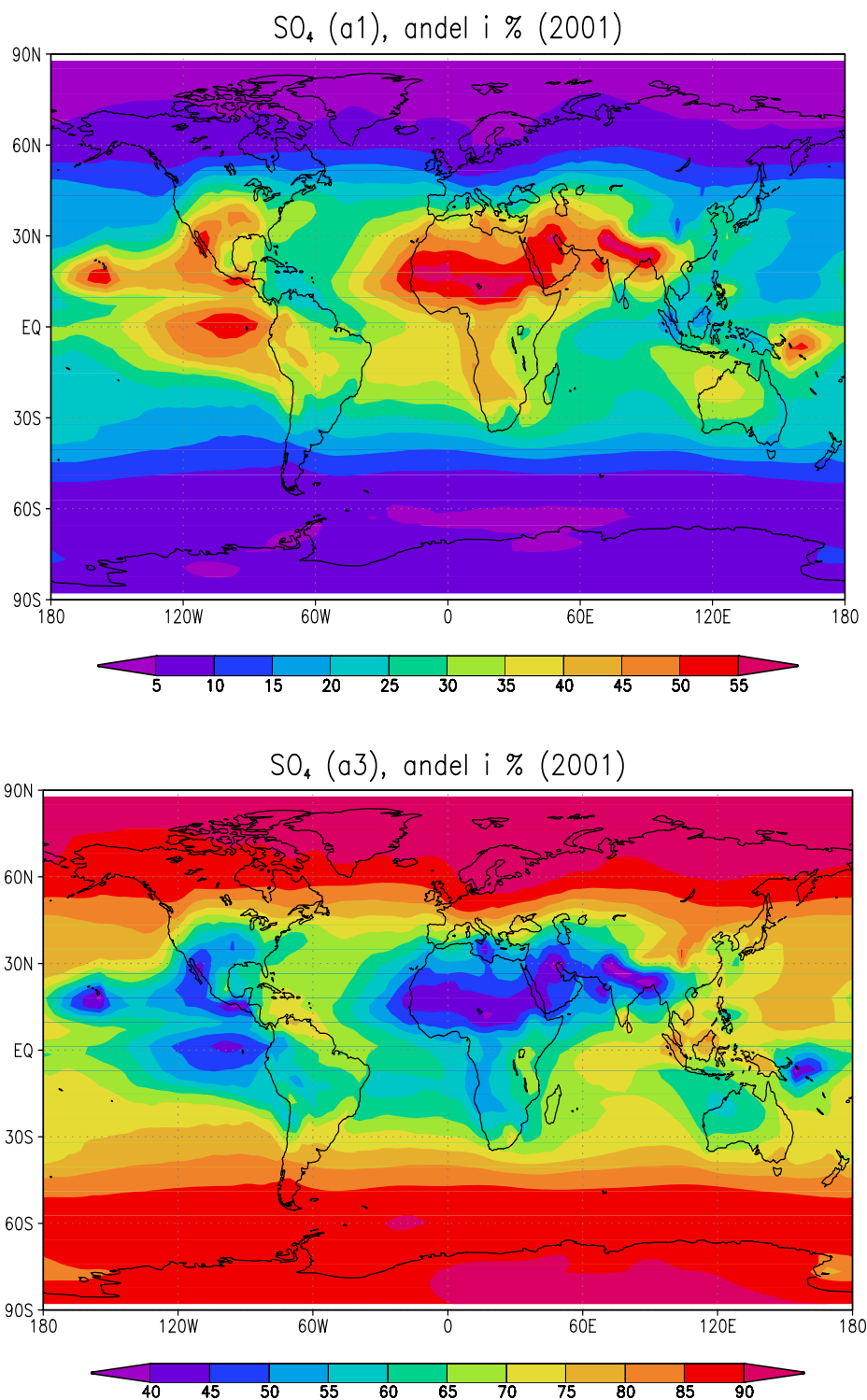
Vi ser at H_2O_2 spiller den viktigste rollen som oksidant når pH-verdien ligger under 4, men så snart den overstiger ca 4.5 begynner O_3 å gjøre seg gjeldende. Det er likevel verdt å nevne at H_2O_2 er viktig i de aller fleste tilfeller, unntatt i nærheten av alkaliske utslipp, for eksempel utslipp av askepartikler etter biomasse-forbrenning (flyve-aske).

Om det er gassfase- eller våtfase-oksidasjonsprosesser som dominerer i atmosfæren er sterkt avhengig av industriell aktivitet, sesong, geografi og oksidantnivå i ulike nivåer i troposfæren, og påvirkningen av sulfat på skyens albedo og nedbørsutløsning er videre avhengig av hvor stor del av sulfaten som dannes i skydråper i forhold til andelen som dannes i klar luft. Generelt spiller a1-moden økende rolle med høyden i atmosfæren fordi konsentrasjonen av flytende vann avtar med høyden. Vertikaltransport i konvektive skyer kan bringe SO_2 opp til øvre deler av troposfæren slik at sulfat kan bli produsert i klar luft og blant annet danne a1- og a2-modene. Oksidasjon i skydråper skjer hovedsakelig i lavere nivåer i nærheten av industrielle områder hvor det slippes ut SO_2 . I den lyse årstiden vil det typisk være mye H_2O_2 tilgjengelig, og straks skyer dannes vil sulfat produseres i løpet av noen få minutter til enten H_2O_2 eller SO_2 er brukt opp, og videre sulfatproduksjon avhenger av ny tilførsel av luft til skyen. Typisk kan man si at godt over halvparten av all sulfat som dannes fra antropogen SO_2 produseres i skydråper. Når det er mye H_2O_2 tilstede, bestemmes oksidasjonsraten av skyvannmengde, hastigheten til de prosessene som bringer luft inn og ut av skyene, samt hvor raskt H_2O_2 og SO_2 blir etterfylt (Iversen og Seland (2002)). H_2O_2 forbrukes jo i denne prosessen, men produseres i gassfase-reaksjoner som krever OH som selv blir fotokjemisk produsert ifølge



1 SENTRALE SKYFYSISKE BEGREPER

Figur 2-4 viser prosentandel av a1- og a3-moden i forhold til totalt internt blandet sulfat, BC og OC. Disse figurene er midlet over ett år, og det er tydelig at a3-moden utgjør et større bidrag enn a1-moden overalt med unntak over tørre områder på lavere bredder. På midlere og høyere bredder er det mer skyvann og dessuten en større andel av tiden med mindre intens lys og dermed mindre OH.



Figur 2-4: Andel av a1- og a3-moden i forhold til totalt internt blandet sulfat, BC og OC (totalt integrert gjennom hele atmosfæren).

1 SENTRALE SKYFYSISKE BEGREPER

Det er verdt å nevne at en økning av oksidasjon i skydråper minker den totale konsentrasjonen av sulfat i atmosfæren fordi mindre SO_2 er tilgjengelig for oksidasjon i klarluft (a1-moden), som er mer effektiv med hensyn på å øke konsentrasjonen av sulfat i atmosfæren (*M.C. Barth et al., 2000*). Dette skyldes at a3-moden som dannes i skyer er sterkere utsatt for utvasking med nedbør.

2 Beregningene i CCM-Oslo

NCAR CCM3 (Community Climate Model, versjon 3.2) er en global klimamodell for atmosfæren (Iversen og Seland (2002); Kirkevåg og Iversen (2002); Kirkevåg et al. (1999; 2005)). Oppløsningen er T42 med 18 nivåer opp til 10 hPa. Hvert tidsskritt har en lengde på 20 min og strålingsfluks-tettheter oppdateres hver time. Jeg har brukt en utvidet versjon av denne modellen som kalles CCM-Oslo. Modellen inneholder en beregnet livsytklus for viktige antropogene aerosoler som sulfat, BC og OC (Iversen og Seland (2002; 2004)). Den inneholder også foreskrevne konsentrasjoner av naturlige primære aerosoler ("bakgrunnsaerosoler", hovedsaklig bestående av sjøsalt og mineralstøv), parameterisering av størrelsesfordelinger, optiske egenskaper og evne til å danne CCN. Dermed kan beregning av direkte og indirekte strålingspådriv foretas (Kirkevåg og Iversen et al. (1999; 2002; 2005); Kristjansson (2002)). Jeg bruker en nylig oppdatert versjon som har levert data til det internasjonale AeroCom-prosjektet for sammenlikning av modeller (Kirkevåg et al. (2005)). Størrelsesfordelinger går ut fra standard fordelinger for bakgrunnsaerosolene som gjennom fysiske og kjemiske prosesser kan gi nye fordelinger med internt blandede partikler. Gitt en bakgrunnsfordeling beregnes modifiserte størrelsesfordelinger etter pålegg av sulfat, BC og OC gjennom kondensasjon, koagulasjon og kjemiske prosesser i skydråper. Deretter beregnes opptak av vann ut fra eksisterende relativ fuktighet og partiklenes hygroskopisitet. Ut fra dette kan optiske egenskaper beregnes fra Mie-teori, og ved en antatt realisert overmetning kan konsentrasjonen av CCN og skydråper beregnes. I tillegg estimeres påvirkningen disse endringene har på de optiske egenskapene til skyer.

2.1 Bakgrunnsaerosolene

I CCM-Oslo kan SO_4 , BC og OC, via de tre nevnte prosessene kondensasjon, koagulasjon og skydråpekjemi, blandes internt med antatte primære bakgrunnsaerosoler. Det er fem ulike typer bakgrunnsaerosoler med geografisk fordeling som avhenger av aerosolkildene. Disse typene klassifiseres som kontinental, marin, ørken, arktisk og antarktisk bakgrunn. Hver av dem er satt sammen av et bestemt antall moder med log-normal størrelsesfordeling og ulike konsentrasjoner av partikkelantall (cm^{-3}). Disse beskrives nærmere i delkapittel 2.3.

For å beskrive det store spennet av størrelser som aerosolene utgjør brukes i utgangspunktet multi-modale log-normale størrelsesfordelinger (Kirkevåg og Iversen (1999)):

$$\frac{dN(r)}{d \log r} = \sum_k \frac{dN_k^{\text{mod}}(r)}{d \log r} \quad (2.1)$$

der $N(r)$ er antallskonsentrasjon og r er partikkelradius. Indeks k identifiserer hver mode som er gitt ved

$$\frac{dN_k^{\text{mod}}(r)}{d \log r} = \frac{N_k}{\sqrt{2\pi} \log \sigma_k} \exp \left\{ -\frac{[\log(r/r_k)]^2}{2(\log \sigma_k)^2} \right\} \quad (2.2)$$

der for hver mode k , N_k er antallskonsentrasjonen, r_k er median partikkelradius og $\log \sigma_k$ er standardavviket til $\log r$ (σ_k er geometrisk standardavvik, som er dimensjonsløs). Vi antar i utgangspunktet at aerosolene dekkende beskrives innenfor et radiusintervall mellom 0.001 μm til 20 μm . De aller minste partiklene bidrar lite til den totale spredningen og absorpsjonen av stråling som aerosolene utøver, mens de største har meget kort levetid på grunn av avsetning gjennom gravitasjon. Det betyr at fordelingen i streng matematisk betydning ikke er normalisert, avviket betraktes som ubetydelig ($\leq 0.3\%$) (Kirkevåg og Iversen (1999)).

N_k antas å variere med høyden ifølge

$$N_k(p_0) = N_k(p_0) \left(\frac{p}{p_0} \right)^q,$$

der p og p_0 er henholdsvis aktuelt lufttrykk og lufttrykket ved bakken, og eksponenten q varierer med hensyn på bakgrunnstype i tillegg til å ta hensyn til topografien (Kirkevåg og Iversen (2002)). Sistnevnte gjøres ved å anta at det er to høyderegimer, henholdsvis ”nedre” og ”øvre”. Ulike $N_k(p_0)$ brukes for hvert høyderegime for best å modellere modenes variasjon med høyden:

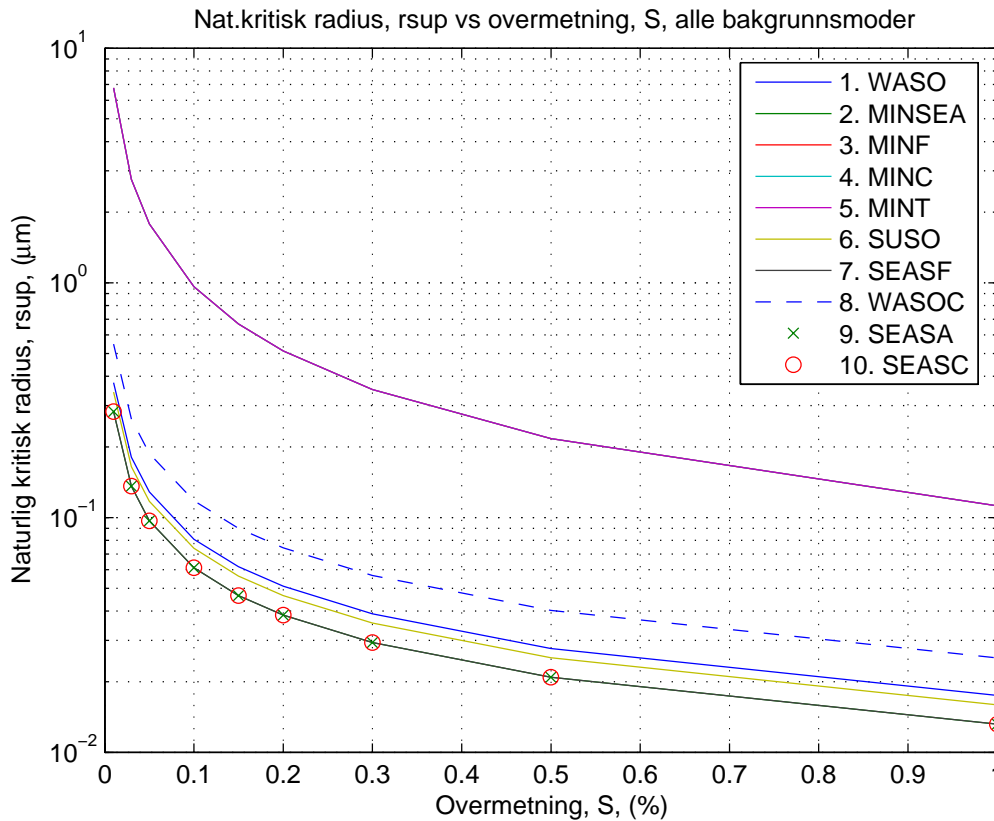
$$N_k^{\text{øvre}}(p) = N_k^{\text{nedre}}(p_0) \left(\frac{p_t}{p_0} \right)^{q_{\text{nedre}} - q_{\text{øvre}}},$$

der p_t representerer en verdi for trykket som markerer overgang mellom nedre og øvre regime (Kirkevåg et al. (2005)). Verdiene for $N_k^{\text{nedre}}(p_0)$ er gitt for hver mode. Tabell 2-1 (Kirkevåg og Iversen et al. (2005)) definerer og viser valgte parameterverdier for de maksimalt ti ulike modene hver type av bakgrunnsaerosoler maksimalt kan består av i CCM-Oslo.

Tabell 2-1: De 10 modene bakgrunnsaerosoler i CCM-Oslo kan bestå av. Modene merket * brukes ikke i denne studien.

Modenummer (k) og navn	Median radius, r_k (μm)	Standardavvik, $\log \sigma_k$	Massetetthet, ρ_k (10^3 kg cm^{-3})	Referanser
1. WASO*	0.0212	0.35	1.8	Köpke et al.
2. MINSEA	0.0931	0.1975	2.5	Köpke et al.
3. MINF	0.088	0.1824	2.6	Dubovik, Köpke et al.
4. MINC	0.83	0.2649	2.6	Dubovik, Köpke et al.
5. MINT	0.64	0.2610	2.6	Dubovik, Köpke et al.
6. SUSO	0.0695	0.3075	1.7	Köpke et al.
7. SEASF	0.05	0.2476	2.2	Hoppel, Frick, Smirnov et al.
8. WASOC*	0.0212	0.35	1.5	Köpke et al.
9. SEASA	0.209	0.3075	2.2	Köpke Ghan et al., AEROCOM
10. SEASC	1.75	0.3075	2.2	Köpke et al.

Figur 2-1 viser naturlig kritisk radius, r_{sup} , plottet mot overmetning S for alle bakgrunnsmodene (uten noe pålegg), der r_{sup} er den kritiske radien for CCN-aktivering. Det er tydelig at mode 1-5 har høyere verdier for den naturlige kritiske radien for gitte overmetningsverdier i forhold til mode 6-10 (når ikke alle kurvene er med, er det fordi plottene er identiske, som er tydelig for mode 1-5). Lave verdier for $r_{sup}(S)$ indikerer at moden er hygroskopisk, noe som er typisk for sjøsalt.



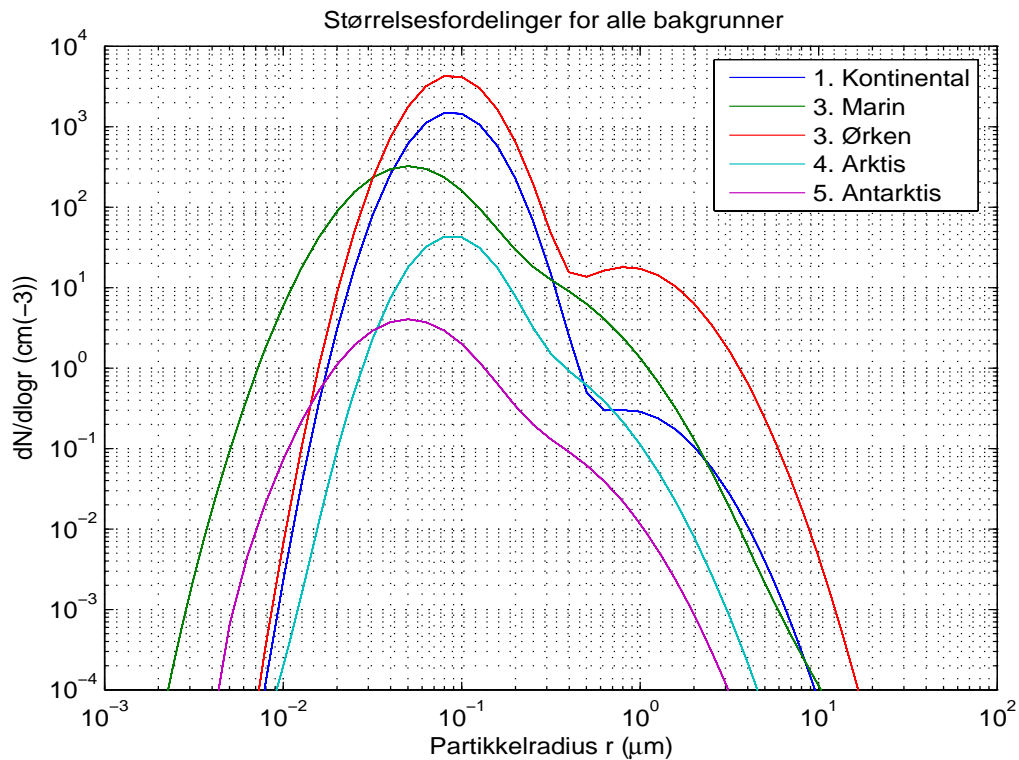
Figur 2-1: Naturlig kritisk radius, r_{sup} , plottet mot overmetning, S , for alle bakgrunnsmodene.

Tabell 2-2 viser hvilke moder hver bakgrunn består av i denne studiens versjon av CCM-Oslo. Kontinental, ørken og antarktisk bakgrunn utgjøres av forholdsvis store andeler av MINF-moden, mens marin og antarktisk bakgrunn domineres av SEASF-moden. Dette er viktige egenskaper som er tillagt vekt ved valg av nye valg av r_c for partikler assosiert med sulfatproduksjon i skydråper (kap 3).

Tabell 2-2: Sammensetning av bakgrunnstypene.

Bakgrunnstype	Mode	$N(p_0)$ (cm^{-3})
<i>Kontinental</i>	MINF	700
	MINC	0.2
<i>Marin</i>	MINT	0.2
	SEASF	200
	SEASA	9.8
	SEASC	0.00016
<i>Ørken</i>	MINF	2000
	MINC	12
<i>Arktis</i>	MINF	20
	SEASA	1.0
<i>Antarktis</i>	MINT	0.00025
	SEASF	2.5
	SEASA	0.1

Figur 2-2 viser den multimodale størrelsesfordeling for hver av de fem bakgrunnstypene. Alle domineres av to lokale antallsmaksima har en bimodal fordeling hvor den første toppen er lokalisert omkring radius 0.05 - 0.1 μm og den andre ved 0.5 - 1 μm .



Figur 2-1: Størrelsesfordelinger for alle bakgrunnstypene brukt i modellen (antallskonsentrasjon plottet mot partikkelradius r).

2.2 Modifiserte størrelsesfordelinger

Bakgrunnsaerosolenes størrelsesfordeling i CCM-Oslo modifiseres av de tre prosessene som fører til intern blanding med aerosolpartikler som inneholder SO₄, BC og OC. Livssyklus-beregningene for disse aerosolkomponentene inkluderer ti kjemiske bestanddeler som transporteres; DMS (dimetylsulfid), SO₂, tre typer partikulært SO₄, tre typer BC, samt to typer OC, og dannet via ulike produksjonsmekanismer.

