

В.В. Смирнов, А.В. Савченко, В.Н. Иванов

Модификация ядер конденсации при энергетических воздействиях. 1. Ион-стимулированная нуклеация

Институт экспериментальной метеорологии, г. Обнинск

Поступила в редакцию 18.11.2005 г.

Эксперименты в различных климатических районах России показали, что биполярно ионизирующие излучения, независимо от вида излучения и интенсивности в пределах от 5 до 10^{12} пар ионов/($\text{см}^3 \cdot \text{с}$), могут стимулировать образование новых аэрозольных частиц диаметром 5–100 нм при энергетических затратах порядка 100 эВ на каждые 10 молекул конденсата. Эти частицы обладают основными свойствами облачных ядер конденсации и могут принимать участие в модификации облачных процессов. Основными факторами, снижающими эффективность конверсии «газ–частица», являются относительная влажность и температура воздуха, а также содержание некоторых газов. Наименьшее влияние этих факторов оказывается при интенсивной и длительной ионизации.

При прочих равных условиях основным фактором наработки нового аэрозоля является поглощенная энергия ионизирующего излучения R . Порогу появления новых частиц при естественной ионизации в приземной атмосфере соответствует значение $R = 10^3$ эВ/ см^3 .

Введение

Характер и интенсивность облакообразующих процессов, как известно, определяются во многом природой и содержанием облачных ядер конденсации и кристаллизации (ОЯК) [1, 4, 6]. Облакообразующая активность последних в значительной мере зависит как от внешних условий, так и от внутренних факторов состояния атмосферного аэрозоля. В настоящее время отсутствуют исчерпывающие и непротиворечивые представления об естественных и антропогенных каналах изменчивости атмосферного аэрозоля в целом и облачных ядер в частности. Длительное время ведутся и пока не прекращаются дискуссии о роли реакций фотохимической и радиохимической конверсии «воздух–ОЯК» [2, 5, 6]. В последнее время преобладают представления, что вклад фотохимических процессов существен в стратосфере, а для нижней и средней тропосфере значимые реакции УФ-стимулированной ионизации пока не определены [20, 35]. Здесь более значимым может оказаться вклад фоновых радиоактивных излучений и эмиссий космических частиц [9, 10, 33, 34].

Во многих публикациях (см. обзоры в [23, 28, 32]) приводятся описания интенсивных эмиссий аэрозолей нанометрового интервала размеров в приземном слое. Распространенное за рубежом и в некоторых отечественных публикациях [3, 23] название этого интересного природного явления – нуклеационный всплеск (nucleation burst) – не должно вводить в заблуждение относительно тесного отношения к облачному процессам. Цепочка физических превращений эмитируемых ядер нанометрового размера $D = 3 \pm 10$ нм в облачные ядра конденсации диаметром более 100 нм пока мало изучена.

Так, эмиссии атмосферных наноядер пока не удается связать ни с суточным ходом метеорологических параметров, ни с интенсивностью солнечного излучения, ни с концентрациями газов-прекурсоров SO_x , NO_x , NH_3 и др. [17, 18].

Считается (см., например, [4]), что для капельных облаков и туманов характерны значения пересыщений по водяному пару, $S = 0,01 \pm 0,1\%$. В этом интервале S активируются фоновые аэрозольные частицы диаметром более 0,1 мкм. В свободной тропосфере концентрация ядер конденсации начальным диаметром выше 0,1 мкм находится в пределах 200–1000 см^{-3} , что сравнимо с концентрацией капелек в развивающихся теплых облаках [26].

Эти обстоятельства объясняют известную «уязвимость» и зависимость облакообразующих процессов от состояния аэрозольной компоненты. Например, при заметных понижениях концентрации ОЯК будет снижаться начальная концентрация капелек в облаке. Это ведет к замедлению скоростей коагуляционного роста и формирования осадков. Тот же эффект будет иметь место, если концентрация ОЯК окажется высокой. При обогащении облачной среды активными ядрами происходят снижение действующего пересыщения и образование большого количества мелких капелек.