Sentralt i modifikasjonen av bakgrunnsaerosoler er overgang fra eksterne moder til internt blandede moder, slik som beskrevet i innledningen. Produksjonsmekanismene som danner ulike typer av SO₄ er klarluftsoksidasjon av SO₂ etterfulgt av nukleasjon av H₂SO₄ (damp) og selv-koagulasjon til aitenmodepartikler eller kondensasjon på eksisterende bakgrunnsaerosoler, koagulasjon av eksternt blandet partikulært H₂SO₄ med eksisterende bakgrunnsaerosoler eller skydråper, og oksidasjon av SO₂ i skydråper som deretter fordampes. Kondensasjon, koagulasjon og oksidasjon i skydråper modifiserer bakgrunnsaerosolene og danner intern blanding. I CCM-Oslo kalles disse prosessspesifikke SO₄-produktene, som alle er i akkumulasjonsmoden, henholdsvis a1-, a2- og a3-moden. I tillegg finnes det aitenmode-partikler av SO₄ som slippes ut direkte. Alle aitenmode-partikler antas blandet eksternt og behandles uavhengig av den interne blandingen. Hver mode som bakgrunnsaerosolene består av behandles individuelt slik at SO₄ legges atskilt på hver mode. På den måten kan beregningene gjøres for hver mode fordi vi vet hvordan SO₄-tillegget fordeles blant de ulike modene i bakgrunnsaerosolene (*Kirkevåg et al. (1998; 1999; 2002)*) Jeg har altså konsentrert meg om a3-moden hvor den kritiske radien r_c inngår.

Størrelsesfordelingen deles inn i 44 like store intervaller langs en logaritmisk akse for partikkelradius r der r går fra 0.001 μm til 20 μm . Lengden på intervallet er satt til $\Delta \log(r/\mu\text{m}) = 0.1$. Kontinuitetsligningen for $N_k(r,t)$,

$$\frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{\partial N_k(r,t)}{\partial \log r} \right) + \frac{\partial}{\partial \log r} \left(\frac{D \log r}{Dt} \frac{\partial N_k(r,t)}{\partial \log r} \right) = 0 \quad (2.3)$$

(*Kirkevåg et al. (1999; 2002)*) uttrykkes på en diskret form og løses iterativt ved å legge til små volumer av (NH₄)₂SO₄ til hver partikkel i bakgrunnsaerosolen innen et radius-intervall. Dette gjøres til all produsert sulfat i luftrommet er fordelt, slik at vi får en modifisert størrelsesfordeling. Når sulfat i a1-, a2- og a3-modene fordeles på bakgrunnsaerosoler følges prosedyren foreslått av *Chuang og Penner (1995)*. Mengdene som skal fordeles er produsert i livssyklusskjemaet i hver gitterrute i modellen og deles opp i inkremitter som iterativt modifiserer størrelsesfordelingen. Antall iterasjoner er I_{max} og er stort nok til at størrelsesfordelingen utvikler seg ”pent”.

Volumøkningen på grunn av tillegg av (NH₄)₂SO₄ der radien til en partikkel øker fra r til $r+\Delta r$, kan uttrykkes ved

$$V(r + \delta r) = V(r) + \delta V_{aq}(r) + \delta V_{cond}(r) + \delta V_{coag}(r) \quad (2.4)$$

Det andre, tredje og fjerde leddet representerer henholdsvis a3-moden (oksidasjon i skydråper), a1-moden (kondensasjon) og a2-moden (koagulasjon). For flere detaljer om disse utregningene henvises det til *Kirkevåg et al. (1999)*.

Etter at all sulfat er fordelt på de ulike modene, og den modifiserte størrelsesfordelingen er bestemt, beregnes den hygroskopiske veksten av aerosolene. Dette gjøres ved å bruke Köhler-ligningen på en form som eksplisitt inkluderer effekten av intern blanding av hygroskopisk og hydrofobisk materiale.

$$\ln\left(\frac{e_r}{e_{s,w}}\right) = \frac{2M_w\sigma_{s/r}}{RT\rho_w r} - \frac{M_w}{\rho_w} \frac{1}{\left[\left(\frac{r}{r_0}\right)^3 - 1\right]} \sum_{\kappa} v_{\kappa} \Phi_{s,\kappa} \frac{\rho_{s,\kappa} v_{s,\kappa}(r_0)}{M_{s,\kappa}} \quad (2.5)$$

(Kirkevåg *et al.* (1999)). Dette er representert i det andre leddet i ligning (2.5). $v_{s,\kappa}(r_0)$ volumfraksjonen av komponent κ med tørr-radius r_0 og våradius r . v_{κ} er antall ioner som komponent κ løser seg opp i, er er vanndamptrykket over en oppløst sfærisk partikkel og $e_{s,w}$ er omgivelsenes metningsvann damptrykk. R er den universelle gasskonstanten, T absolutt temperatur. M_w og ρ_w er henholdvis molekylær vekt og tetthet til vann, og $M_{s,\kappa}$ og $\rho_{s,\kappa}$ molekylær vekt og tetthet til internt blandet materiale fra κ 'te komponent. $\sigma_{s/r}$ er overflatespenningen ($\approx 0.076 \text{ Nm}^{-1}$). For flere detaljer henvises det til Kirkevåg *et al.* (1999).

I CCM-Oslo beregnes også optiske egenskaper til aerosolpartikler med modifisert størrelsesfordeling. Det er særlig tre optiske parametere som gjør seg gjeldende i programmet: *single scattering albedo*, $\tilde{\omega}$, *asymmetrifaktoren*, g og *ekstinksjonskoeffisienten* β_e . $\tilde{\omega}$ uttrykker forholdet mellom sprednings- og absorpsjonsegenskapene til en partikkel, g sier noe om spredningsretningen og β_e er total ekstinksjon på grunn av absorpsjon og spredning (for matematiske detaljer om disse parametrene og parameterisering av solstråling henvises det til Iversen og Kirkevåg (1999; 2002) og Chuang og Penner (1995)).

2.3 Bakgrunnstypene i CCM-Oslo

I atmosfæren finnes det utall av forskjellige typer aerosoler med ulike kjemiske sammensetninger, optiske egenskaper, størrelse, form og hygroskopisitet. Alle disse faktorene er med på å bestemme hva slags klimatiske følger økte utslipp av et bestemt stoff kan medføre. I CCM-Oslo har man valgt å gruppere bakgrunnsaerosolene i fem typer som tar hensyn til dette. Disse beskrives nedenfor.

2.3.1 Kontinental bakgrunn

Over kontinentene skiller man gjerne mellom urbane og rurale områder; sistnevnte med liten industriell aktivitet. I begge disse områdene spiller biogene kilder og biomasse-forbrenning en stor rolle. Med biogene kilder mener man utslipp av gasser produsert biologisk som i stratosfæren kan oksideres til sekundære partikler, i tillegg til primære i form av pollen, sporer og rester av planter og dyr i størrelsesorden $\sim \mu\text{m}$, samt bakterier, alger, sopp og virus i størrelsesorden $< \mu\text{m}$ (Hobbs (1993)). Når det gjelder biomasse-forbrenning er kildene både antropogene og naturlige, og kan være skogbranner (naturlige eller påsatte), sviing av åkrer, flyve-asje, som fremkommer ved forbrenning av for eksempel kull, og lignende. Karbon er en viktigs bestanddel i

aerosoler fra biomasse-forbrenning, og disse aerosolene kan være både primære og sekundære; de primære er i form av sot (BC) og organisk karbon (OC), mens de sekundære kan for eksempel være sekundært organisk karbon og sulfat (*Hobbs (1993)*). Antropogen forbrenning av fossilt brensel medfører utslipp av blant annet gasser som SO₂, NO_x og hydrokarboner som gjennom ulike kjemiske prosesser, deriblant oksidasjon, skaper sekundære partikler. Men sot, som består av primært BC og OC, produseres også ved forbrenning av fossilt brensel. NH₃ produseres antropogent fra landbruk og påvirker sekundær partikkeldannelse i atmosfæren.

I oppgaven har jeg konsentrert meg mye om fint mineralstøv (MINF-moden i CCM-Oslo), som har betydning for atmosfærens strålingsbalanse (*Tegen og Fung (1994)* og -kjemi (*Dentener et al. (1996)*, *Grini et al. (2002)*). Kildene til slike partikler er tørre områder, og de kan transporteres langt fra kildeområdene (*Carlson og Prospero (1972)*, *Rahn et al. (1977)*, *Duce et al. (1980)*, *Pacyna og Ottar (1989)*, *Prospero (1999)*, *Myhre og Stordal (2001)*). Redusert nedbør som følge av antropogen aktivitet kan videre øke konsentrasjonen av mineralstøv på grunn av flere tørre områder (*Myhre og Stordal (2001)*). De bringes opp i atmosfæren ved at støv som beveger seg like over bakken i overflatelaget blåses opp i grenselaget med vinden, noe som særlig gjelder i ørken-områder.

Vulkaner kan spille en forholdsvis stor rolle over endelige tidsrom, avhengig av størrelsen på utbruddet. Store, eruptive utbrudd kan føre til at partikler blir transportert til stratosfæren (her spiller SUSO-moden en viktig rolle), men for de fleste utbrudd forblir utslippene i troposfæren. Stoffene som slippes ut er primære partikler som støv og aske (SiO₂, Al₂O₃ og Fe₂O₃), samt sekundære partikler som er gjenstand for "gas-to-particle conversion" (*Hobbs (1993)*). De primære partiklene er for store til at de kan bli transportert over store avstander, men kan påvirke interkontinentalt. Eruptive vulkanutbrudd skjer som sporadiske episoder; derfor er det vanskelig å estimere utslippene framover i tid. Imidlertid er det mye vulkanisme som nærmest er kontinuerlige i et 10-100 års perspektiv.

I CCM-Oslo beregnes antropogene partikler ut fra utslipp. Det samme gjelder naturlige utslipp fra vulkaner og fra biogene svovel-kilder samt sekundært OC som er parameterisert som utslipp. Den kontinentale bakgrunnsaerosolen er derfor hovedsakelig satt sammen av to ulike mineralmoder, MINF og MINC, der konsentrasjonene er satt til henholdsvis 700 cm⁻³ og 0.2 cm⁻³ (*Kirkevåg et al., 2005*) (se tabell 2-2). Typisk for mineral-partikler er at de er mindre hygroskopiske i forhold til sjøsalt-partikler. Til gjengjeld er det forholdsvis mange aerosolkilder over land slik at partikkel-konsentrasjonen er forholdsvis stor.

2.3.2 Marin bakgrunn

I atmosfæren, et stykke unna kontinentale områder, er det stort sett aerosoler av marint opphav som utspiller sin rolle. Nettopp pga den store avstanden til industrielle områder over kontinentene, er aerosolfordelingen forholdsvis lik den preindustrielle fordelingen sammenliknet med den kontinentale fordelingen. Antallskonsentrasjonen er mye lavere enn over kontinentene, og ligger på mellom 100 og 300 cm⁻³. 90-95% av antallskonsentrasjonen utgjøres av partikler med radius $r < 0.6 \mu\text{m}$ (se figur 1-2), men disse utgjør bare omkring 5% av den totale aerosolmassen. De består hovedsakelig av sulfat som ikke er sjøsalt, men som er produsert av biogent dimetylsulfid (DMS) fra havet (*Brasseur et al. (1999)*). Av de store partiklene ($r > 1 \mu\text{m}$) spiller sjøsalt, som kommer fra fordampning av sjøsprøyt, en stor rolle. For at

transporten til atmosfæren skal skje må luft fraktes ned i havet slik at partiklene kan transporteres med luftbobler til overflaten for igjen å bli gjenstand for videre transport til atmosfæren ved hjelp av vind og sjøsprøyt. Lufttransporten til havet kan skje ved hjelp av regndråper, snøflak, produksjon av overmetning ved temperaturøkning m.m., og hvor mange partikler som når atmosfæren er avhengig av vindhastigheten. De fleste sjøsalt-partiklene er store, hygroskopiske partikler med størrelsesorden $\sim 100 \mu\text{m}$, men partikler så små som $0.03 \mu\text{m}$ er også funnet (*Hobbs (1993)*). Fordi sjøsalt-partiklene er store og svært hygroskopiske, blir de aktivert først og ”stjeler” overmetning slik at færre av de mindre partiklene får en sjanse til å bli aktivert. Resultatet er forholdsvis få skydråper. Dermed blir det mye vanndamp fordelt på hver dråpe, og sjansen for at de skal vokse seg store nok til å bli regndråper og falle som nedbør er stor; mye større enn over kontinentene hvor de mange aerosolene må konkurrere om vanndampen (*Rogers og Yau (1996)*).

I CCM-Oslo beregnes biogen produksjon av sulfat via DMS ut fra utslippstall. Derfor er den marine bakgrunnsaerosolen hovedsakelig satt sammen av sjøsaltmodene SEASF (200 cm^{-3}) og SEASA (9.8 cm^{-3}), samt mindre konsentrasjoner av MINT og SEASC.

2.3.3 Ørken bakgrunn

Ørkenområdene gjennomgår ekstreme kjemiske og fysiske værprosesser (f.eks. store døgnlige temperaturvariasjoner, ekstrem tørke og sandstormer). Ikke alle deler av ørkenen er like effektive som aerosolkilder; sanddyner inneholder bare 4% partikler med en størrelsesorden som gjør at vinden kan sørge for langtransport i atmosfæren, mens ”tørre daler” inneholder 57% av denne type aerosoler. Forholdsvis store partikler ($r > 0.6 \mu\text{m}$) er vanlig i ørkenen, men enkelte størrelsesfordelinger har et maksimum på rundt $0.1 \mu\text{m}$ (se figur 1-2). Strukturen til ørken-partikler varierer lokalt slik at det i teorien er mulig å finne ut hvilken kilde spor-elementer i atmosfæren kommer fra (*Hobbs (1993)*).

Observasjoner, for eksempel fra Atlanterhavet vest for Sahara, tyder på at ørkenstøv kan transporteres over store avstander, mens konsentrasjonen av sjøsalt-aerosoler innover land minker forholdsvis raskt (*Brasseur et al. (1999)*). Partikler med $r < 5 \mu\text{m}$ fra ørken er observert over marine områder ca 5000 km fra kilden. Denne lange transporten skjer ved at sandstormer løfter materiale over grenselaget, og ettersom temperaturprofilene er forskjellige over Afrika og havet, fanges dette materialet mellom to inversjoner slik at blanding forhindres samtidig med at støvet transporteres vestover (*Brasseur et al. (1999)*). Denne transporten er delvis tatt hensyn til i modellen (se delkapittel 2.4). Det er også slik at partikkelkonsentrasjonen i atmosfæren er langt større (en faktor på 10) over ørken enn over hav for samme vindhastighet fordi det tar lenger tid for partiklene å bli ”sluppet løs” fra vannet ved sjøsprøyt i motsetning til ørken hvor ørkenstøvet transporteres direkte til atmosfæren (*Hobbs (1993)*).

Ørkenaerosolen er på samme måte som den kontinentale bakgrunnen satt sammen av MINF og MINC, men konsentrasjonene er høyere; henholdsvis 2000 cm^{-3} og 12 cm^{-3} .

2.3.4 Polar bakgrunn

Med polar bakgrunn menes Arktis og Antarktis. Få observasjoner er gjort i disse områdene, men det finnes noen (bl.a. *Ottar et al.*, *Barrie et al.*, *Jaenicke og Schütz (1982)*, *Ito (1982)* og *Shaw (1986)*). Størrelsesfordelingene viser at aerosolene er gamle, det vil si at koagulasjon og avsetning har modifisert aerosolene over mange dager slik at akkumulasjonsmoden dominerer. I CCM-Oslo er en kombinasjon av mineral- og sjøsaltpartikler brukt i disse områdene med forholdsvis små antallskonsentrasjoner. Den arktiske aerosolen er satt sammen av MINF (20 cm^{-3}) og SEASA (1.0 cm^{-3}), mens den antarktiske bakgrunnen består av SEASF (2.5 cm^{-3}), SEASA (0.1 cm^{-3}) og noe MINT (0.00025 cm^{-3}).

2.4 Transporterte bakgrunnsmoder

I den virkelige atmosfæren foregår det transport av aerosoler på tvers av de geografisk avgrensede områdene som danner kilder for de ulike typene av bakgrunnsaerosoler definert i tabell 1-2. CCM-Oslo inkluderer ikke budsjettligninger for bakgrunnsaerosolene, men foreskriver konsentrasjoner og størrelsesfordelinger. Derfor defineres en såkalt kvasitransportert bakgrunnstype som delvis gjenspeiler adveksjonen av bakgrunnsaerosoler. I nyere versjoner av modellen (basert på NCAR CAM3) vil det bli en mer fullstendig behandling av bakgrunnsaerosolene tilsvarende de antropogene aerosolkomponentene. Her antar vi som en mellomløsning at enkelte mineralkomponenter kan transporteres over hav og dels inn i Arktis, mens enkelte sjøsaltkomponenter transporteres over kontinenter og dels inn i begge de polare områdene, slik som beskrevet i *Kirkevåg et al. (2005)*. Ingen kvasitransport antas å skje fra de polare områdene, og for transport inn til disse områdene antas dette dekket ved å anta en andel sjøsalt (SEASA) og mineralpartikler (MINT). I Antarktis antas sjøsaltmoden å avta fra kysten og innover sydpolplatået kvadratisk med avstanden.

Det er hovedsakelig MINF som transporteres fra land utover hav og SEASF fra hav inn mot land, og transporten antas å følge de dominerende storskala vindsystemene som følge av den generelle sirkulasjonen. Dermed antas transporten å foregå østover mellom 30° og 60° N og S og vestover mellom 0° og 30° N og S. Antallskonsentrasjonene antas videre å avta eksponentielt med avstanden fra kildeområdet som følge typisk av tørravsetning og nedbørsutvasking. Levetiden varierer fra 1.5 til 4.5 døgn avhengig av høyde over bakken og hyppighet av nedbør. I tillegg antas det at de transporterte modene kan koagulere med seg selv og med de primære aerosolene som allerede er tilstede og danne interne blandinger. For transport fra land til hav kan dermed MINF-aerosoler koagulere med SEASF-partikler eller med seg selv. Dette fører til dannelse av to nye moder; henholdsvis MINSEA- og MINT-moden. Det antas at MINSEA-moden fremkommer ved å blande én SEASF-partikkel per MINF-partikkel, og at én MINT-partikkel dannes per 885 MINF-partikler. Tilsvarende kan MINSEA-moden bli dannet over land som følge av transport av SEASF-partikler over land. For transport av MINF fra ørken, antas det at transporten kan skje helt til neste landområde. En mer fullstendig beskrivelse finnes i *Kirkevåg et al. (2005)*.

2.5 Mulige feil som skyldes inkonsistent valg av r_c

Antagelsene som er gjort i tidligere modellversjoner vedrørende størrelsen til sulfatpartikler som dannes i skydråper, overestimerer antagelig antallet CCN slik at det må brukes kunstig lave overmetningsverdier for å få dråpetall og dråpestørrelser i noenlunde overensstemmelse med målinger. Overestimatet dukker opp når vi antar en r_c som er mindre enn den naturlige kritiske radien r_{sup} til den aktuelle bakgrunnen i utgangspunktet.

I det følgende vil jeg illustrere hvordan en størrelsesfordeling modifiseres når sulfat produseres i skydråper (appendix A inneholder mer detaljer om dette). Jeg antar at all sulfat er i a3-moden (som altså dannes ved oksidasjon av SO_2 i skydråper) og at R er den radien en partikkel har etter at skydråpen har fordampet. Når sulfat legges på partikler som er store nok (dvs når $R > r_c$ dannes det et volum δV av sulfat per partikkel). Resultatet blir en forskyvning av størrelsesfordelingen mot større verdier av r , slik at det ikke blir igjen noen partikler i intervallet $r_c < R < r_c + \delta R(r_c)$ samtidig som antallet partikler med radius $R > r_c + \delta R(r_c)$ øker (her er $\delta R(r_c)$ økningen i radius til en partikkel med opprinnelig radius r_c). Det blir altså ingen endring i det totale antallet partikler; hvis vi lar $n_0(R)$ og $n(R)$ være antallet partikler per radiusenhet henholdsvis før og etter pålegg av sulfat, må

$$n(R) = n_0(R) \text{ for } R < r_c$$

$$n(R) = 0 \text{ for } r_c < R < r_c + \delta R(r_c)$$

$$n(R) = n_0(R - \delta R(R)) \text{ for } R > r_c + \delta R(r_c)$$

Se for øvrig delkapittel A.1.1. Et kritisk punkt i denne sammenheng er overmetningen. På grunn av turbulens og grov oppløsning i klimamodellen, er det umulig å beregne eksakt realisert overmetning. Det er også vanskelig å måle overmetning empirisk som nevnt tidligere.

Vi antar at det før produksjon av sulfat i skydråper var en realisert overmetning S_0 som aktiverte alle partiklene med $r > r_{sup}(S_0)$, der r_{sup} er den naturlige kritiske radien for den gitte overmetningen S_0 , som definert tidligere. Dette er før sulfat er dannet, slik at S_0 bør være større enn verdien S etterpå hvis det hadde vært snakk om en helt ren bakgrunnsaerosol (og bakgrunnen er mindre hygroskopisk enn sulfat). Dette er imidlertid et forenklet bilde siden aerosolen før dannelse av sulfat i skydråpen ofte inneholder betydelige antropogene bidrag fra tidligere prosesser. Dermed er vår antagelse at $r_{sup}(S) = r_c$. Hvis vi nå ser på konsentrasjonen av CCN, så får vi

$$CCN = \int_{r_{sup}[S]}^{\infty} n(R) dR .$$

Dersom r_c er satt for stor vil det totale antallet av CCN ikke bli påvirket fordi de samme partiklene ville uansett blitt CCN når r_{sup} er mindre:

$$CCN = \int_{r_{sup}[S]}^{r_c} n_0(R) dR + \int_{r_c}^{\infty} n_0(R) dR$$

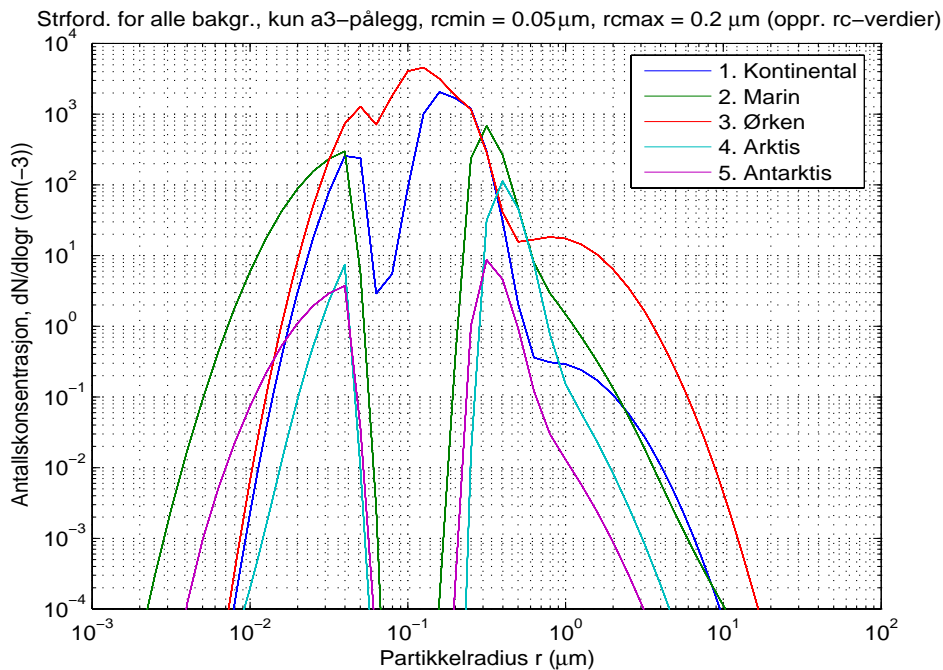
Dersom r_c er satt for liten derimot, vil vi få et overestimat av CCN-konsentrasjonen siden partikler med $r_c < R < r_{sup}(S)$ har vokst og blitt større enn $r_{sup}(S)$. Vi tenker oss at det finnes en radius R^* mellom r_c og $r_{sup}(S)$ slik at $R^* + \delta R(R^*) = r_{sup}(S)$, slik at

$$CCN = \int_{R^*}^{\infty} n_0(R) dR$$

Overestimatet av CCN blir da

$$CCN = \int_{R^*}^{r_{sup}(S)} n_0(R) dR$$

For å ta hensyn til en naturlig spredning av realisert overmetninger i en sky, antas at r_c i modellen varierer over et intervall $r_{c\min} < r_c < r_{c\max}$. Alle partikler større enn $r_{c\max}$ pålegges like stort sulfatvolum, mens det i intervallet er et lineært avtagende sulfatvolum med avtagende r_c . Figur 2-2 viser størrelsesfordelingene for bakgrunn + sulfat for det opprinnelige valgte r_c -intervallet i modellen basert på *Chuang og Penner (1995)*: $r_{c\min} = 0.05 \mu\text{m}$, $r_{c\max} = 0.2 \mu\text{m}$. Det er kun a3-moden som er lagt på slik at effekten kommer sterkt frem.



Figur 2-2: Størrelsesfordelinger for alle typer bakgrunnsaerosoler internt blandet med sulfat i a3-moden pålagt, for det opprinnelige r_c -intervallet: $r_{c\min} = 0.05 \mu\text{m}$, $r_{c\max} = 0.2 \mu\text{m}$.

3 Resultater og diskusjon

Det opprinnelige r_c -intervallet var et forholdsvis stort intervall, anbefalt av *Chuang og Penner (1995)*, der $r_{cmin} = 0.05 \mu\text{m}$ og $r_{cmax} = 0.2 \mu\text{m}$. Disse verdiene var antatt å samsvare med variasjonen i midlere oppdriftshastighet i skyer uten nedbør (omkring 10 cm s^{-1}), og med variasjoner i den totale aerosol antallskonsentrasjonen samt løselighet. Jeg har delt opp dette intervallet slik at det blir flere små intervaller og sammenlignet CCN(S), $r_{sup}(S)$ og størrelsesfordelinger for ulike r_c -intervaller. Også andre parametere spilte naturligvis en rolle i denne forbindelse: hva slags bakgrunnsmode som var valgt, totalt pålegg av sulfat, totalkonsentrasjon av aerosoler, hygroskopisiteten til bakgrunnen og overmetning. For å forstå noen av sammenhengene her, var det nyttig å se på blant annet størrelsesfordelingen og volumfraksjonen av sulfat for å forstå henholdsvis CCN(S) og $r_{sup}(S)$ for samme totalkonsentrasjon, pålegg av sulfat og r_c -intervall. Noen resultater fra dette arbeidet er presentert i appendix A.

Som vist nedenfor har jeg kommet frem til to alternative r_c -intervaller som er typisk for henholdsvis marin og kontinental bakgrunn. På bakgrunn av disse valgene har jeg laget to alternative tabellverk for parameterisering av CCN basert på de to nye r_c -intervallene. Disse tabellene er implementert i klimamodellen CCM-Oslo, og beregningene ble gjort ved de nasjonale HPC-anleggene (tungregneprosjektet NOTUR) ved NTNU i Trondhjem.

Jeg gjorde to kjøringer for hvert alternative r_c -intervall, én for preindustrielle og én for totale aerosolutslipp basert på 16 måneders beregninger fra september 2001, hvorav de fire første månedene er antatt som "spin-up"-tid, det vil si tiden det tar for å få en realistisk spredning av aerosolene. Beregningene er gjort off-line, dvs at meteorologien er den samme for alle resultatene. Strålingsføringene fra de nye aerosolberegningene påvirker altså ikke meteorologien i disse eksperimentene, slik at det da er det enklere å skille ut forskjellene i forhold til de konkrete endringene jeg har gjort i modellen.. Jeg fikk fire output-filer, og jeg har benyttet meg av plottprogrammet GRADS for å lage relevante figurer for analyse og sammenligning. Dette er gjort i delkapittel 3.2.

Under arbeidet med å komme frem til alternative r_c , dukket det opp interessante og uventede problemstillinger som fortjener å bli gjort rede for separat. Dette er gjort i Appendix A.

3.1 r_c -intervall og overmetning

For å komme frem til alternative valg av r_c , har jeg gått ut fra den naturlige kritiske radien r_{sup} til den rene bakgrunnsaerosolen som funksjon av overmetning S.

Jeg har gått ut fra MINF og SEASF som representanter for henholdsvis mineral-modene og sjøsalt-modene. I tillegg har jeg også tatt med MINSEA- og SUSO-modene der førstnevnte tar hensyn til koagulasjon mellom mineral- og sjøsalt-partikler som gjerne skjer ved kysten som resultat av vind. SUSO representerer bakgrunnsaerosolen i stratosfæren (samt deler av Antarktis).

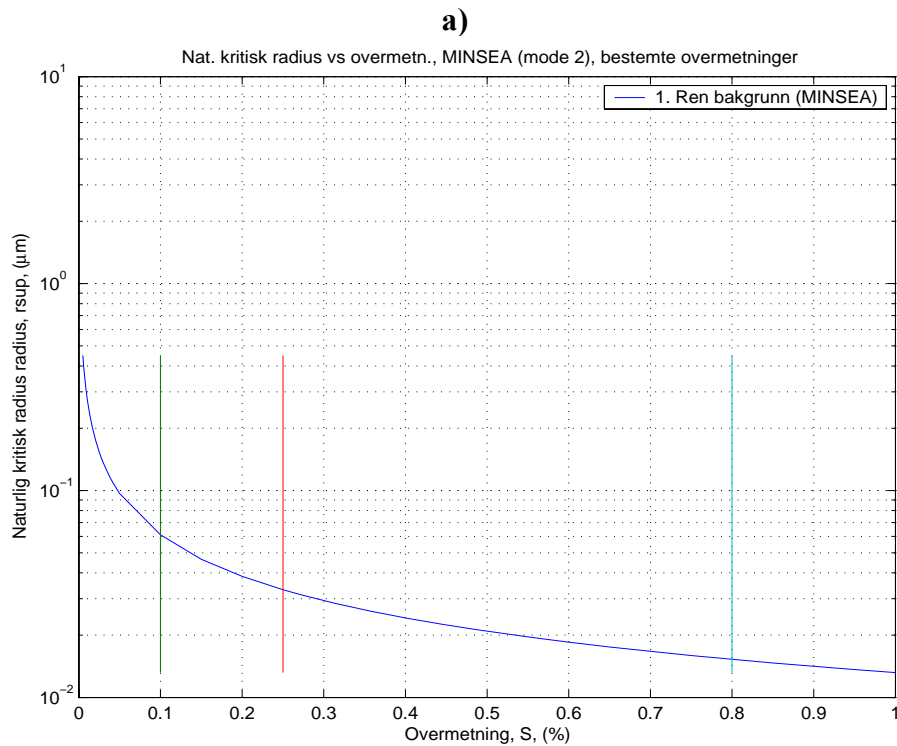
Når det gjelder overmetning har jeg basert meg på observasjonene fra Pruppacher og *Klett (1980)*. Det skiller da mellom kontinentale og marine konvekative

skyer, samt stratus-skyer (se delkapittel1.2). Mens de to førstnevnte som sagt gir noe ulike verdier, kan man regne med at overmetningen i stratus-skyer er lik over land og hav pga mye lavere vertikalhastigheter. Tabellen nedenfor viser de aktuelle verdiene jeg har brukt som utgangspunkt:

Tabell 3-1: Valgte overmetninger for å velge konsistente r_c -intervall.

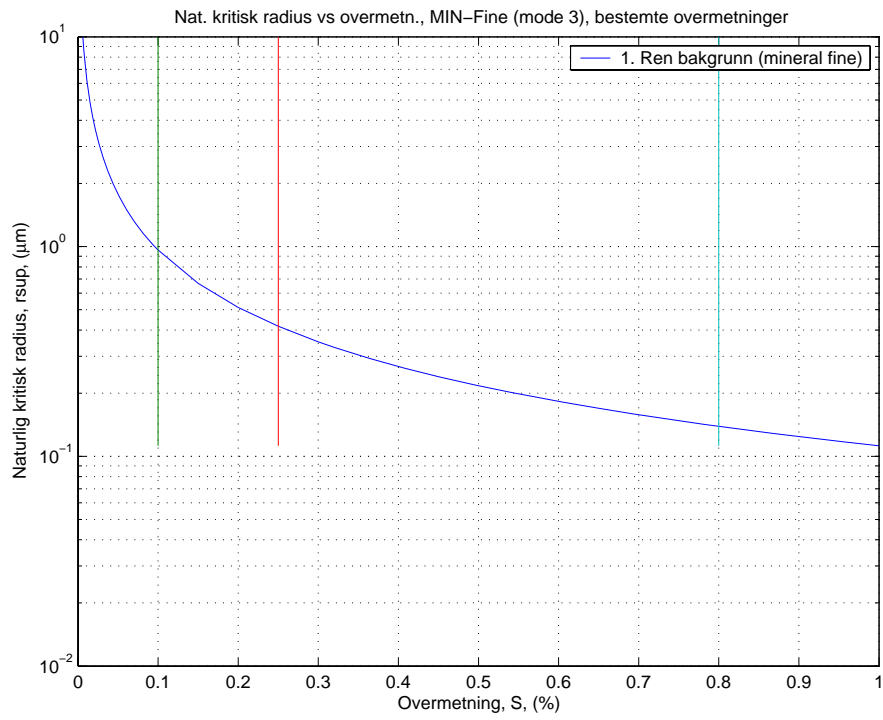
	Stratiforme skyer	Cumulus, marin	Cumulus, kontinental
Overmetning	0.1 %	0.25 %	0.8 %

Intervallene for r_c som passer best til overmetningene er lik r_{sup} -verdien for den aktuelle overmetningen. Figur 3.1 viser de aktuelle plottene. Generelt gjelder det at $r_{sup}(S)$ får en rask minking i r_{sup} for forholdsvis lave overmetninger.

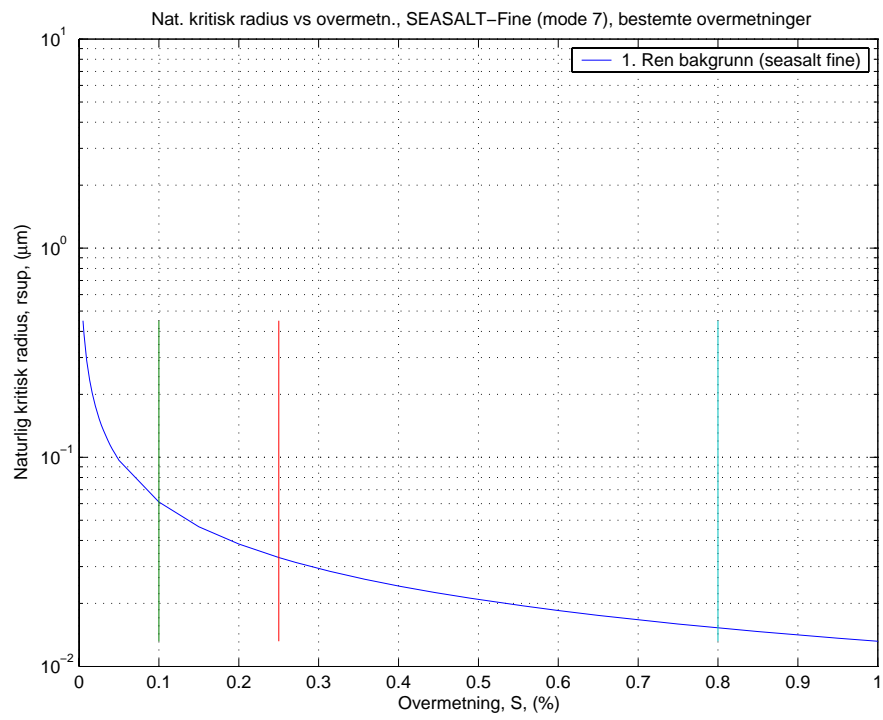


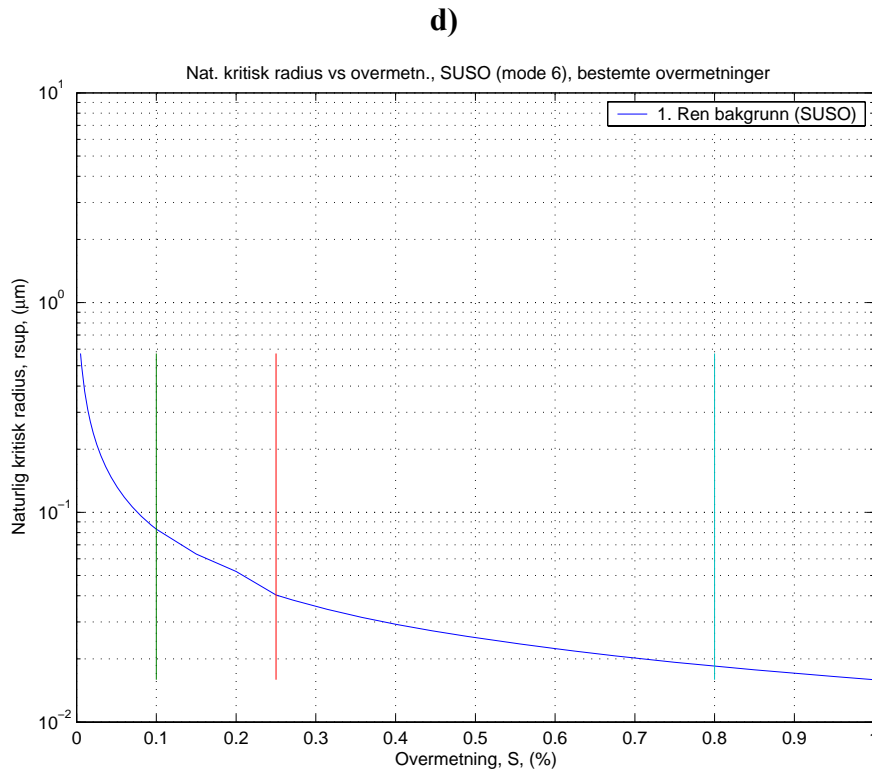
3 RESULTATER OG DISKUSJON

b)



c)





Figur 3-1: Naturlig kritisk radius som funksjon av overmetning for ren bakgrunn (**a**) MINSEA, (**b**) MINF, (**c**) SUSO, (**d**) SEASF). De lodrette strekene markerer de aktuelle overmetningsverdiene fra tabell 3-1.

Ved å lese av på y-aksen får man den kritiske radien for sulfat-pålegg i skydråper. Figuren viser at det ikke er stor forskjell i $r_{sup}(S)$ for MINSEA, SUSO og SEASF som alle har betydelige bidrag fra sjøsalt eller som hygroskopisk ligner på sjøsalt. MINF-kurven ligger derimot noe høyere på grunn av lavere hygroskopisitet. På grunn av forskjellen mellom kontinental og maritim bakgrunn er det nødvendig å velge ett sett med overmetnings- og r_c -intervall for hver av de to bakgrunnene. Det mest ideelle hadde vært ett sett for begge bakgrunnene, men pga den store ulikheten mellom marine og kontinentale r_c -verdier, er det nødvendig med to sett. Grunnen til denne forskjellen er hovedsaklig at det er ulik løselighet samt høyere typiske overmetninger i kontinentale konvektive skyer enn marine konvektive skyer. Dessuten er det nødvendig å smalne det opprinnelige r_c -intervallet ($r_c \in [0.05, 0.2] \mu\text{m}$) fordi dette intervallet bidro til å overestimere CCN-konsentrasjonen i visse tilfeller, som beskrevet ovenfor. Dette intervallet var også antatt å dekke både marin og kontinental bakgrunn. På bakgrunn av diskusjonen ovenfor og figur 3.1 er følgende verdier av r_{cmin} og r_{cmax} valgt som funksjon av de valgte overmetningsverdiene (tabell 3.2):

Tabell 3-2: Verdier for r_{cmin} og r_{cmax} for bestemte overmetninger for marin og kontinental bakgrunn.

Overmetning	0.1 %	0.25 %	0.8 %
r_{cmax}/r_{cmin} , marin bakgrunn, naturlig (μm)	0.06	0.033	
r_{cmax}/r_{cmin} , kontinental bakgrunn, naturlig (μm)	0.16		0.044

3.2 Forskjell mellom marine og kontinentale r_c -verdier, sammenligning med AeroCom B

Basert på resultatene har jeg laget plott for skydråpekonsentrasjon i 870 hPa-flaten (CDNC), effektiv dråperadius "sett fra satellitt" (REHANA) og kortbølget indirekte strålingspådriv (SWCF). I første omgang vil jeg se på generelle trekk for alle de tre parametrene med hensyn på atmosfæren slik den er i dag i forhold til i preindustriell tid, for deretter å diskutere forskjellene på grunn av ulike valg av r_c -verdier/-intervaller; i det følgende kalt marint og kontinentalt valg av r_c . Til slutt vil jeg sammenligne mine resultater med tilsvarende plott fra AeroCom B-eksperimentet som ble gjort med CCM-Oslo i oktober 2004, der det opprinnelige r_c -intervallet er brukt.

Tabell 3-3 viser de globale midlene for hvert av eksperimentene og for differanser mellom resultatene som representerer de ulike r_c -intervaller. Både det marine og det kontinentale eksperimentet gir høyere midlet skydråpekonsentrasjon, lavere midlet skydråperadius og større midlet strålingspådriv enn resultatene fra AeroCom B for total aerosol, men forskjellen mellom de kontinentale midlene og midlene fra AeroCom B er betraktlig mindre enn de tilsvarende forskjellene mellom marine midler og midler fra AeroCom B. Også for det antropogene bidraget (total minus preindustriell) er det det marine valget av r_c som gir størst forskjell fra AeroCom B. Årsaken til dette forklares nedenfor.

Tabell 3-3: Globale midler for alle resultatene analysert nedenfor.

	Globale midler					
	Total			Total – preindustriell		
	CDNC (cm^{-3})	REHANA (μm)	SWCF (Wm^{-2})	CDNC (cm^{-3})	REHANA (μm)	SWCF (Wm^{-2})
Marint eksperiment	123.4	10.60	-54.82	37.94	-1.122	-1.318
Kontinentalt eksperiment	112.5	11.02	-54.07	32.24	-0.9967	-1.158
AeroCom B	109.7	11.09	-53.93	30.26	-0.9271	-1.071

<i>Differanser (total aerosol)</i>	<i>CDNC (cm^{-3})</i>	<i>REHANA (μm)</i>	<i>SWCF (Wm^{-2})</i>
<i>Marin – kontinental</i>	10.85	-0.4159	-0.7576
<i>Marin – Aerocom B</i>	13.66	-0.4867	-0.8982
<i>Kontinental – Aerocom B</i>	2.811	0.0708	-0.1405

3.2.1 Generelle trekk

Jeg vil nå kommentere de helt generelle trekkene ved resultatene, felles for det kontinentale og det marine eksperimentet. Forskjellen mellom dem vil bli diskutert i delkapittel 3.2.2.