Критична также ситуация с ядрами кристаллизации, поскольку их концентрация обычно в 10^2 – 10^4 раз более низкая, чем ОЯК. Именно этим объясняется факт преимущественного существования естественных облаков в капельном переохлажденном состоянии. С другой стороны, появляется принципиальная возможность активизировать или подавить осадкообразующие процессы искусственным путем.

Эти факты послужили авторам данного исследования стимулом для более углубленного изучения роли энергетического фактора в объяснении наблюдаемой изменчивости облачных ядер конденсации и кристаллизации. В рамках первой публикации ограничимся постановкой задачи и выяснением следующих принципиальных вопросов:

1. Есть ли влияние вида ионизирующего излучения на степень конверсии «газ—аэрозоль»?
2. Есть ли и каковы нижний и верхний энергетические пределы конверсии?
3. Какова степень влияния основных метеорологических факторов — относительной влажности, температуры, давления и т.д. — на конверсионные процессы?
4. Есть ли и насколько существенно влияние элементов атмосферного электричества, в частности интенсивности ионообразования, концентрации атмосферных ионов, напряженности электрического поля, на конверсионные процессы?

1. Об уровнях энергетических возмущений характеристик тропосферы

Вначале уточним, что понимается под термином «возмущение тропосферы», а также о каких уровнях или амплитудах возмущений может идти речь. Полезно также определить, какие ее составные элементы могут подвергаться возмущениям природного и антропогенного происхождения и сопоставить ожидаемые уровни возмущений с санитарными нормативами. Имеющиеся сведения [1, 9, 10, 16] обобщены в табл. 1.

На основе анализа этих данных можно, даже не обсуждая физические и технические принципы реализации возмущений, сформулировать два предварительных вывода. Во-первых, по отношению к антропогенным воздействиям в локальных масштабах более чувствительны электрические компоненты воздуха (первые пять строк табл. 1). Результаты мониторинга в 30-км зоне аварии Чернобыльской АЭС дают экспериментальное обоснование этого вывода [9, 11]. Во-вторых, потенциальные возможности вмешательства человека в отдельные процессы облакообразования путем изменения концентрации и активности ядер конденсации и кристаллизации достаточно велики. Отсюда правомерен интерес к результатам симбиоза возмущений электрического и аэрозольного состояния воздуха.

2. Ион-стимулированная конверсия «газ—аэрозоль»

Основные условия конверсии

Обзоры имеющихся экспериментальных данных по ион-стимулированной конверсии «газ—аэрозоль» приведены в [11, 14, 16, 31, 33]. Обобщение их позволяет сформулировать следующие требования к характеристикам излучений, стимулирующих конверсию «газ—аэрозоль» в приземной атмосфере.

1. Первичным материалом для построения аэрозольных частиц являются атмосферные легкие ионы, полученные в актах ионизации воздуха. Отсюда первое требование к рабочему излучению: энергия квантов (частиц) должна превышать энергию ионизации основных компонентов воздуха (≈ 15 эВ) независимо от вида излучения (УФ, альфа-, бета-, гамма-, нейтронное и др.). Это условие является необходимым, но недостаточным.

2. Принципиальным условием образования аэрозоля в ионизированном газе является также присутствие легких ионов обеих полярностей, т.е. отрицательных и положительных. Соответственно, рабочее излучение и состав газов должны стимулировать биполярную ионизацию воздуха. В униполярно ионизированных воздушных средах из-за действия отталкивающих кулоновских сил устойчивые ассоциаты не образуются [11].

3. Если следовать [7, 11], то должно существовать также условие на возраст легких ионов. Дело в том, что первоначальные ионы при временах жизни порядка 1–10 мс и менее, во-первых, не успевают сформировать гидратную оболочку вокруг молекулярного иона, а во-вторых, свежие молекулярные ионы имеют структуру O_2^+ , N_2^+ и др., «неподходящую» для образования устойчивого кластера.