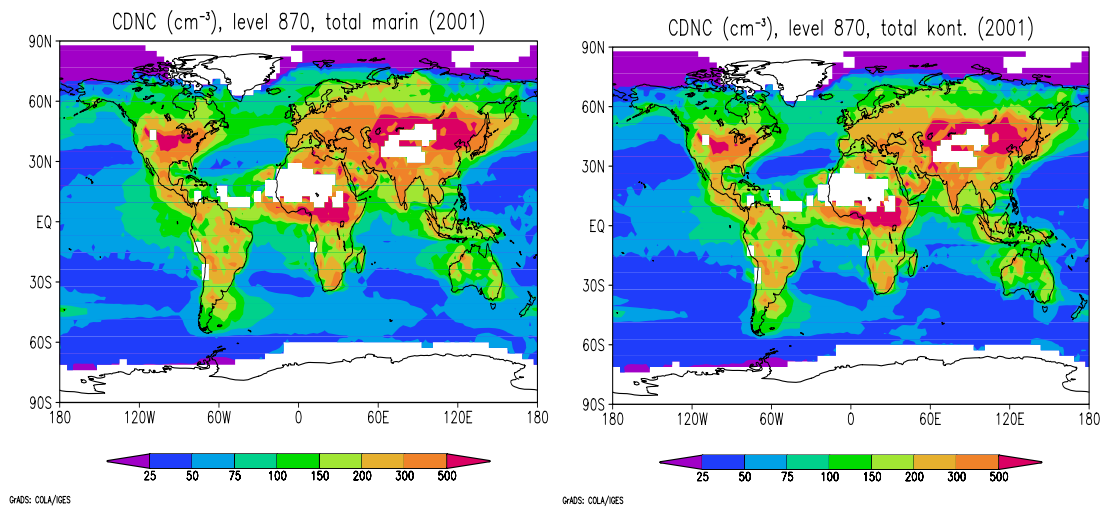
3.2.1.1 Total atmosfære

Figur 3-2 viser total-plott for henholdsvis skydråpekonsentrasjon, effektiv dråperadius og kortbølget indirekte strålingspådriv av skyer både for det marine og det kontinentale eksperimentet. De hvite områdene på plottene på figurene for CDNC og REHANA skyldes at det ikke finnes vannskyer over disse områdene. Dette er tydelig over store deler av det stabile høytrykksbeltet omkring 30° N samt over polene (særlig Antarktis), men årsaken til sistnevnte hvite områder er at skyene er hovedsakelig inneholder is og ikke vann.

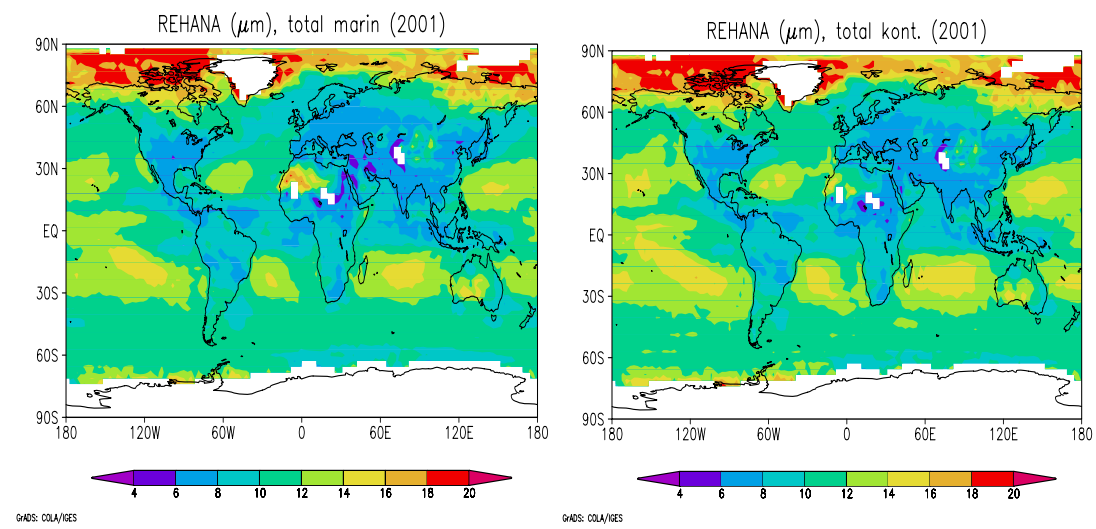
Nå er det som nevnt slik at det finnes flere aerosolkilder over land enn over hav. Over hav er det til gjengjeld store og hygroskopiske partikler. Dette gjenspeiles i figurene for både CDNC, REHANA og SWCF (total-figurene); vi ser at CDNC typisk er høyere over land enn over hav. Dette skyldes at vanndampen på land må fordeles på flere partikler slik at hver skydråpe får mindre tilgang til vanndamp. Dette gjør at dråpene blir mindre og REHANA blir dermed som forventet lavere over store deler av land enn over hav, selv om grensen mellom land og hav ikke er like tydelig her som for CDNC. For SWCF er det ingen klare skiller mellom land og hav, men det er tydelig at de høye pådrivene dukker opp der hvor det er mye skyer. Særlig gjelder dette ved 30-60° S (og tildels 30-60° N. Som sagt skyldes områdene med lite pådriv enten mangel på skyer eller isskyer.

3 RESULTATER OG DISKUSJON

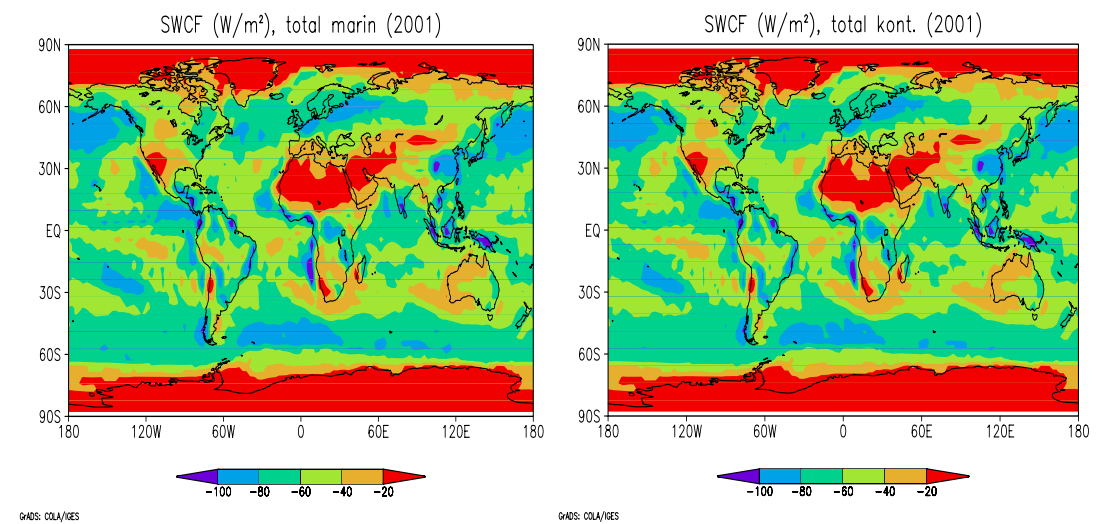
a)



b)



c)



Figur 3-2: Total-plott for marint (venstre) og kontinentalt (høyre) valg av r_c for **a)** skydråpetetthet (CDNC), **b)** effektiv dråperadius (REHANA) og **c)** kortbølget strålingspådriv av skyer (SWCF). Hvite områder i a) og b) skyldes manglende vannskyer..

3.2.1.2 Det antropogene bidraget

På figur 3-3 vises forskjellen mellom total og preindustriell aerosol, altså det antropogene bidraget som er kommet etter industrialiseringen (i det følgende indikert ved en Δ). Merk at det kan ha vært antropogene bidrag som ikke skyldtes industri i det preindustrielle tilfellet., for eksempel fra påsatte skogbranner og annen biomassebrenning. Det globale middelet for Δ CDNC og Δ REHANA er som forventet henholdsvis positivt og negativt. Dette er effekten av det antropogene bidraget (tabell 3-3). Dette er en indikasjon på at industriell aktivitet har bidratt til flere aerosoler, høyere skydråpekonsentrasjon og mindre skydråperadius. Fordi små dråper er mer effektive spredere enn store vil også det indirekte pådrivet (målt ved Δ SWCF) være større i dag; dermed er det globale middelet for Δ SWCF også negativt.

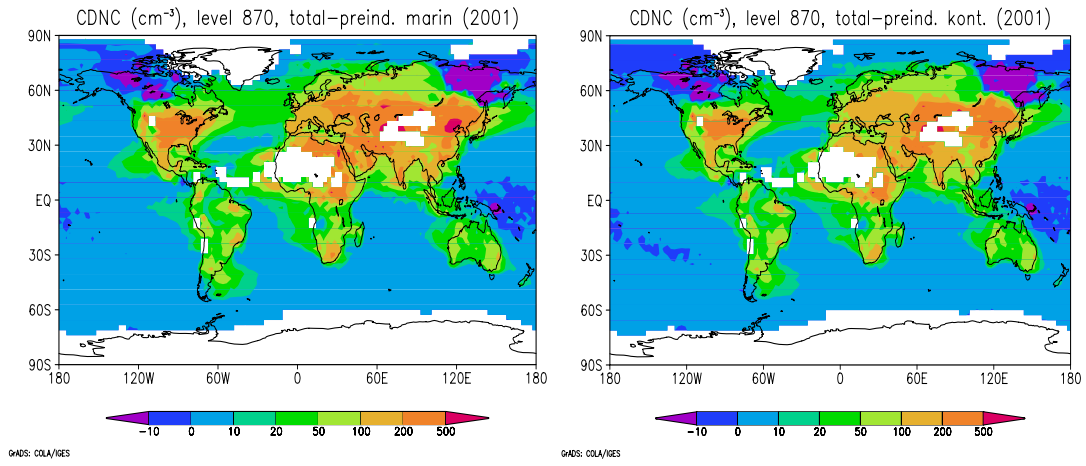
Forskjellen i Δ SWCF mellom land og hav ikke så tydelig som for Δ CDNC og Δ REHANA. Dette kan skyldes at skyene over land er ganske tette med høy skyalbedo og med skyfrie områder mellom seg. Over hav derimot, er det typisk få skyfrie områder, og over store deler befinner det seg ganske tynne skyer med lav albedo. Figur 2-5 viser at albedoen er mest følsom for endringer i skydråpekonsentrasjonen når den er omtrent 0.5. Disse skyene er mer følsomme med hensyn på en endring i skydråperadius og skyalbedo enn skyene over land (*Hobbs (1993), Kristjánsson (2001)*).

Felles for alle figurene er ”beltet” mellom Nord-Amerika og Europa med forholdsvis store negative og positive verdier av henholdsvis Δ REHANA og Δ CDNC i forhold til over hav forøvrig, dvs at skydråperadien og skydråpekonsentrasjonen er henholdsvis mye lavere og høyere over dette området i dag enn i preindustriell tid. Tilsvarende er forskjellen dermed som forventet forholdsvis stor og negativ over dette området også for det indirekte pådrivet. Grunnen til dette ”beltet” er transporten av MINF-partikler utover hav og SEASF-partikler innover land. Dette innebærer at kontinentale aerosoler fra Nord-Amerika (hovedsakelig MINF-moden) transporteres et stykke østover over Nord-Atlanteren. Den samme tendensen kan skimtes også ved andre kystområder, f.eks ved vestkysten av Mellom-Amerika og Sahara, samt østkysten av Syd-Amerika. Tilsvarende ser vi den samme tendensen innover mot landområdene i Europa. De store og hygroskopiske sjøsalt-partiklene ”stjeler” ovemetningen slik at denne dermed reduseres, og det blir følgelig færre dråper her enn lenger inn østover. På samme måte som over hav, vil SEASF-partikler koagulere med MINF-partikler og danne MINSEA-partikler også over land. Dette er grunnen til at det ikke er noen distinkt grense mellom land og hav hva gjelder skydråpekonsentrasjonen, -radius eller strålingspådriv.

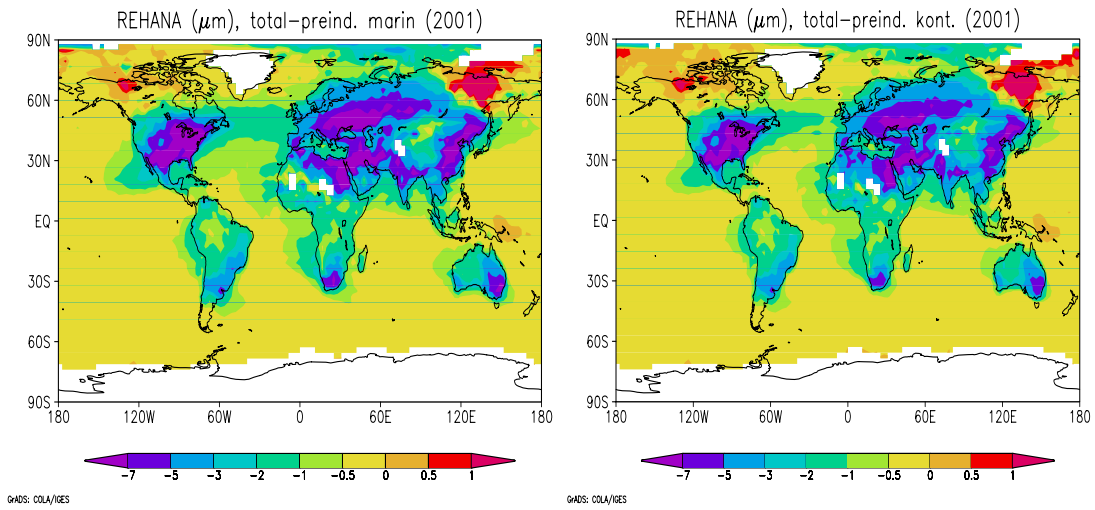
For SWCF er det slik at det er forholdsvis store negative forskjeller utenfor deler av vestkysten av Afrika og USA (dette kan til en viss grad også skimtes for REHANA og CDNC). Grunnen til dette er delvis transport av partikler vestover, og delvis fordelingen av skyer. Figur 3-4 viser at det over de nevnte områdene er forholdsvis mye skyer.

3 RESULTATER OG DISKUSJON

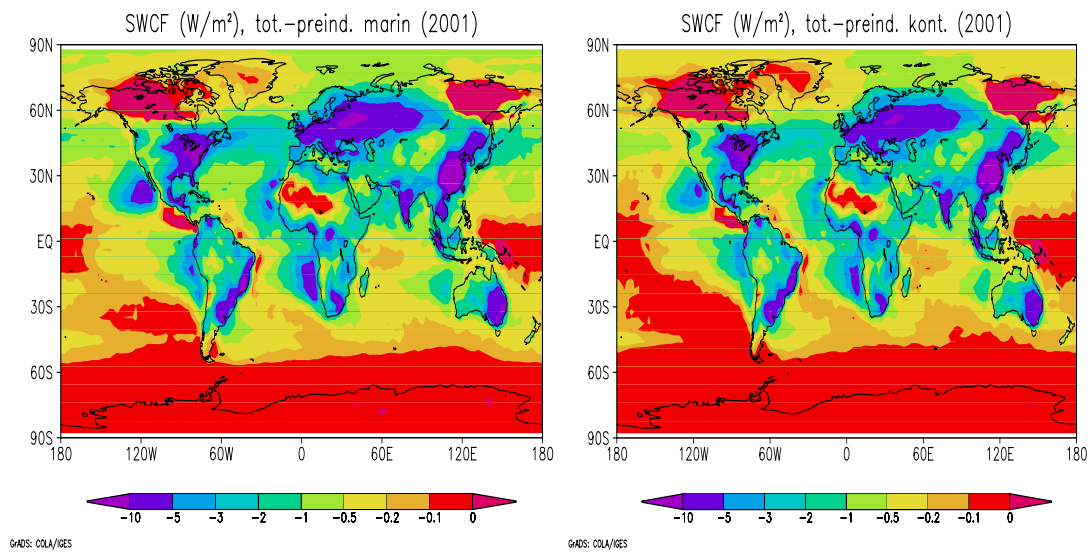
a)



b)

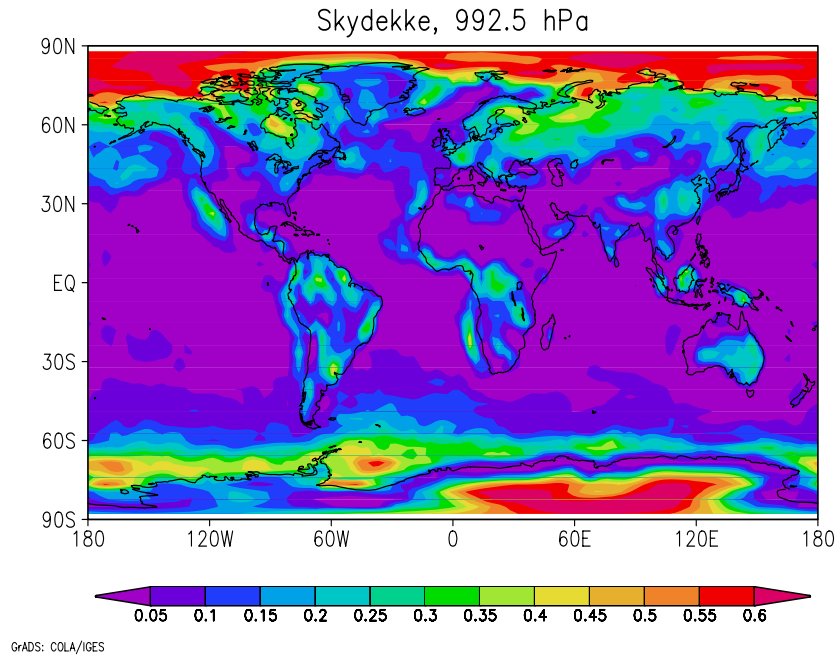


c)



Figur 3-3: Plott for total – preindustriell for marint (venstre) og kontinentalt (høyre) valg av r_c for a) skydråpetetthet (CDNC), b) effektiv skydråperadius (REHANA) og c) kortbølget strålingspådriv av skyer (SWCF).

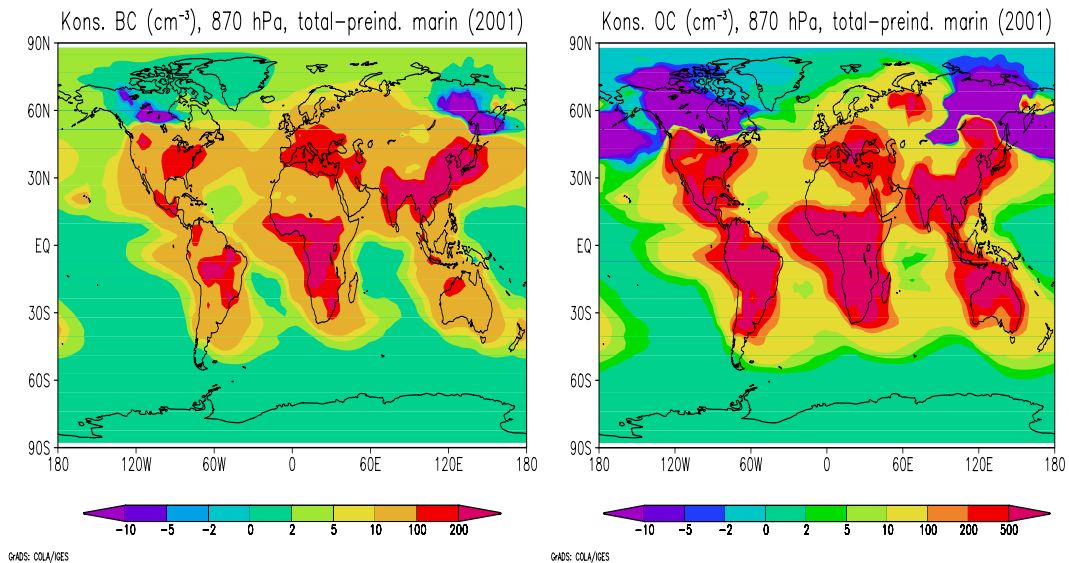
3 RESULTATER OG DISKUSJON



Figur 3-4: Gjennomsnittlig skydekke for 2001.

Over enkelte områder har imidlertid Δ motsatt fortegn enn det globale middelet. Ser vi i første omgang på områdene nord-øst i Sibir og Nord-Canada/Alaska er Δ CDNC negativ, mens Δ REHANA og Δ SWCF er positive. Dette indikerer at det i preindustriell tid var flere aerosoler i disse områdene, noe som gav opphav til flere CDNC og mindre effektiv skydråperadius, som igjen gav en større indirekte effekt. Grunnen til dette er at man har tatt i betraktning at disse områdene er forholdsvis kjente skogbrannområder, og at slike branner var en større aerosolkilde i preindustriell tid enn i dag. Figur 3-5 viser plott av antallskonsentrasjonen av nukleasjons mode BC og OC for total minus preindustriell aerosol (ettersom karbonholdige stoffer utgjør hovedkomponenten i denne kilden), og det er tydelig at begge parametrene er negative i dette området, slik at konsentrasjonen av disse stoffene var større i preindustriell tid enn i dag.

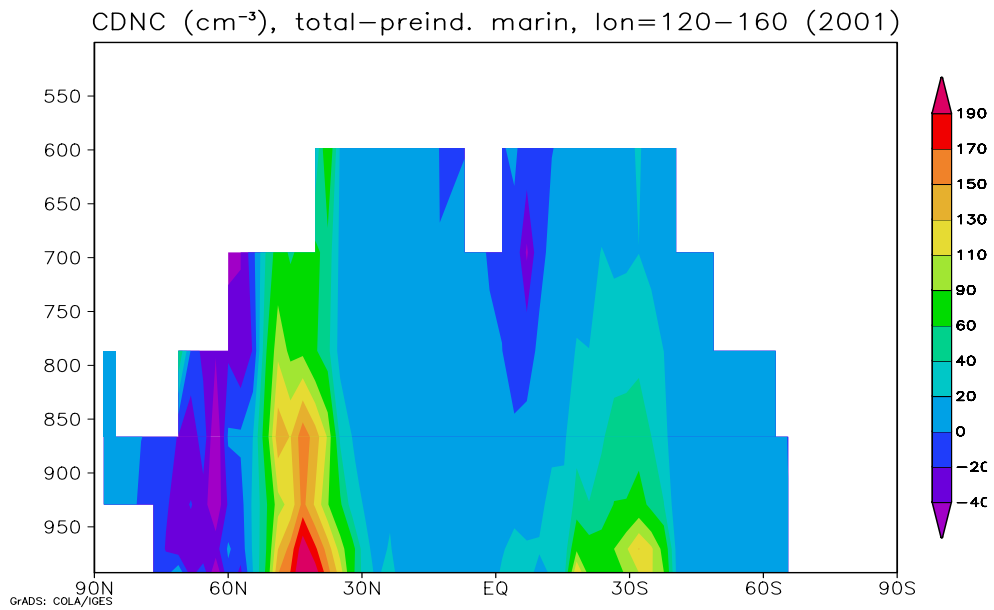
3 RESULTATER OG DISKUSJON



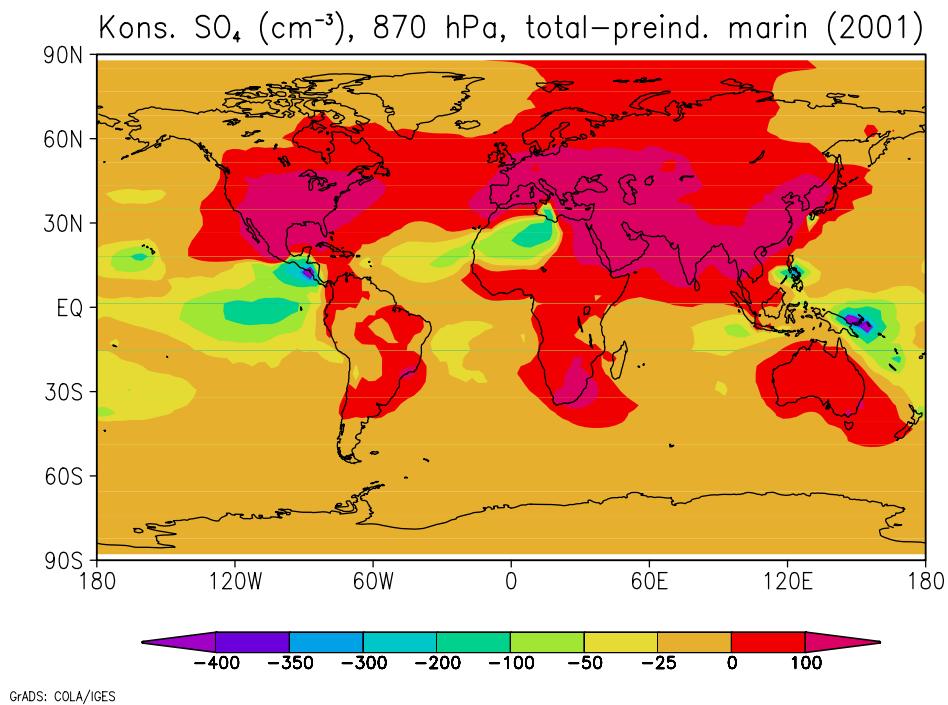
Figur 3-5: Det antropogene industrielle bidraget til konsentrasjon av henholdsvis BC og OC i 870 hPa.

Et tilsvarende område hvor Δ har motsatt fortegn enn middelet finnes i Stillehavet øst for Indonesia. Figur 3-6 viser vertikalplott av skydråpekonsentrasjonen midlet sonalt over lengdegradene $120^\circ - 160^\circ$ Ø slik at figuren spesielt får med Indonesia samt Nordøst-Sibir. Det er tydelig at det sistnevnte området nordøst i Sibir (mellom 60° og 90° N) strekker seg fra bakkenivå og opp over ca 700 hPa, mens det tilsvarende området øst for Indonesia ($0^\circ - 30^\circ$ S) er lokalisert høyere med mindre vertikal utstrekning, fra ca 800 hPa til over 650 hPa. Dermed er det ikke gitt at skogbranner også er årsaken til mindre skydråpekonsentrasjon i dette området. Det som er karakteristisk ved dette området på figur 3-3 a) er at det virker som om områdene med negativ Δ CDNC minker gradvis østover, som en ”plume” med negative verdier. Det virker derfor nærliggende at dette har en fysisk forklaring, og ikke er resultatet av en numerisk feil i modellen. Jeg gjorde også en test på det tilsvarende i bakkenivå (ikke vist her). De negative differansene dukket opp også her, men ikke i like stor grad. Dersom El Niño hadde vært årsaken til dette, ville det være nærliggende å forvente større negative differanser ved bakkenivå enn ved 870 hPa, ettersom transporten av luftmasser da går østover langs bakken ved $0^\circ - 30^\circ$ N og S. Dermed kan ikke årsaken knyttes direkte til dette fenomenet, men muligens til utslippene/konsentrasjonene av SO_4 , BC og OC. Figur 3-7 viser forskjellen mellom total og preindustriell tid for antallskonsentrasjonen av SO_4 i 870 hPa, og differansen er negativ blant annet over de østlige delene av Indonesia. Merk at områdene nordøst i Sibir og Nord-Canada ikke er like negative i dette nivået. Figur 3-8 viser det samme som figur 3-7, men nå som et sonalt midlet vertikalsnitt fra $130^\circ - 160^\circ$ Ø, hvor det er tydelig at de negative differansene av SO_4 -konsentrasjonen dukker opp i høyere nivåer over det aktuelle området. Figuren for det antropogene bidraget for BC og OC i 870 hPa viser at områdene for negative verdier ikke er på langt nær så store og utbredt som for SO_4 . I tillegg er disse områdene lokalisert noe vest, nærmere bestemt over Papua Ny Guinea, enn der de negative verdiene for SO_4 og CDNC er lokalisert. Til gjengjeld er disse differansene store og negative over Sibir og Canada, som forventet. Dermed er det sannsynlig at mindre SO_4 -konsentrasjon i dag kontra i preindustriell tid er årsaken til de negative CDNC-differansene øst for Indonesia.

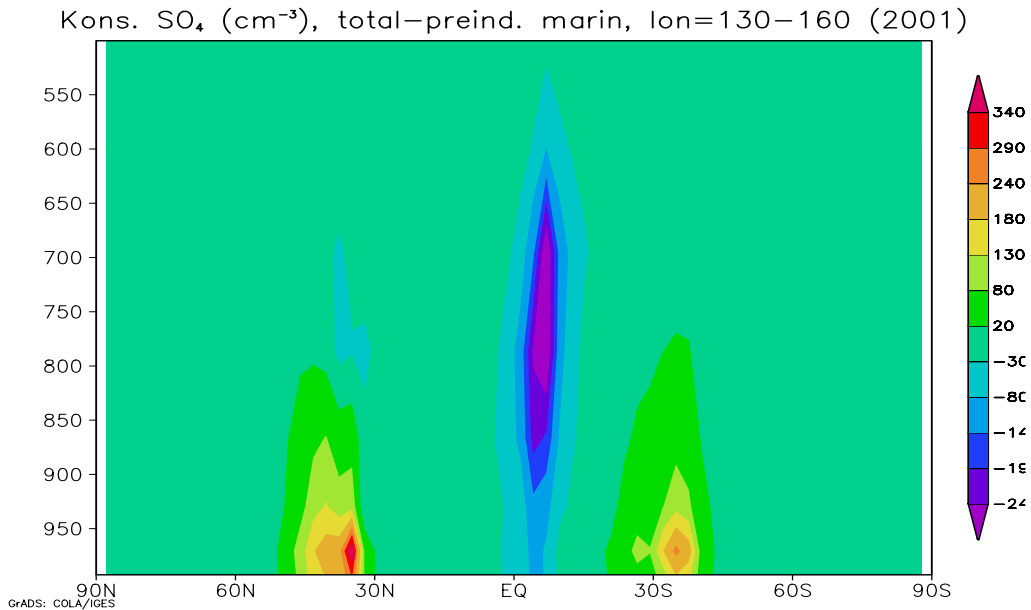
3 RESULTATER OG DISKUSJON



Figur 3-6: Sonalt middel mellom 120° Ø og 160° Ø for vertikalkonsentrasjon av skydråper.



Figur 3-7: Konsentrasjon av SO_4 i 870 hPa for total – preindustriell atmosfære.



Figur 3-8: Sonalt middel mellom 130°Ø og 160°Ø for vertikalkonsentrasjon av totalt SO_4 .

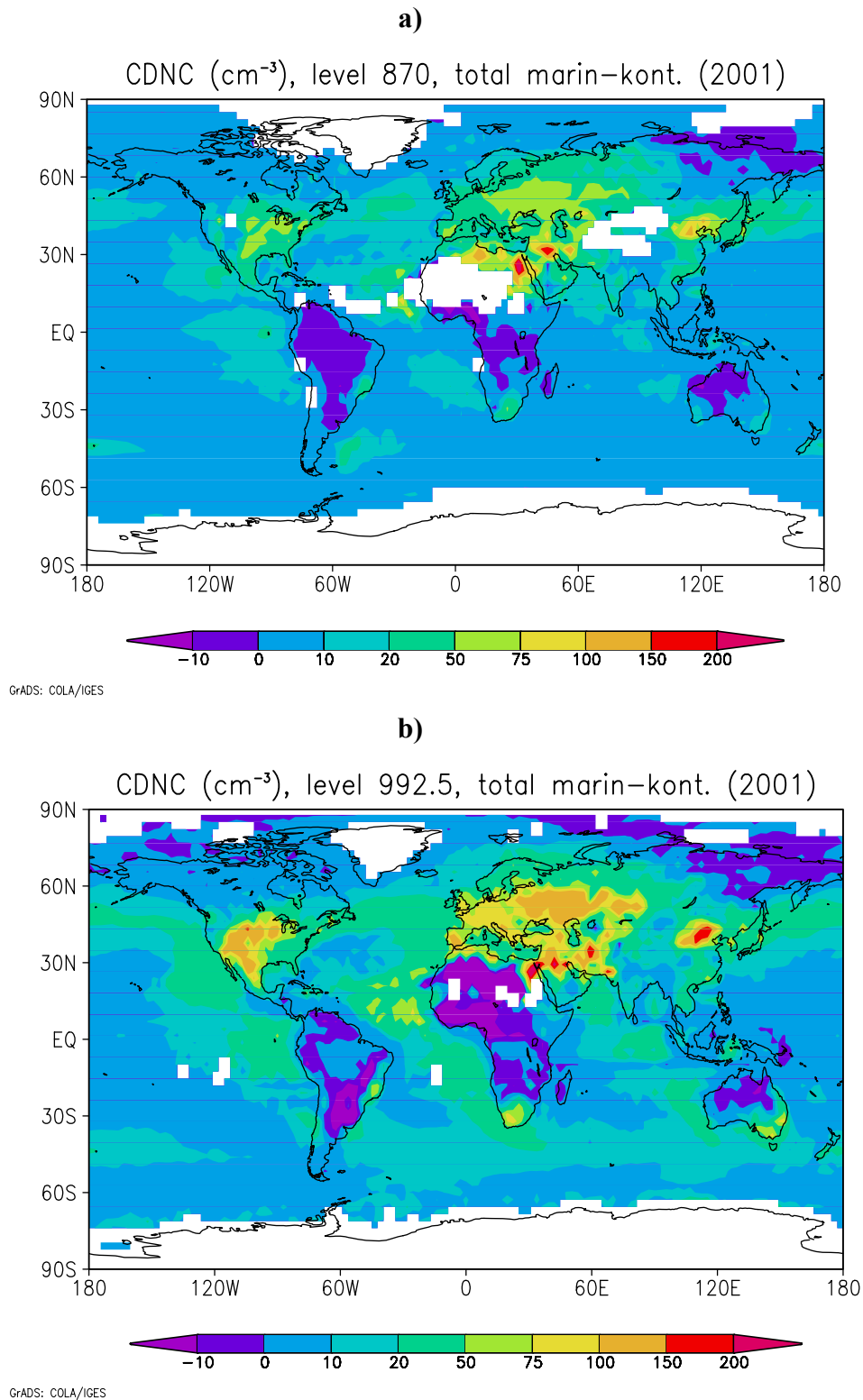
3.2.2 Forskjeller mellom marint valg av r_c og kontinentalt valg av r_c

I det følgende vil jeg gå litt dypere inn i hver parameter og se på hvilke følger de ulike valgene av r_c -intervall har i forhold til skydråpekonsentrasjon, -radius og den indirekte effekten. Det er i dette tilfellet nyttig å se på differansen mellom de marine og de kontinentale eksperimentene vist på figur 3-9 og 3-10.

Det globale middelet for CDNC, REHANA og SWCF er i dette tilfellet henholdsvis 10.9 cm^{-3} , $-0.42 \mu\text{m}$ og -0.76 Wm^{-2} (se tabell 3-3). Fortegnene på de tre parametrene er som forventet fordi den marine r_c er mindre og over et smalere intervall enn den kontinentale r_c . I det marine eksperimentet blir sulfat i a3-moden dermed fordelt på mindre partikler. Dermed vokser flere partikler og blir mer hygroskopiske på grunn av sulfat. Det siste gjelder spesielt for minerale bakgrunns-partikler som i utgangspunktet er lite hygroskopiske. Resultatet er at det blir flere skydråper for den gitte overmetningen, gjennomsnittlig dråperadius forskyves mot lavere verdier og det indirekte pådrivet blir større for det marine valg av r_c . Forskjellen er størst over land hvor det er mineralpartikler som dominerer, og hvor de største utslippene av svovelholdige forbindelser finner sted.

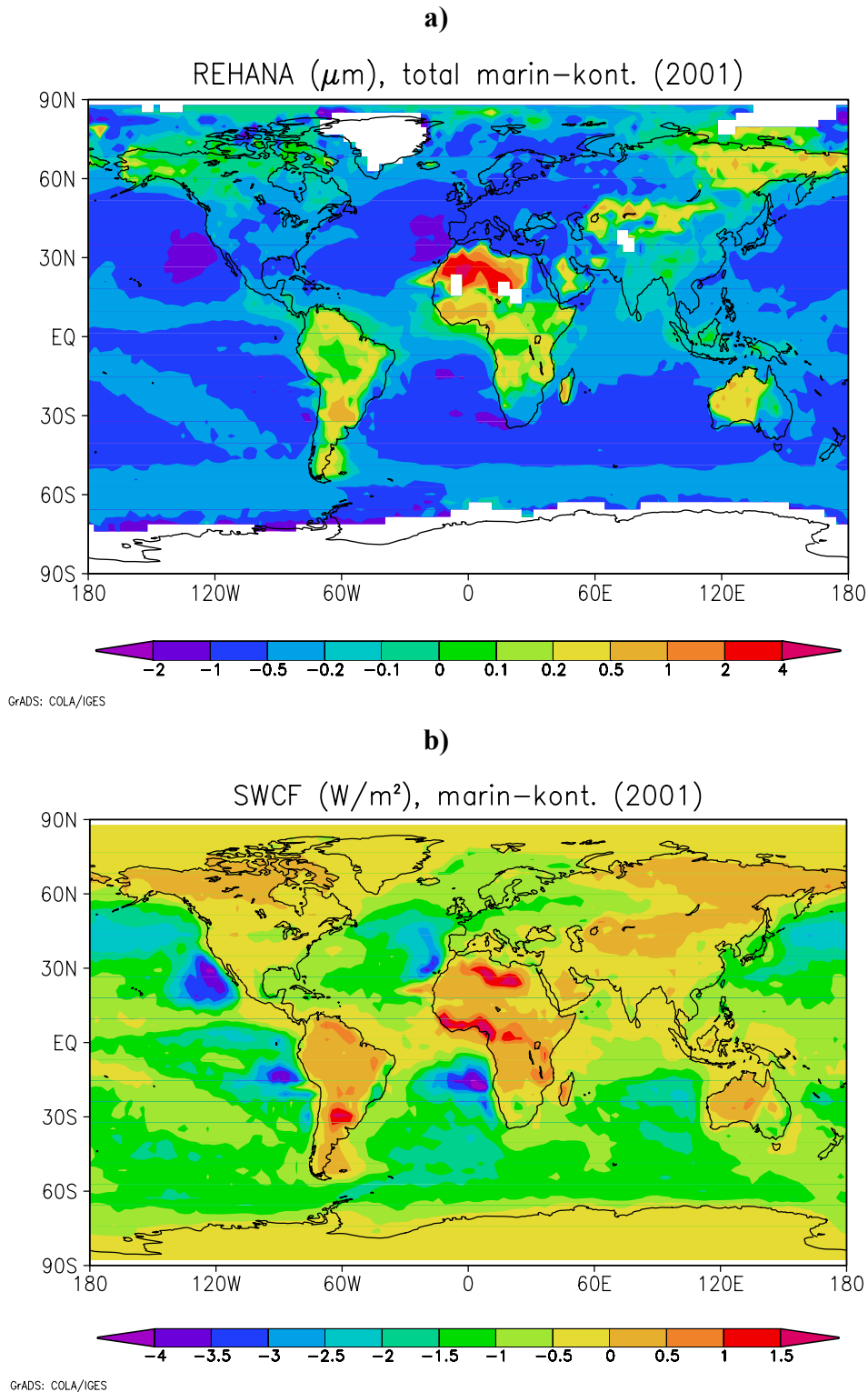
Over store deler av havområdene er forskjellen nær null, noe som dels kan skyldes at sulfatkildene er mindre over hav og at bakgrunnsaerosolene domineres av store og hygroskopiske partikler. Nær land foregår det som sagt transport av partikler til og fra landområdene slik at forskjellen blir større jo nærmere land man kommer.

3 RESULTATER OG DISKUSJON



Figur 3-9: *Differanse mellom marin total aerosol og kontinental total aerosol for CDNC for a) 870 hPa og b) 992.5 hPa (bakkenivå).*

3 RESULTATER OG DISKUSJON



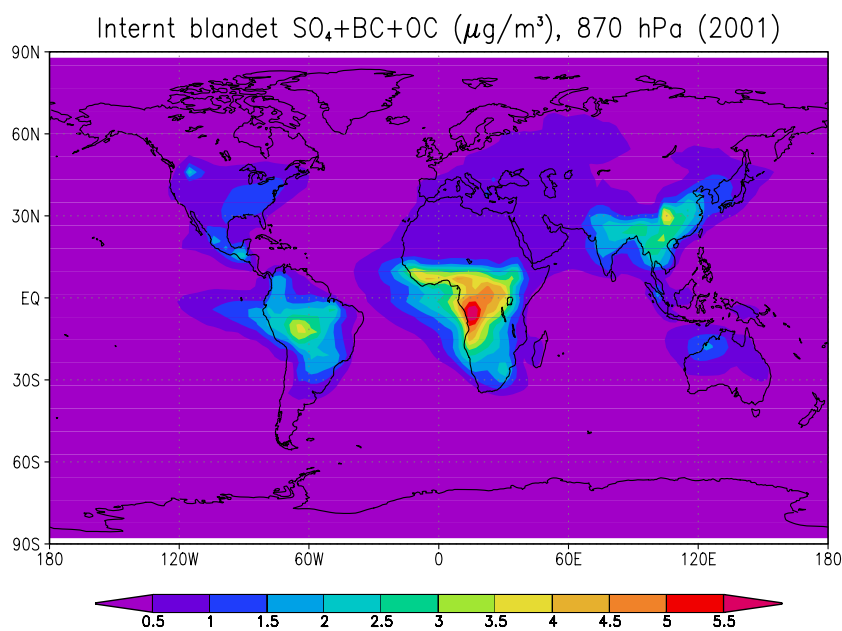
Figur 3-10: *Differanse mellom marin total aerosol og kontinental total aerosol for a) REHANA og b) SWCF.*

Det finnes også i dette tilfellet områder hvor differansen har motsatt fortegn enn middelet, blant annet områdene nordøst i Sibir, Nord-Canada og deler av Alaska, store deler av Sør-Amerika, sentrale deler av Afrika og nordvestlige deler av Australia (for alle parametrene). Det er ikke opplagt hvorfor dette skjer i disse områdene. Generelt vil lavere kritisk radius bidra til flere skydråper, slik at det mest plausible

3 RESULTATER OG DISKUSJON

ville være å forvente at differansen var positiv overalt. Figur 3-9 b) viser Δ CDNC ved bakkenivå og her virker det som om de negative verdiene er forskjøvet i forhold til høyere opp i 870 hPa; lenger mot nord i Afrika og vekk fra de sentrale delene av Brasil. I tillegg er de negative differansene noe større, men fortsatt små i forhold til de positive verdiene. Fordi kjøringene er gjort off-line er alle utslippene like store slik at årsaken ikke kan være mer utslipp i den kontinentale kjøringen. Figur 3-11 viser totalt internt blandet SO_4 (a1- og a3-moden), BC og OC i 870 hPa. Det er tydelig at konsentrasjonen er forholdsvis høy i tre av de nevnte områdene; Sør-Amerika, Afrika og Australia. De fire neste figurene (3-12 a) og b)) viser andelen av interne blandinger av henholdsvis SO_4 (a1), SO_4 (a3), BC og OC. Det er tydelig at andelen av SO_4 (a1 og a3) og BC er små, mens OC utgjør mesteparten av den totale interne blandingen i de nevnte områdene.