Кулоновская ассоциация молодых разнополярных ионов заканчивается рекомбинацией зарядов и нейтрализацией молекул O_2 , N_2 и др. Однако при временах жизни порядка 0,1–1 с и более в реальной атмосфере места центральных ионов O_2 , N_2 замещают молекулы газов SO_x^- , NO_x^- , H_2O^+ и др., имеющие большее сродство к электрону и протону, чем молекулы O_2 , N_2 . Согласно численным моделям и масс-спектрометрическим измерениям [7, 11] при не очень малых концентрациях окислов серы и азота образуются вторичные легкие ионы $SO_x^-(H_2O)_n$, $(H_2O)_n$, $NO_x^-(H_2O)_n$, $NO_x^-HNO_3(H_2O)_n$, $H_2O^+(H_2O)_n$,

Таблица 1

Характерные уровни естественных и антропогенных возмущений воздушной среды

Элемент воздушной среды	Уровни возмущений		
	Естественные	Антропогенные	Санитарная норма
Интенсивность ионообразования, q , $см^{-3} \cdot с^{-1}$	3–10	$<10^{12}$	<500
Концентрация легких ионов n_{\pm} , $см^{-3}$	100–1000	$<10^9$	$<10^4$
Коэффициент униполярности n_-/n_+	$1 \pm 0,2$	$<10^9$	Не нормируется
Напряженность электрического поля E , В/м	100 ± 80	0 ± 10^4	$<10^3$
Электрические проводимости воздуха C_{\pm} , фСм/м	1–10	$<10^7$	Не нормируется
Концентрация аэрозолей N , $см^{-3}$	10^2-10^5	$<10^8$	10^6
Концентрация облачных ядер конденсации Z , $см^{-3}$	$10-10^3$	$<10^8$	Не нормируется
Концентрация ядер кристаллизации $Z_{кр}$, $см^{-3}$	$10^{-3}-1$	$<10^6$	Не нормируется
Концентрация газов O_3/NO_x , млрд $^{-1}$	$<50/5$	$>100/10$	15/70

Модификация ядер конденсации при энергетических воздействиях. 1. Ион-стимулированная нуклеация

405

$\text{NH}_3^+(\text{H}_2\text{O})_n$ и др. в зависимости от содержания некоторых минорных газов.

Кулоновская ассоциация состаренных разнополярных ионов заканчивается образованием устойчивых нейтральных кластеров $\text{H}_2\text{SO}_x^-(\text{H}_2\text{O})_n$, $\text{HNO}_3(\text{H}_2\text{O})_n$ и др. [14, 31], представляющих собой гидратированные молекулы ряда основных кислот.

Влияние окружающей среды

Газовые примеси. Учитывая данные предыдущего раздела, можно прогнозировать важную роль газовых примесей, воздействующих на структуру и химический состав легких ионов. Данные количественного анализа продуктов ион-стимулированной нуклеации пока фрагментарны, но установлено, что существует значительный набор химических веществ, которые или резко увеличивают (окислы серы и азота, пары серной, азотной, соляной и др. кислот, аммиак и др.), или снижают до нулевых значений скорости конверсии «газ—аэрозоль» (галогены, пары большинства нефтепродуктов и др.) [16]. Позже будут оценены изменчивости массовой концентрации радиолитического аэрозоля (РА) при вариациях газового состава воздуха удаленных регионов.

Электрическое поле. В [11] показано, что управлять скоростью наработки аэрозольного вещества в биполярно ионизированном воздухе можно в лабораторных условиях путем регулировки коэффициента униполярности легких аэроионов, в частности путем наложения статического электрического поля. В рамках условия конверсии на биполярность объяснить этот результат можно тем, что удаление иона любой полярности равносильно удалению ионов обоих знаков. В реальной тропосфере средние подвижности легких ионов разных знаков отличаются на 10–20%, а естественные электрические поля в тропосфере малы (порядка 100 В/м). Считается поэтому, что они не могут оказывать заметного влияния на состав атмосферных ионов и конверсионные процессы. Соответствующие экспериментальные подтверждения, однако, пока отсутствуют.

Давление воздуха. Лабораторные эксперименты [11] показали, что с понижением давления от нормального до 100 гПа скорость роста массы новых частиц при облучении воздуха изотопом Рu-239 уменьшалась, но несколько медленнее, чем по линейному закону. Вид функции распределения частиц по размерам практически не изменялся.