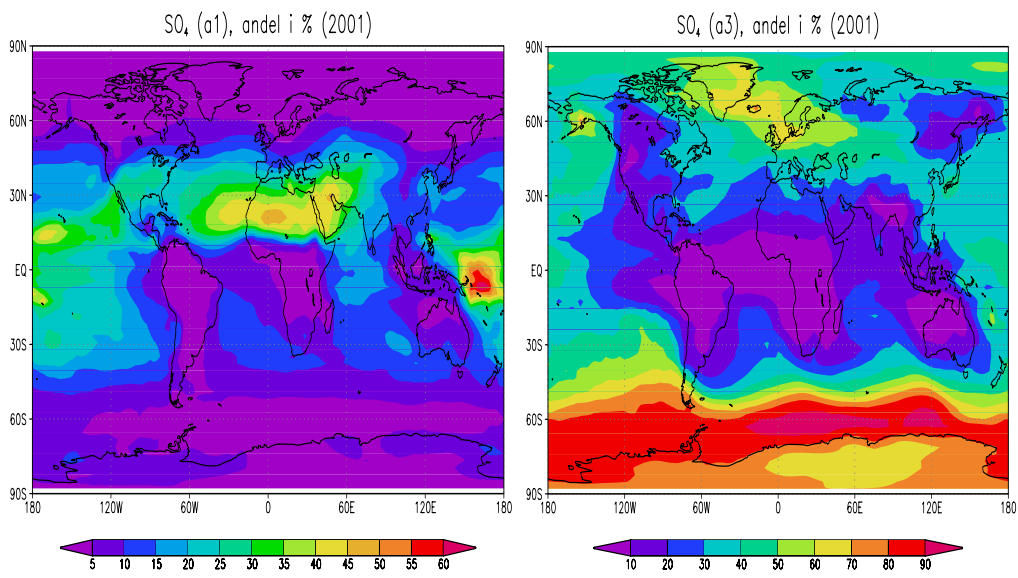
Når det gjelder CDNC, er de negative verdiene er svært små i forhold til de høyeste positive verdiene ($\sim -10 \text{ cm}^{-3}$ mot $> 200 \text{ cm}^{-3}$). Dermed virker det som at en numerisk feil i modellen oppstår i områder med lave andeler av SO_4 og BC i forhold til total intern blanding med henvisning til figur 3-12 nedenfor. Når det imidlertid gjelder REHANA og SWCF, er størrelsen til de største negative og positive verdiene faktisk i samme størrelsesorden. Dermed må dette ses på som en betydelig usikkerhetskilde hvis numerisk feil som følge av for lave andeler av BC og SO_4 er årsaken til dette. Mer om dette i forbindelse med forskjellen mellom mine eksperimenter og Aerocom B.



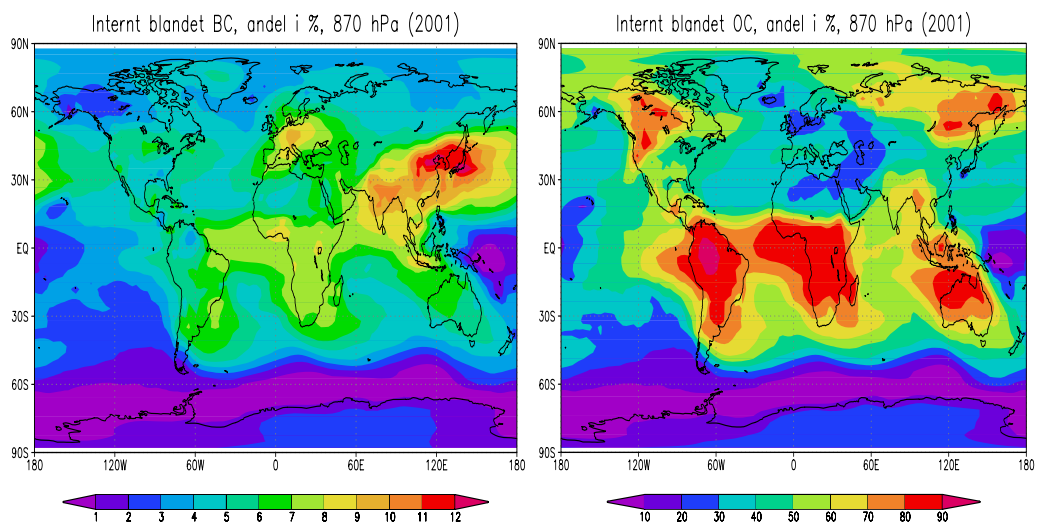
Figur 3-11: Totalt internt blandet SO_4 (a1+a3), BC og OC i 870 hPa.

3 RESULTATER OG DISKUSJON

a)



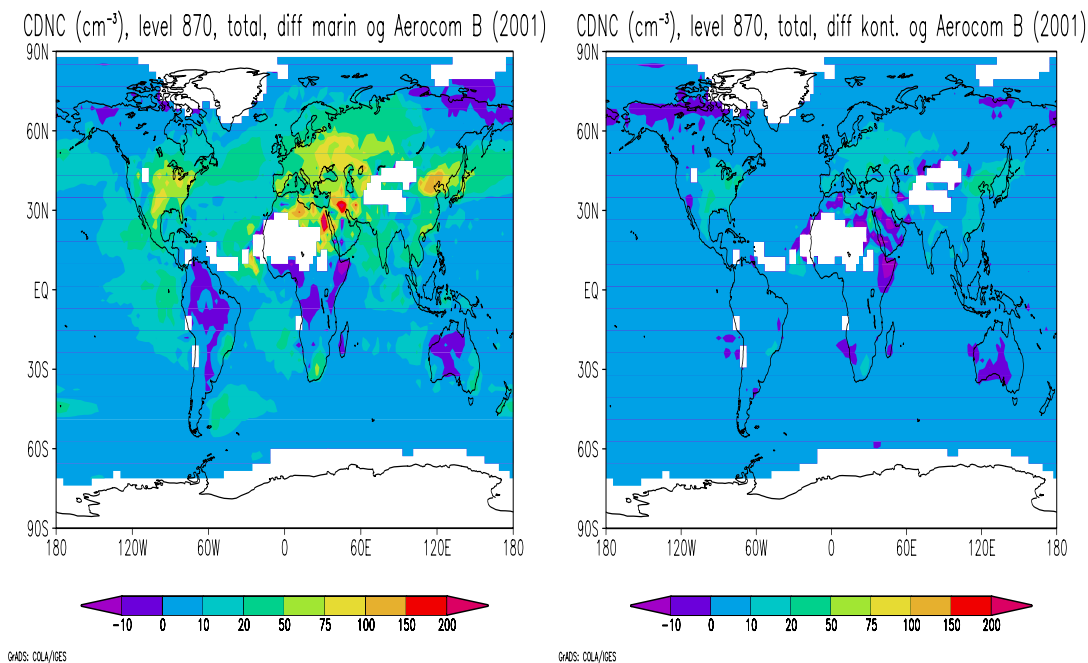
b)



Figur 3-12: Andel i % av de ulike komponentene i den interne blandingen i forhold til totalen (figur 3-11).

3.2.3 Sammenligning med Aeroacom B

Jeg har sett på r_c -intervaller hvor r_{cmin} ligger under den opprinnelige r_{cmin} -verdien på $0.05 \mu\text{m}$, både for det kontinentale og det marine eksperimentet. Det er da nærliggende å forvente at forskjellene mellom disse plottene og Aeroacom B-plottet ligger ”på samme side” av Aeroacom B, noe som også er tilfelle. Figur 3-13 viser differanse-plott mellom henholdsvis marin og Aeroacom B, og kontinental og Aeroacom B for skydråpekonsentrasjonen. Begge de globale midlene for ΔCDNC er som forventet positive, og middelet er størst for differansen mellom det marine eksperimentet og Aeroacom B ettersom det kontinentale r_c -intervallet ligger nærmere (overlapper tildels) det opprinnelige intervallet. Dermed er det nærliggende å konkludere med at jo mindre r_{cmin} er, desto flere CDNC blir dannet. Utslagene er, i likhet med differanseplottet mellom det marine og det kontinentale eksperimentet, størst over land, særlig over Midt-Østen, Øst-Europa, deler av Asia og USA. Aerosolpartiklene over kontinentene domineres som kjent av mineralpartikler, slik at en senkning av den kritiske radien for sulfatpålegg i disse områdene vil føre til forholdsvis store endringer ettersom den naturlige kritiske radien til sulfatpartikler er lavere enn mineralpartikler samt at de modifiserte partiklene blir større. Når det gjelder marine områder, er ikke utslagene så store, både fordi det er færre partikler over havområder enn over land og fordi sjøsalt-partiklene har en lavere naturlig kritisk radius enn sulfat-partikler.

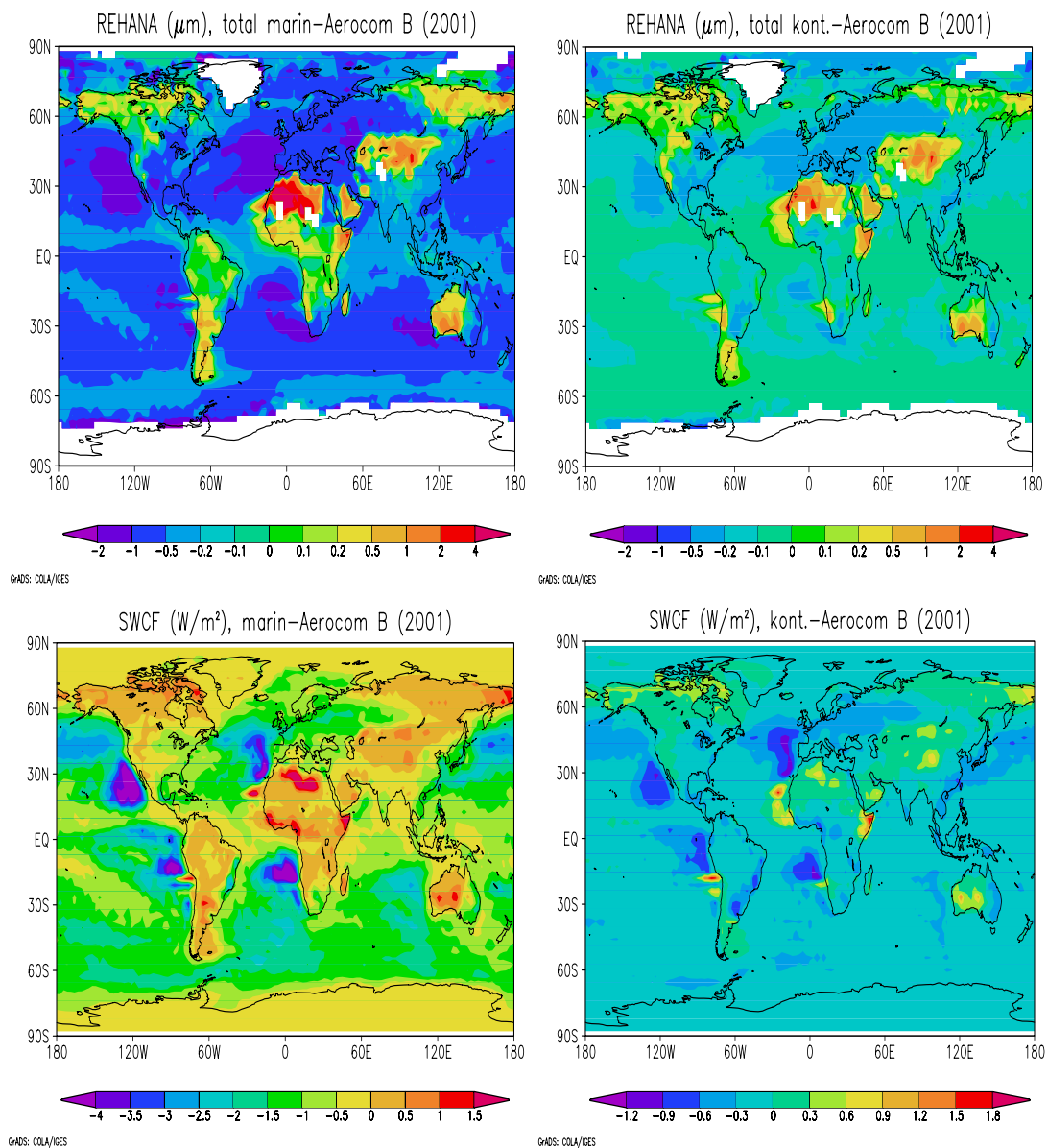


Figur 3-13: Differanse mellom henholdsvis marin total aerosol og Aeroacom B total aerosol, og kontinental total aerosol og Aeroacom B total aerosol for CDNC.

Figur 3-14 viser tilsvarende differanse-plott for ΔREHANA og ΔSWCF . På samme måte som for marin minus kontinental-plottene samsvarer utviklingen i ΔCDNC med hensyn på r_c -verdi i de spesielle områdene med utviklingen i ΔREHANA og ΔSWCF . Det vil si at der differansen ΔCDNC blir mer og mer positiv for minkende r_{cmin} i det første leddet, blir ΔREHANA og ΔSWCF mer og mer negativ. Vi ser også at de globale midlene i likhet med ΔCDNC samsvarer med økning/minkning i r_{cmin} (for

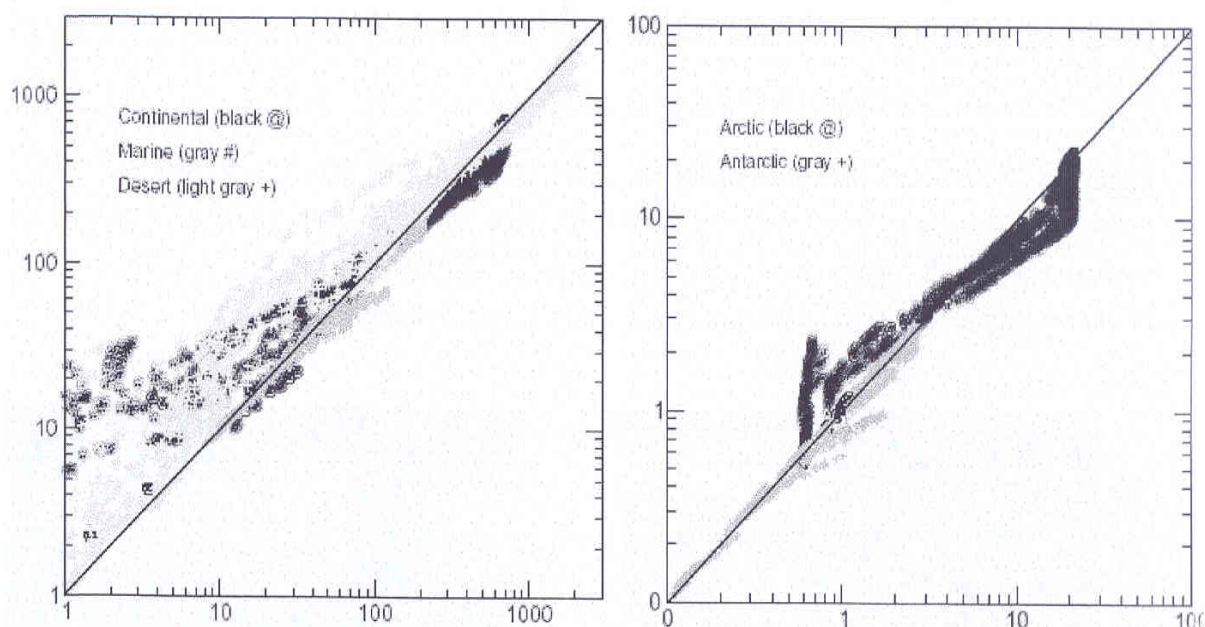
3 RESULTATER OG DISKUSJON

Δ REHANA for kontinental minus AeroCom B er middelet i tillegg svakt positivt). Også her ser vi, i likhet med figur 3-13, at det finnes forholdsvis store negative verdier for Δ REHANA og Δ SWCF utenfor vestkystene av Europa og Afrika, USA og Sør-Amerika ved omtrent 30° N og S. Igjen er det slik at disse områdene blir tydeligere (i betydningen mer negative) jo mindre r_{cmin} er i det første leddet. Grunnen til dette er som sagt at det ved disse lave breddene er mer fuktighet og høyere overmetninger i de konvektive skyene slik at flere partikler blir aktivert og får sulfatpålegg. Forskjellene blir i samsvar med dette også større. Jeg vil igjen henvise til figur 3-4, som viser skydekke, for å forklare dette. Resultatet er enda mindre, men flere skydråper og større strålingspådriv. Det som likevel er verdt å merke seg, er at det ikke er slike områder ved østkystene ved omtrent 60° N og S hvor vestavindsbeltene ligger. Grunnen til dette er antageligvis at konveksjonen og oppdriften ikke er så kraftig slik at utslagene ikke blir så store.



Figur 3-14: Samme som figur 3-13, men for REHANA (øverst) og SWCF (nederst).

Også i disse differanseplottene dukker de nevnte negative verdiene for ΔCDNC opp over Sør-Amerika, Afrika og Australia opp. I tillegg har noen nye områder, blant annet over Nord- og Øst-Afrika samt Midt-Østen fått negative (eller mindre positive) verdier. Hvis man sammenligner disse områdene for alle de tre differanseplottene, ser man at forskjellen over Sør-Amerika er mindre for marin minus AeroCom B enn for marin minus kontinental. Dette er forståelig siden AeroCom B opererer med til dels høyere r_c enn det kontinentale eksperimentet slik at skydråpekonsentrasjonen i AeroCom B følgelig må bli lavere. Likevel er det slik at ΔCDNC ligger nærmere null for kontinental minus AeroCom B, som delvis motsier det forrige argumentet. Tilsvarende er det en utvikling over Nord-Afrika og Midt-Østen, men her er tendensen motsatt. Dermed kan man si at jo lavere r_{cmin} er i det første leddet i differansen, desto mer negativ blir forskjellen over Sør-Amerika, sentrale deler av Afrika og Australia, mens det over Nord-Afrika og Midt-Østen er slik at jo høyere r_{cmin} i det første leddet, desto mer negativ differanse. Det siste tilfellet virker mer "fysisk" ettersom det er logisk at høyere r_c må gi færre skydråper. For kontinental minus AeroCom B, hvor de største negative verdiene altså dukker opp over Nord-Afrika, er disse verdiene sammenlignbare med de positive differansene. Figur 3-15 (Kirkevåg *et al.* (2005)) viser bidraget fra internt blandet SO_4 og BC til konsentrasjonene av CCN (cm^{-3}) for ulike bakgrunner. Vi ser at usikkerhetene er forholdsvis stor nederst til venstre i den første figuren, altså for relativt få CCN, og dette gjelder de fleste områdene med de nevnte problemene. Det er tydelig at usikkerheter på ~10 % eller noe mer kan forventes i disse områdene. Dette er langt på vei tilfelle for skydråpekonsentrasjonen, mens feilen er betraktelig større for REHANA og SWCF. På tross av dette velger jeg å tro at parameteriseringsfeil i tabuleringen av aerosolegenskaper er årsaken til dette, og at dette må ses på som en betydelig usikkerhetskilde med hensyn på REHANA og SWCF.



Figur 3-15: Bidrag fra internt blandet SO_4 og BC til konsentrasjonene av CCN (cm^{-3}) for ulike bakgrunner. Ikke-parameteriserte verdier langs x-aksen og parameteriserte verdier langs y-aksen (Kirkevåg *et al.* (2005)).

4 Sammenheng og konklusjon

Jeg har i denne oppgaven studert ulike valg av den kritiske radien, r_c , for minstestørrelsen til partikler assosiert med sulfat produsert i skydråper for gitte realiserte overmetninger. Antagelser som er gjort tidligere (*Kirkevåg et al., (2002)*) ga for store verdier for den optiske tykkelsen og CCN-konsentrasjonen for normalt antatte overmetninger. På bakgrunn av dette var det nødvendig å finne frem til en mer konsistent antagelse om størrelsen til sulfatpartiklene, for så å se hva slags følger dette får for ulike parametre som blant annet skydråpekonsentrasjon, -radius og kortbølget indirekte strålingspådriv i forhold til resultater hvor det opprinnelige r_c -intervallet ($r_{cmin} = 0.05 \mu\text{m}$, $r_{cmax} = 0.2 \mu\text{m}$) er brukt.