Теоретическая зависимость показателей конверсии от давления оказалась неоднозначной. Так, подвижность аэроионов находится в обратной зависимости от давления среды. Подвижность ионов определяет характерное время и скорость рекомбинации, т.е. повышение скорости наработки кластеров и наночастиц в разреженном воздухе. С другой стороны, гидратное число, масса легкого иона и время гидратации пропорциональны величине атмосферного давления.

Относительная влажность воздуха. На рис. 1, построенном на основе данных из [11],

представлены зависимости массовой концентрации фото- и радиолитического аэрозоля M диаметром от 5 нм до 1 мкм от изменений относительной влажности воздуха, поступающего в ионизатор, в пределах 20–95% при температуре $T = 25^\circ\text{C}$. На выходе ионизаторов устанавливался проточный нагреватель воздуха, повышающий температуру воздуха с новыми аэрозольными частицами вплоть до 105°C .

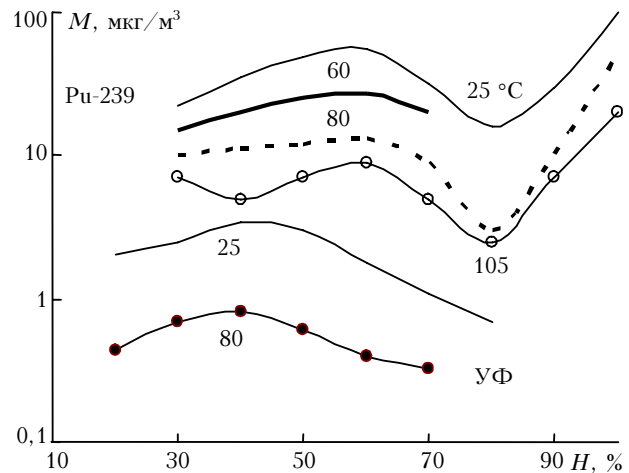


Рис. 1. Влияние относительной влажности H и температуры воздуха T на массовую концентрацию аэрозольных частиц M , произведенных при ионизации небольших объемов обеспыленного воздуха излучениями изотопа Рu-239 ($q = 5 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-3} \cdot \text{с}^{-1}$) и жесткого УФ ($q = 1,5 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-3} \cdot \text{с}^{-1}$). Время облучения 100 с

Из анализа рис. 1 вытекают следующие закономерности:

- зависимости $M = f(H)$ имели максимум в интервале $H = (60 \pm 5)\%$ для источника Рu-239 и $H = (45 \pm 5)\%$ для УФ-источника. Минимум всегда находился в интервале $H = (80 \pm 5)\%$;
- характер функции $M = f(H)$ для обоих источников сохранялся даже после нагрева аэрозоля на выходе ионизатора от 25 до 105°C ;
- с повышением относительной влажности воздуха выше $(80 \pm 5)\%$ имел место рост массовой концентрации частиц;
- нагрев облученного воздуха до температуры $(70 \pm 10)^\circ\text{C}$ приводил к частичному испарению новых аэрозольных частиц.

Требуется комментарий проявление двух максимумов функции $M(H)$, впервые зафиксированное в [11]. Логичным было бы ожидать плавный рост массы новых частиц при повышении относительной влажности H выше 60–70%, подобно ходу обводнения гигроскопических ядер [1, 4]. Но на практике мы видим довольно резкое (в 2–4 раза) увеличение концентрации M уже при росте влажности с 30 до 60%, достижение максимума при $H = (60 \pm 5)\%$ и затем спад до начального значения и даже более низкого при $H = (80 \pm 5)\%$. Достаточно очевидно, что этот эффект не связан с проявлением специфичной гигроскопичности РА.

Возможный ответ подсказывают результаты численного моделирования эволюции отрицательно-го легкого аэроиона [7]. Оказывается, что с повышением относительной влажности воздуха выше 50–60% число присоединенных к молекулярному иону молекул водяного пара, или число гидратации, может превысить значение $n = 4 \pm 1$. Вокруг первичного молекулярного иона O_2^- формируется заполненная оболочка из молекул H_2O . Ее наличие мешает переходу свободного электрона к молекулам с большей энергией сродства к электрону, в частности к молекулам NO_x , SO_x и др., так что «старение» легких ионов затрудняется. Формирование нейтральных кластеров и других частиц конденсата замедляется, что и наблюдается в эксперименте.

С повышением относительной влажности выше 80–85% начинает превалировать процесс обводнения новых частиц, которые в чистом воздухе при $H = 50\pm 60\%$ представляют собой капельки водного раствора азотной кислоты [31].

В целом в интервале времен облучения $t_0 = 5\div 7600$ с при нормальных атмосферных условиях скорости прироста суммарной массовой концентрации новых частиц не выходили из пределов $dM/dt = 0,25\div 2$ мкг/(м³·с).

Температура воздуха. Эксперименты [11] показали, что понижение температуры приземного воздуха в область отрицательных значений $-(10-20)$ °С увеличивает массу конденсата в 2–5 раз. Отдельные конкретные данные приведены на рис. 2. В лабораторных опытах эти тенденции проявлялись, однако, гораздо слабее.

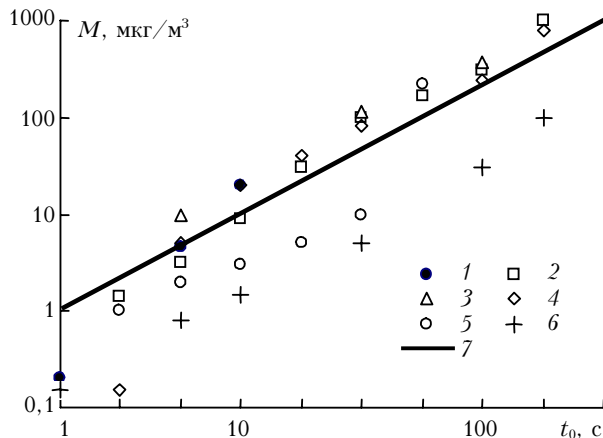


Рис. 2. Влияние времени облучения t_0 воздуха изотопом Рn-239 (ионизационный ток $I \approx 10^{-6}$ А) на массовую концентрацию новых аэрозолей M в характерных климатогеографических районах: 1 – горы (Памир, 3000 м, сентябрь 1989 г., $T = (10 \pm 10)$ °С, $H = (50 \pm 20)\%$); 2 – море (Кольский залив, декабрь 1989 г., $T = -(4\div 10)$ °С, $H = (70 \pm 20)\%$); 3 – лесостепь (Украина, район ЧАЭС, июнь 1986 и 1987 гг.); 4 – пустыня (Таджикистан, сентябрь 1989 г., $T = (25 \pm 3)$ °С, $H = (30\pm 10)\%$); 5 – лес (Подмосковье, июнь 1986 г., $T = (20 \pm 5)$ °С, $H = (70 \pm 20)\%$); 6 – автострада (вблизи г. Обнинска, март 1986 г., $T = (5 \pm 3)$ °С, $H = (80 \pm 10)\%$); 7 – расчет по формуле (1)

Энергетические факторы

Если исходить из общих физических представлений, то должно существовать условие на уровень ионизирующих излучений, ниже которого конверсия «газ–аэрозоль» не реализуется. Многочисленные экспериментальные данные (см. обзоры в [11, 16]) получены применением нуклидов с активностью, многократно превышающей естественный уровень. Как отмечалось, в последние годы в ряде регионов Европейского Севера зафиксированы многочисленные факты интенсивных эмиссий средних ионов и аэрозольных частиц в нанометровом интервале размеров $D = 3\div 10$ нм и ядер конденсации [19–21, 27, 32]. Для их интерпретации привлекались различные модели ион-стимулированной конверсии. По данным [12, 13, 18, 25, 30] упомянутая «рекомбинационная» модель конверсии позволила количественно интерпретировать всплески концентрации средних ионов и наночастиц при естественной интенсивности ионообразования – порядка 5–10 пар ион в 1 см³ за 1 с.

Несмотря на широкий набор используемых в экспериментах ионизаторов, остались неясными критерии их эффективности в реальных приземных атмосферах. Ниже будут сопоставлены удельные затраты жесткого УФ- и альфа-радиоактивного излучений на выход аэрозольного вещества в характерных климатогеографических районах, а также оценены предельные уровни ионизации.