Modellen som er brukt er den siste versjonen av den globale atmosfæriske klimamodellen CCM-Oslo, basert på NCAR CCM3 (*Kirkevåg et al. (2005)*) som beregner modifiserte størrelsesfordelinger og antallskonsentrasjoner av CCN og endringer i forhold til optiske egenskaper. For det sistnevnte tilfellet har jeg sett på den indirekte effekten.

Ulike hensyn må tas for å komme frem til et r_c -intervall som løser problemene nevnt ovenfor. Jeg kom frem til to r_c -intervaller; som passer for kontinental og marin bakgrunn, og lot henholdsvis den fine mineralmoden MINF og den fine sjøsaltmoden SEASF være representanter for disse bakgrunnene. Grunnen til dette er at de andre modene spiller mindre rolle i de ulike bakgrunnsaerosolene og har tilsvarende egenskaper som enten MINF eller SEASF. For å komme frem til verdier for overmetningen i ulike skyer over land og hav, tok jeg utgangspunkt i verdier fra *Pruppacher og Klett (1981)*, og kom frem til tre forskjellige overmetninger for stratiforme skyer (0.1 %), samt for kontinentale og marine cumuluskyer (henholdsvis 0.8 % og 0.25 %). Jeg fikk da to overmetningsverdier for hver mode; den stratiforme verdien gjaldt for begge modene, mens verdiene typisk for kontinentale og marine cumulus-skyer ble brukt som den andre verdien for henholdsvis MINF- og SEASF-moden. For hver mode ble den naturlige kritisk radien, r_{sup} , fremstilt som funksjon av overmetningen S . Et intervall for r_c ble så valgt som det intervallet for r_{sup} mellom de to valgte verdiene for overmetning. De to r_c -intervallene jeg da kom frem til, brukte jeg så som utgangspunkt i analysen, og ble for kontinental og marin atmosfære henholdsvis $r_{cmin} = 0.044 \mu\text{m}$, $r_{cmax} = 0.16 \mu\text{m}$ og $r_{cmin} = 0.033 \mu\text{m}$ og $r_{cmax} = 0.06 \mu\text{m}$.

Jeg har i analysen av ulike parametre som følge av de valgte r_c -intervallene konsentrert meg om skydråpekonsentrasjon (CDNC), effektiv skydråperadius (REHANA) og indirekte strålingspådriv (SWCF). Når det gjelder den totale aerosolen, er det høyere skydråpekonsentrasjon, mindre skydråperadius og større kortbølget strålingspådriv over land i forhold til over hav, på grunn av flere partikler over land. Det antropogene bidraget har globalt midlet ført til høyere skydråpekonsentrasjon, mindre gjennomsnittlig dråperadius og større strålingspådriv (som i dette tilfellet har en avkjølede effekt fordi det er negativt).

I de overnevnte resultatene for det antropogene bidraget, var det likevel områder som hadde motsatt fortegn enn gjennomsnittet for de tre parametrene. Dette gjaldt særlig Sibir, Nord-Canada og i Stillehavet, øst for Indonesia. For de to førstnevnte områdene skyldes dette større utslipp fra skogbranner i preindustriell tid i forhold til i dag. Dette er vist på figur 3-5, som viser at konsentrasjonen av BC og OC, som er viktige bestanddeler i skogbranner, var større før. Når det gjelder Indonesia,

var det ikke BC og OC som var årsaken, men konsentrasjonen av sulfat (figur 3-7) som ifølge utslippstallene fra Aeroacom-prosjektet var større i preindustriell tid.

Til slutt sammenlignet jeg de ulike parametrene for det marine og det kontinentale eksperimentet, samt så på forskjeller og likheter i forhold til resultater fra det gamle skjemaet. I begge mine eksperimenter var r_{cmin} lavere enn den opprinnelige verdien, slik at begge gav høyere CDNC, lavere gjennomsnittlig REHANA og større SWCF enn Aeroacom B. Det var også her områder hvor parametrene fikk motsatt verdi av middelet; spesielt over deler av Sør-Amerika, nordlige og sentrale deler av Afrika, samt nordvestlige deler av Australia. Det var vanskelig å komme frem til en fysisk forklaring på hvorfor det forholdt seg slik. Jeg velger å henvise til figur 3-15, hvor det er tydelig at usikkerheten med hensyn på forholdet mellom parameteriserte og uparameteriserte verdier er forholdsvis store for lave konsentrasjoner av CCN. Det er tydelig at feil omkring 10 % kan forventes i slike sammenhenger, og skyldes antageligvis en parameteriseringsfeil i tabuleringen. Når det gjelder CDNC, er de negative differansene lave i forhold til de høyeste positive verdiene (< 10 %). For REHANA og SWCF, derimot, var størrelsen på de negative og positive forskjellene sammenlignbare. Dermed er den nevnte feilen en stor usikkerhetskilde for REHANA og SWCF.

Det opprinnelige r_c -intervallet var ment å gjelde for alle typene av bakgrunnsaerosoler, noe som er en usikkerhetskilde i seg selv ettersom hygroskopisiteten og løseligheten varierer med hensyn på aerosoltype. Dette påvirker også intervallets konsistens med den realiserte overmetningen som er forskjellig i marine og kontinentale konvektive skyer. Under mitt arbeid med å komme frem til de alternative r_c -intervallene, mener jeg at denne konsistensen er blitt ivaretatt til tross for de nevnte negative differansene over enkelte kontinentale områder. Jeg velger dermed å konkludere med at de alternative intervallene for marin og kontinental bakgrunn er bedre og mer konsistente enn det opprinnelige r_c -intervallet.

Fordi det er tungvint å operere med to ulike intervaller avhengig av bakgrunnstype, ville det neste skrittet være å sammenfatte de to intervallene slik at resultatet ble kun ett intervall der konsistensen mellom intervallet og overmetning fortsatt var ivaretatt med hensyn på alle bakgrunnsaerosolene. Foreløpig vil jeg anbefale å bruke det kontinentale intervallet. Grunnen til dette er at dette intervallet delvis overlapper både det marine og det opprinnelige r_c -intervallet, samt at de uventede negative differansene over de nevnte områdene ikke er så fremtredende her.

Referanser

- Barth, M. C., 2000. Sulfur chemistry in the National Center for Atmospheric Research Community Climate Model: Description, evaluation, features, and sensitivity to aqueous chemistry. *Journal of Geophysical Research* **105**, (D1), 1387-1415.
- Boucher, O., 1994. The sulfate-CCN-cloud albedo effect. A sensitivity study with two general circulation models. *Tellus* **47B**, 281-300.
- Brasseur, G. P., Orlando, J. J., Tyndall, S. T., 1999. Atmospheric Chemistry and Global Change. Oxford University Press, Inc, 654 sider.
- Charlson, R. J. et al., 1992. Climate Forcing by Anthropogenic Aerosols. *Science, New Series* **255**, 423-430.
- Chuang, C. C., Penner, J. E., 1995. Effects of anthropogenic sulfate on cloud drop nucleation and optical properties. *Tellus* **47B**, 566-577.
- Grini, A. et al., 2002. Saltation Sandblasting behavior during mineral dust aerosol production. *Geophysical Research Letters* **29**, 1868, doi:10.1029/2002GL015248.
- Hobbs, Peter V, 1993. Aerosol-Cloud-Climate Interactions. Academic Press, Inc, 233 sider.
- Iversen, T., Seland, Ø., 2002. A scheme for process-tagged SO₄ and BC in NCAR CCM3: Validation and sensitivity to cloud processes. *Journal of Geophysical Research* **107**, (D24), 4751, doi:10.1029/2001JD000885.
- Kirkevåg, A., Iversen, T., 2002. Global direct radiative forcing by process-parameterized aerosol optical properties. *Journal of Geophysical Research* **107**, (D20), 4433, doi:10.1029/2001JD000886.
- Kirkevåg A. et al., 1998. On radiative effects of black carbon and sulphate aerosols. *Atmospheric Environment* **33**, 2621-2635.
- Kirkevåg, A., Iversen, T., 1999. Parameterization of Optical Properties of Composite Tropospheric Aerosols in GCMs. *Institute report series. Department of Geophysics, University of Oslo, Norway.*
- Kirkevåg A. et al., 2005. Revised schemes for aerosol optical parameters and cloud condensation nuclei in CCM-Oslo. *Institute Report Series, Department of Geosciences, University of Oslo, Norway.*
- Kristjánsson, J. E., 2001. Studies of the aerosol indirect effect from sulfate and black carbon aerosols. *Journal of Geophysical Research* **107**, (D15), doi:10.1029/2001JD000887.

REFERANSER

- Lelieveld, J., Heintzenberg, J., 1992. Sulfate Cooling Effect on Climate Through In-Cloud Oxidation of Anthropogenic SO₂. *Science* **258**, 117-120.
- Liou, K. N., 2002. An Introduction to Atmospheric Radiation. Academic Press, 583 sider.
- Myhre, G., Stordal, F., 2001. Global sensitivity experiments of the radiative forcing due to mineral aerosols. *Journal of Geophysical Research* **106**, (D16), 18193-18204.
- Novakov, T. et al., 1993. The effect of anthropogenic sulfate aerosols on marine cloud droplet concentrations. *Tellus* **46B**, 132-141.
- Pruppacher, H. R., Klett, J. D., 1978. Microphysics of Clouds and Precipitation. D. Reidel Publishing Company, 714 sider
- Pruppacher, H. R., Klett, J. D., 1997. Microphysics of Clouds and Precipitation. D. Reidel Publishing Company, 954 sider
- Rogers, R. R., Yau, M. K., 1996. A Short Course in Cloud Physics. Butterworth-Heinemann, 290 sider.
- Seinfeld, J. H., Pandis, S. N., 1998. Atmospheric Chemistry and Physics. From Air Pollution to Climate Change. Wiley-Interscience, 1326 sider.
- Schwartz, S. E., 1996. Cloud drop nucleation and its connection to aerosol properties. In Nucleation and Atmospheric Aerosols 1996. *Proc. 14th Int. Conf. Nucleation and Atmospheric Aerosols (Helsinki, August 26-30, 1996)* M. Kulmala and P. E. Wagner, Eds. Elsevier Science, Ltd. Oxford, UK. pp 770-779.

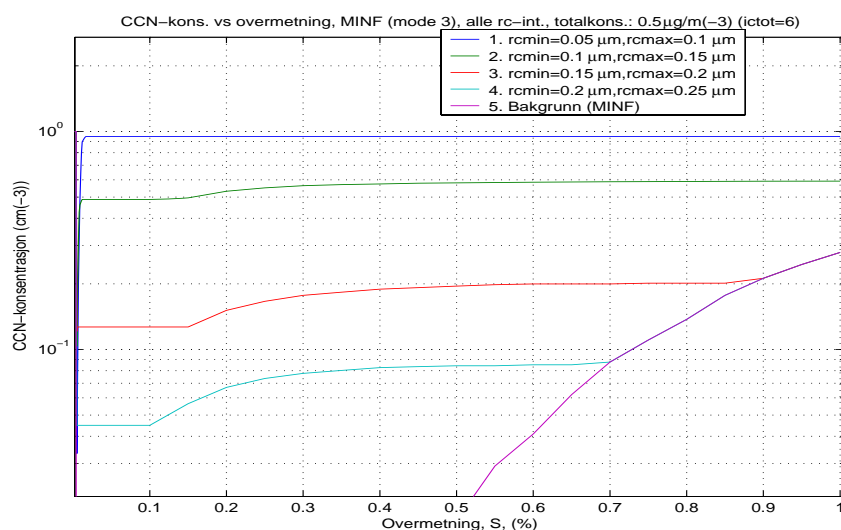
Appendix A

A.1 Forhold mellom overmetning og naturlig kritisk radius

Jeg har gjort en rekke eksperimenter med sammenhenger mellom naturlig kritisk radius r_{sup} og overmetning, hvor jeg har endret ulike parametere. Jeg har benyttet meg av fire ulike r_c -intervaller mellom $0.05 \mu\text{m}$ og $0.25 \mu\text{m}$, altså omtrent innenfor det opprinnelige intervallet. Jeg fikk en rekke uventede resultater, og det var særlig ulike valg av overmetningen S som ga interessante resultater blant annet for den naturlige kritiske radien, r_{sup} , og CCN-konsentrasjonen. Jeg lot S variere fra veldig små til veldig store verdier, og det var ved det minste ytterpunktet, som sjelden er realiserbare i atmosfæren, at plottene jeg lagde fikk en tildels uventet karakter. For å forstå oppførselen til disse parametrene, plottet jeg også størrelsesfordeling og CCN som funksjon av r_{sup} . Jeg har tatt for meg to av modene, nemlig MINF- og SEASF-moden som representanter for henholdsvis mineral- og sjøsaltpartikler og bare tatt hensyn til produksjon av sulfat i skydråper, dvs a3-moden (alle andre pålegg er satt lik null), i alle disse eksperimentene.

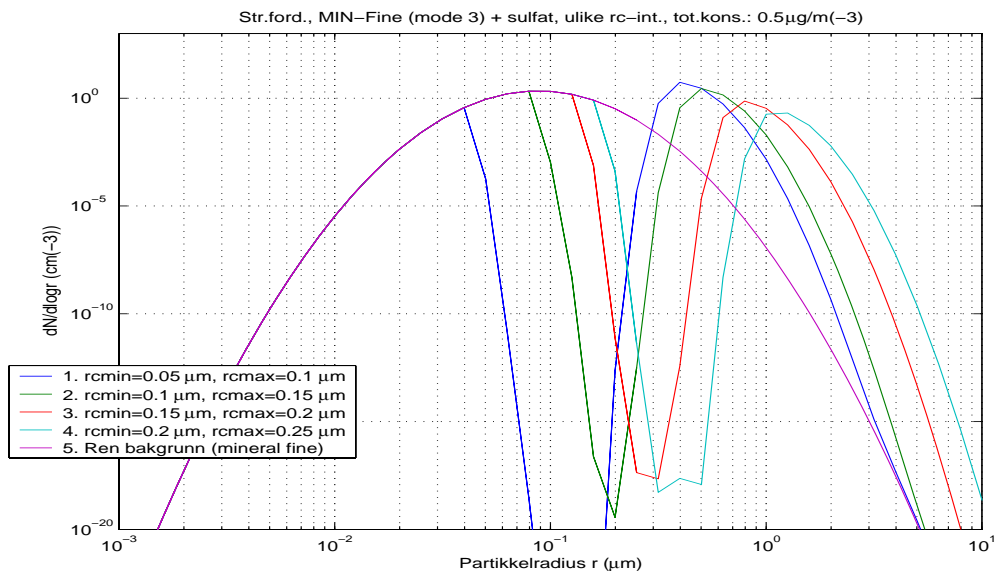
A.1.1 MINF-moden

Først vil jeg ta for meg generelle aspekter ved CCN-konsentrasjonen. Figur A-1 viser CCN-konsentrasjon plottet mot overmetning S for ulike verdier av r_{cmin} og r_{cmax} . Holdes overmetningen konstant flytter plottene seg mot høyere verdier av CCN-konsentrasjonen når r_{cmin} blir mindre. Dette kommer av at flere mindre partikler også blir aktivert.



Figur A-1: CCN-konsentrasjon plottet mot overmetning S for ulike r_c -intervall. Bakgrunnen er MINF. Blå kurve: $r_{cmin} = 0.05 \mu\text{m}$, $r_{cmax} = 0.1 \mu\text{m}$, grønn kurve: $r_{cmin} = 0.1 \mu\text{m}$, $r_{cmax} = 0.15 \mu\text{m}$, rød kurve: $r_{cmin} = 0.15 \mu\text{m}$, $r_{cmax} = 0.2 \mu\text{m}$, turkis kurve: $r_{cmin} = 0.2 \mu\text{m}$, $r_{cmax} = 0.25 \mu\text{m}$, lilla kurve: ren bakgrunn (MINF).

Ser vi på en gitt verdi av r_{cmin} og r_{cmax} og lar S variere, øker CCN-konsentrasjonen forholdsvis raskt for små S -verdier. Deretter flater kurven ut og konsentrasjonen ser ut til å være konstant for et ganske stort intervall av S , for så å øke igjen for større S -verdier. Dette mønsteret blir mer tydelig jo større r_{cmin} er. For $r_{cmin} = 0.05 \mu\text{m}$ er det konstante CCN-intervallet dominerende for de overmetningene som er vist. Ser man imidlertid på mye høyere overmetninger, det vil si omkring 3.0 % (ikke vist her), finner man at denne kurven også får en økning i CCN-konsentrasjonen. Sammen med de ulike plottene med pålagt sulfat (a3-moden) har jeg også plottet kurven for den rene bakgrunnen, det vil si kun MINF-moden (den lilla kurven). Denne kurven har en jevn økning i CCN-konsentrasjon og man ser at de andre kurvene sammenfaller med denne i skjæringspunktene. Dermed skjer denne økningen i CCN for høyere S -verdier. For å forstå dette bedre er det instruktivt å se på størrelsesfordelingene og $r_{sup}(S)$ -plottet for de samme verdiene av r_{cmin}/r_{cmax} (figur A-2 og A-3).

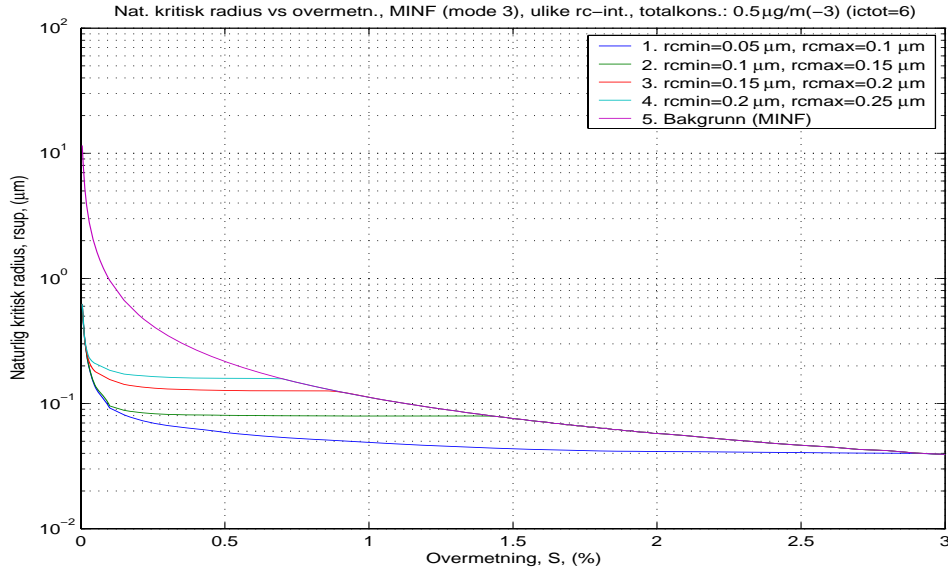


Figur A-2: Størrelsesfordeling for MINF-moden for ulike r_c -intervaller, samt ren bakgrunn. Blå kurve: $r_{cmin} = 0.05 \mu\text{m}$, $r_{cmax} = 0.1 \mu\text{m}$, grønn kurve: $r_{cmin} = 0.1 \mu\text{m}$, $r_{cmax} = 0.15 \mu\text{m}$, rød kurve: $r_{cmin} = 0.15 \mu\text{m}$, $r_{cmax} = 0.2 \mu\text{m}$, turkis kurve: $r_{cmin} = 0.2 \mu\text{m}$, $r_{cmax} = 0.25 \mu\text{m}$, lilla kurve: ren bakgrunn (MINF).

På størrelsesfordelingen dukker det opp to toppunkter for et gitt r_c -intervall i motsetning til den rene bakgrunnsfordelingen av MINF. Av definisjonen på kritisk radius r_c , ser vi at dette er naturlig; r_{cmin}/r_{cmax} er den radien en partikkel må ha for å få pålegg av sulfat etter oksidasjon i skydråper. For et lite intervall større enn r_c vil det ikke bli noen partikler igjen fordi de som var i dette intervallet i utgangspunktet er blitt større. Antall partikler som er større enn dette lille intervallet vil derimot ha økt. Dette ser vi hvis vi sammenligner de ulike størrelsesfordelingene med størrelsesfordelingen for den rene bakgrunnsaerosolen. For eksempel ser vi at antallskonsentrasjonen for $r = 1 \mu\text{m}$ er større for plottene med sulfat-pålegg.

Det er slik at radien for det konstante intervallet for $CCN(S)$ tilsvarer nettopp dette området hvor antallskonsentrasjonen faller mot lave verdier, altså rett før det

aktuelle r_c -intervallet i størrelsesfordelingen Dette er fordi den akkumulerte CCN-konsentrasjonen ikke får noe bidrag herfra.



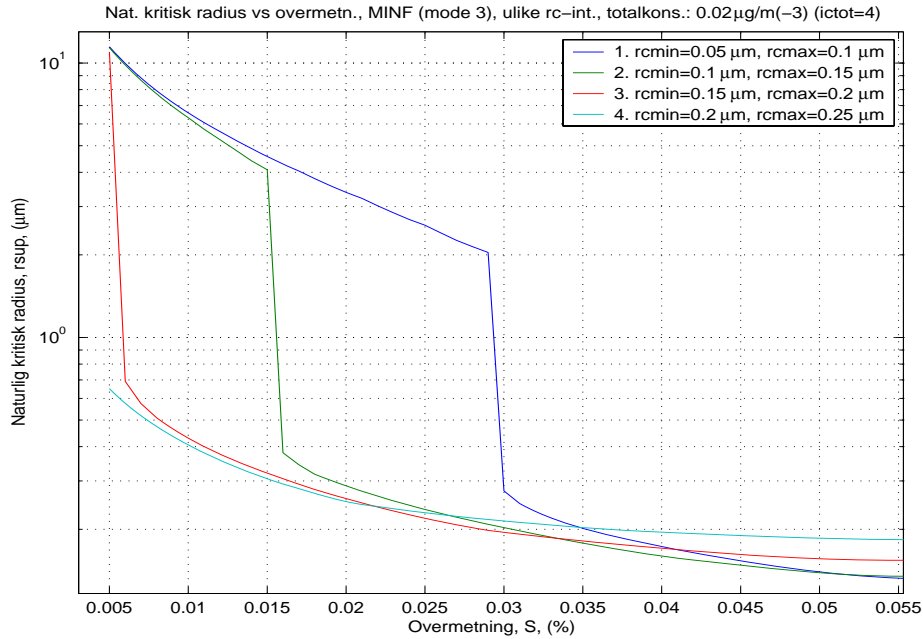
Figur A-3: Naturlig kritisk radius plottet mot overmetning for ulike r_c -intervaller, samt kurven for den rene bakgrunn, MINF. Blå kurve: $r_{cmin} = 0.05 \mu\text{m}$, $r_{cmax} = 0.1 \mu\text{m}$, grønn kurve: $r_{cmin} = 0.1 \mu\text{m}$, $r_{cmax} = 0.15 \mu\text{m}$, rød kurve: $r_{cmin} = 0.15 \mu\text{m}$, $r_{cmax} = 0.2 \mu\text{m}$, turkis kurve: $r_{cmin} = 0.2 \mu\text{m}$, $r_{cmax} = 0.25 \mu\text{m}$, lilla kurve: ren bakgrunn (MINF).

Figur A-3 viser $r_{sup}(S)$ for de ulike r_c -intervallene for MINF pålagt sulfat, samt kurven til den rene bakgrunnen av MINF. For lave S -verdier avtar r_{sup} raskt, deretter går de mot hver sin tilnærmede konstante r_{sup} -verdi for så å minke igjen for større verdier av S når også rene bakgrunnspartikler aktiveres. Man ser også at jo større r_{cmin} er, desto nærmere ligger kurven den rene MINF-kurven. Dette skyldes at sulfat er mer hygroskopisk enn MINF. Plotter man r_{sup} -kurven for sulfat og MINF, vil altså kurven for sulfat ligge under kurven for MINF. Når r_{cmin} avtar får også mindre partikler sulfat pålagt. Fordi det vil være like mye volum sulfat per partikkel uansett partikkelvolum vil det være mer sulfat relativt til størrelsen for de minste partiklene. Dermed vil sulfat ha større påvirkning desto mindre r_{cmin} er, slik at denne kurven vil ligge under de andre kurvene som representerer større r_c -intervaller.

Når det gjelder det som skjer for de høyere overmetningene, at sulfat + MINF-kurvene blir lik den rene MINF-kurven, er grunnen til dette at r_{sup} -verdien til sulfat + MINF aldri kan bli høyere enn ren MINF, nettopp pga at den naturlige kritiske radien til sulfat er mindre enn den til MINF, som nevnt ovenfor. Den høyeste verdien av r_{sup} sulfat + MINF kan ha er derfor r_{sup} -verdien for ren MINF, og det skjer når overmetningen blir stor nok. Dette samsvarer med punktene der $CCN(S)$ for sulfat + MINF sammenfaller med $CCN(S)$ for ren MINF på figur A-1.

Figur A-4 viser også $r_{sup}(S)$ -plott for de ulike r_c -intervallene, men her jeg ser på forholdsvis små overmetninger:

APPENDIX A



Figur A-4: Naturlig kritisk radius plottet mot overmetning S for ulike r_c -intervaller, og lavere totalkonsentrasjon. Bakgrunnen er MINF. Blå kurve: $r_{cmin} = 0.05 \mu\text{m}$, $r_{cmax} = 0.1 \mu\text{m}$, grønn kurve: $r_{cmin} = 0.1 \mu\text{m}$, $r_{cmax} = 0.15 \mu\text{m}$, rød kurve: $r_{cmin} = 0.15 \mu\text{m}$, $r_{cmax} = 0.2 \mu\text{m}$, turkis kurve: $r_{cmin} = 0.2 \mu\text{m}$, $r_{cmax} = 0.25 \mu\text{m}$, lilla kurve: ren bakgrunn (MINF).

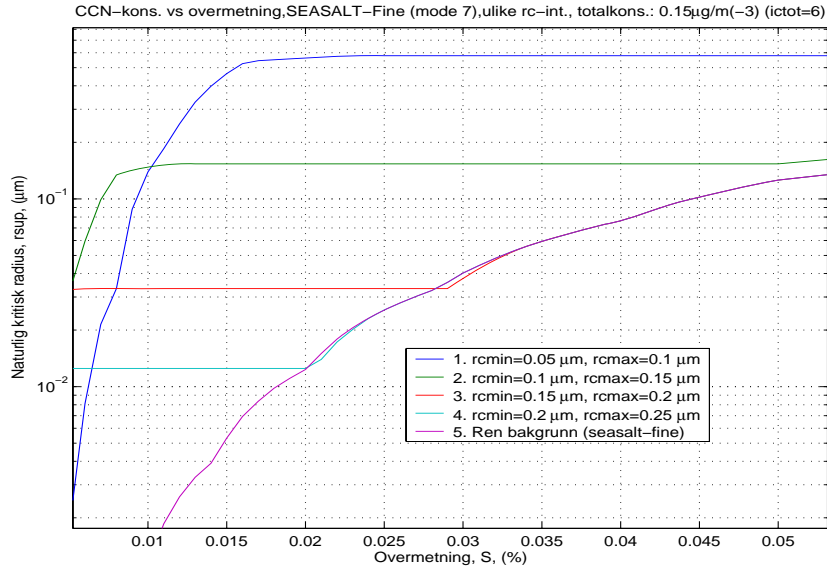
Det som er interessant her er de karakteristiske fallene mot lavere r_{sup} -verdier. Før knekken forflytter kurvene seg mot høyere r_{sup} -verdier når r_{cmin} blir mindre, altså motsatt av det som skjer ved høyere overmetninger. Dessuten er det slik at jo mindre r_{cmin} er, desto høyere er S der hvor fallet skjer. Når $r_{cmin} = 0.2 \mu\text{m}$, er det ingen knekk i det hele tatt; kurven begynner på forholdsvis lave r_{sup} -verdier allerede for de aller minste S -verdiene.

Ved første øyekast virker det som om disse knekkene kommer av at det er her sulfaten begynner å spille sin rolle. Vi vet at sulfat har en mindre naturlig radius enn den rene MINF-bakgrunnen, slik at MINF + sulfat nødvendigvis må få en lavere r_{sup} for en gitt overmetning. Dette stemmer for såvidt overens med plottet som viser CCN som funksjon av S ; for de plottene som gjennomgår en kraftig reduksjon i r_{sup} , skjer det en tilsvarende økning i CCN-konsentrasjon for samme S -intervall. Lavere r_{sup} vil jo bety at flere partikler som i utgangspunktet var for små nå har mulighet til å bli CCN for den gitte S -verdien. Det er samtidig noe ufysisk ved denne bratte utviklingen; jeg ventet at utviklingen skulle ligne utviklingen av $r_{sup}(S)$ for ren MINF.

A.1.2 SEASF-moden

Det kan være oppklarende å se på en av sjøsalt-modene i tillegg for å se om en bakgrunn preget av denne moden oppfører seg på samme måte. Jeg har valgt mode 7 i CCM-Oslo, som er den fine sjøsalt-moden, SEASF. Figur A-5 viser CCN(S)-plott for de samme r_c -intervallene som jeg brukte for MINF.

APPENDIX A

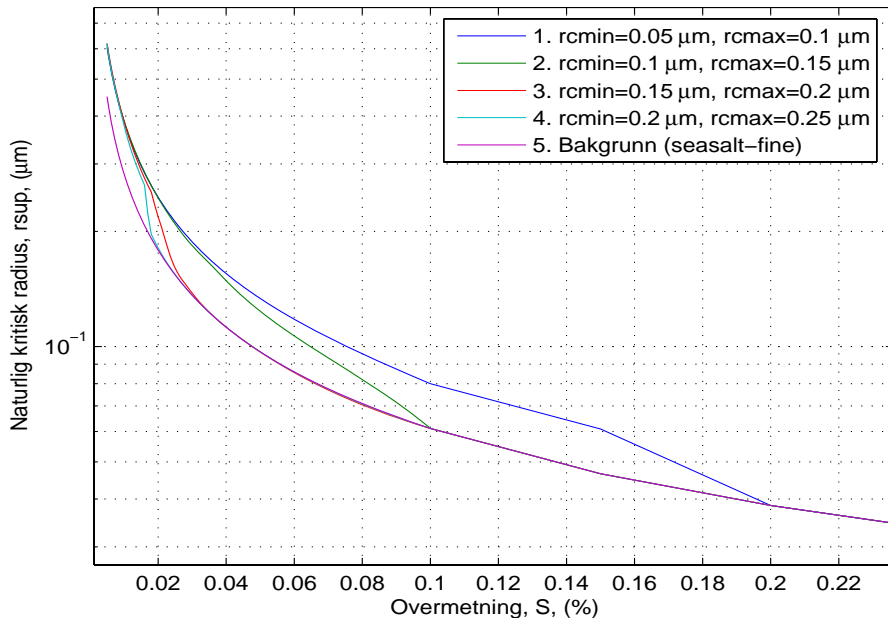


Figur A-5: CCN-konsentrasjon plottet mot overmetning for ulike r_c -intervaller samt for ren bakgrunn, SEASF. Blå kurve: $r_{cmin} = 0.05 \mu\text{m}$, $r_{cmax} = 0.1 \mu\text{m}$, grønn kurve: $r_{cmin} = 0.1 \mu\text{m}$, $r_{cmax} = 0.15 \mu\text{m}$, rød kurve: $r_{cmin} = 0.15 \mu\text{m}$, $r_{cmax} = 0.2 \mu\text{m}$, turkis kurve: $r_{cmin} = 0.2 \mu\text{m}$, $r_{cmax} = 0.25 \mu\text{m}$, lilla kurve: ren bakgrunn (MINF).

Mønsteret er det samme som for MINF (se figur A-1); men forskjellen er at punktene der kurvene som representerer sulfat + SEASF treffer kurven for ren SEASF skjer ved mye lavere overmetninger enn for sulfat + MINF. Dette er som forventet ettersom SEASF (og sjøsalt generelt) er mer hygroskopisk enn sulfat slik at flere partikler vil aktiveres ved lavere overmetninger.

Figur A-6 viser $r_{sup}(S)$ -plott for ulike r_c -intervaller for SEASF, samt tilsvarende kurve for den rene SEASF-moden.

Nat.kritisk radius vs overmetn., SEASALT-Fine (mode 7), ulike r_c -int., totalkons.: $0.15 \mu\text{g}/\text{m}^{-3}$ (ictot=

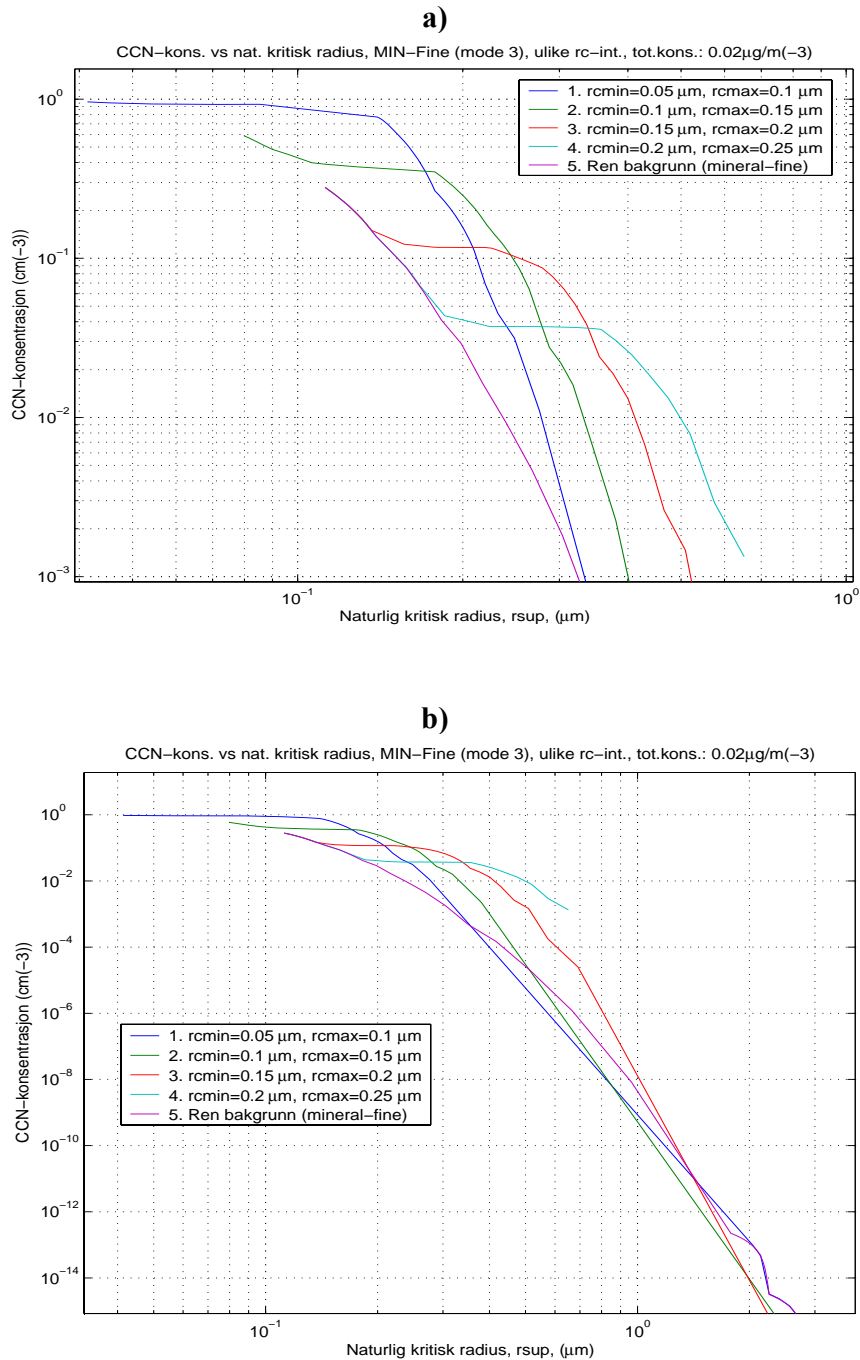


Figur A-6: Naturlig kritisk radius plottet mot overmetning for ulike r_c -intervaller for mindre totalkonsentrasjon. Bakgrunnen er SEASF. Blå kurve: $r_{cmin} = 0.05 \mu\text{m}$, $r_{cmax} = 0.1 \mu\text{m}$, grønn kurve: $r_{cmin} = 0.1 \mu\text{m}$, $r_{cmax} = 0.15 \mu\text{m}$, rød kurve: $r_{cmin} = 0.15 \mu\text{m}$, $r_{cmax} = 0.2 \mu\text{m}$, turkis kurve: $r_{cmin} = 0.2 \mu\text{m}$, $r_{cmax} = 0.25 \mu\text{m}$, lilla kurve: ren bakgrunn (MINF).

Vi ser at i motsetning til for sulfat + MINF, ligger nå kurvene som representerer sulfat + SEASF over kurven for den rene bakgrunnen. Sjøsalt er som kjent hygroskopisk, og har dermed en forholdsvis liten naturlig kritisk radius for en gitt overmetningsverdi. Kurvene vil derfor oppføre seg motsatt av det MINF + bakgrunn-kurvene gjør. Det at sulfat legges på, bidrar til å senke hygroskopisiteten og øke den naturlige kritiske radien til den nye blandingen slik at kurvene for de ulike r_c -intervallene nå ligger over kurven for ren SEASF. Også her treffer kurvene til SEASF + sulfat kurven for ren bakgrunn når overmetningsverdien blir stor nok. Som for MINF (bare motsatt), skjer dette fordi den naturlige kritiske radien til SEASF + sulfat aldri kan bli mindre enn denne til den hygroskopiske bakgrunnen. For hvilken overmetningsverdi dette skjer, er som sagt avhengig av r_c -intervallet og som for MINF er det slik at jo mindre r_{cmin} er, desto større er overmetningsverdien i punktet hvor kurvene treffer hverandre. En ting som er verdt å merke seg er at overmetningsverdiene hvor skjæringen skjer er veldig små i forhold til for MINF + sulfat. I tillegg er det ikke antydning til noen drastiske endringer i r_{sup} -verdien for enda mindre overmetninger, som jo var tilfelle for MINF + sulfat (vi får ikke en knekk mot høyere r_{sup} -verdier).

Det er altså kun for MINF + sulfat hvor de kraftige fallene mot lavere r_{sup} -verdier forekommer. Jeg vil derfor i neste delkapittel vil jeg se på CCN som funksjon av r_{sup} for MINF + sulfat for å se om det finnes en sammenheng her.

A.1.3 CCN-konsentrasjon plottet mot r_{sup}



Figur A-7: CCN-konsentrasjon plottet mot naturlig kritisk radius for ulike r_c -intervaller; **a)** og **b)** viser det samme, men med ulike verdier på aksene. Blå kurve: $r_{cmin} = 0.05 \mu\text{m}$, $r_{cmax} = 0.1 \mu\text{m}$, grønn kurve: $r_{cmin} = 0.1 \mu\text{m}$, $r_{cmax} = 0.15 \mu\text{m}$, rød kurve: $r_{cmin} = 0.15 \mu\text{m}$, $r_{cmax} = 0.2 \mu\text{m}$, turkis kurve: $r_{cmin} = 0.2 \mu\text{m}$, $r_{cmax} = 0.25 \mu\text{m}$, lilla kurve: ren bakgrunn (MINF).

Figur A-7 viser CCN-konsentrasjon som funksjon av r_{sup} for ulike r_c -intervaller for MINF. Avtagende r_{sup} og økende CCN-konsentrasjon er her ekvivalent med økende overmetning, mens økende r_{sup} og avtagende CCN-konsentrasjon betyr minkende S . Det er derfor høye overmetnings-verdier øverst i venstre hjørne, og lave verdier nederst i høyre hjørne for en gitt kurve. Felles for alle kurvene er at de går mot lavere

verdier av CCN-konsentrasjonen når r_{sup} øker, noe som er naturlig ut fra diskusjonen over. For en gitt CCN-konsentrasjon mellom 10^{-3} cm^{-3} og 10^{-2} cm^{-3} blir r_{sup} større jo høyere r_{cmin} er. Det er en ganske stor forskjell mellom $CCN(r_{sup})$ for $r_{cmin} = 0.05 \text{ }\mu\text{m}$ -plottet og $r_{cmin} = 0.2 \text{ }\mu\text{m}$ -plottet; mens førstnevnte plott begynner med å ha konstant CCN-verdi for gitte r_{sup} -verdier, for så å få en minkning i CCN-konsentrasjonen, begynner det andre plottet med en minkning for så å bli konstant med hensyn på CCN. Plottene for de mellomliggende r_c -verdiene er en mellomting mellom de nevnte to ytterpunkter. De intervallene der CCN-konsentrasjonen er konstant tilsvarer (som diskutert tidligere for de tilsvarende konstante intervallene i $CCN(S)$ -plottene og $r_{sup}(S)$ -plottene) bunnpunktet i størrelsesfordelingen som jo ikke gir noe bidrag til CCN-konsentrasjonen.

Jeg har også plottet kurven for den rene bakgrunnen, og man ser at for høye nok overmetningsverdier, kan man trekke en linje fra kurve til kurve som en forlengelse av kurven for den rene bakgrunnen. Dette er ekvivalent med det som skjer for forholdsvis høye overmetninger med $CCN(S)$ og $r_{sup}(S)$ diskutert tidligere. Med andre ord er ikke CCN-konsentrasjonen og r_{sup} avhengig av r_c -intervallet bare S blir stor nok.

Plottene av $CCN(S)$, størrelsesfordelinger, $r_{sup}(S)$ og $CCN(r_{sup})$ gir ikke noe direkte fysisk forklaring på hvorfor de nevnte fallene i r_{sup} dukker opp for MINF + sulfat. Som sagt skjer dette for svært små overmetninger, og på figur A-1 kan vi skimte at CCN-konsentrasjonen for alle r_c -intervallene begynner på 1 cm^{-3} , for så å minke kraftig for litt større overmetninger. Dette er jo ufysisk i seg selv og det virker derfor som om forklaringen ligger i en numerisk feil i modellen som dukker opp ved ekstremt små overmetninger. Jeg har ikke klart å komme frem til noen detaljer hva angår denne eventuelle numeriske feilen, men den har helt klart en sammenheng med små verdier av overmetningen til dels også små verdier av r_{cmin} .