Влияние вида излучений

Методика натурального эксперимента состояла в систематических измерениях дисперсного состава фоновых аэрозолей диаметром от 5 нм до 10 мкм и аэрозолей, образующегося после облучения наружного воздуха в проточных камерах объемом 400 и 1000 см³. На боковой поверхности металлической камеры объемом 400 см³ помещались подложки с изотопом Рn-239. Второй ионизатор собран на основе кварцевой трубы диаметром 5 см и длиной 22 см. На удалении 2 см вдоль трубы монтировалась кварцевая лампа типа ПРК, имеющая в спектре излучения жесткие «ионизирующие» линии. Фотоэлектрический спектрометр аэрозолей РС-218 фирмы Rousco Inc., США, и электрический анализатор 3030 фирмы Thermo Systems Inc., США, а также анализаторы подвижности атмосферных ионов использовались для измерения характеристик аэрозолей диаметром от 1 нм до 5 мкм [15, 29].

Спектрометр облачных ядер по пересыщениям содержал разнотемпературную поточную камеру и фотоэлектрический счетчик типа АЗ. Приборы размещались на высоте 1,5 м над поверхностью почвы. Воздух поступал в измерительные приборы либо непосредственно, либо через ионизаторы с тканевым фильтром ФШ-15 на входе.

Результаты измерений счетной N и массовой M концентрации радиолитического и фотолитического аэрозоля для отдельных значений поглощенной дозы R излучения, а также фоновых аэрозолей

Таблица 2

Характерные значения счетной концентрации, ее относительной изменчивости и массовой концентрации аэрозольных частиц размерами $D = 5\div 100$ нм

Вид излучения	α -излучение Pu-239		Жесткий УФ	Фоновая радиация
	Счетная концентрация N , см^{-3}	$2 \cdot 10^4$	$4 \cdot 10^4$	$3 \cdot 10^5$
Изменчивость $\delta N/N$, %	30	15,3	60	16
Массовая концентрация M , $\text{мкг}/\text{м}^3$	2,7	15	8	10^{-4}
Поглощенная энергия R , $\text{эВ}/\text{см}^3$	$3 \cdot 10^{12}$	$5 \cdot 10^{13}$	10^{13}	$3 \cdot 10^6$
Интенсивность ионообразования, q , $\text{см}^{-3} \cdot \text{с}^{-1}$	$1,5 \cdot 10^{10}$	$2,5 \cdot 10^{11}$	$5 \cdot 10^{10}$	$5,5 \pm 0,5$
Время облучения t_0 , с	6	6	6	$2 \cdot 10^4$

Примечание. Частицы сформированы при действии отдельных источников биполярной ионизации. Относительная влажность воздуха (70 ± 20)%, температура (21 ± 10) °С. Лесистая местность вблизи г. Обнинска, Калужская обл., лето 1996 г. Данные для условий фоновой радиации в эпизоде с эмиссией наночастиц заимствованы из [17].

в Подмоскowie представлены в табл. 2. Сопоставление их позволяет выявить следующие основные тенденции:

1. Массовую концентрацию искусственного аэрозоля определяет не вид излучений, а поглощенная удельная энергия R радиации. Ее увеличение примерно в 10 раз приводит, как видно, к увеличению массовой концентрации с 2,7 до 15 $\text{мкг}/\text{м}^3$. В эпизодах с эмиссиями наночастиц при естественной ионизации (параметр R был в $5 \cdot 10^3$ раз и более низким, чем в ионизаторах) массовая концентрация новых частиц достигала значений, также примерно в $5 \cdot 10^3$ раз сниженных: $M \approx 6 \cdot 10^{-4}$ $\text{мкг}/\text{м}^3$.

2. По сравнению со средним значением суммарной массовой концентрации фоновых аэрозоля в Подмоскowie $M = 50\div 100$ $\text{мкг}/\text{м}^3$ [8] наблюдаемые значения M при искусственной ионизации были существенно ниже. Но следует учесть, что массовая концентрация приземного фоновых аэрозоля на 80–90% определяется вкладом грубодисперсной фракции размеров $D > 0,5$ мкм. В случае радиолитического аэрозоля 80–90% массы обеспечивают тонкодисперсные частицы диаметром менее 0,1 мкм [10].

3. Зависимость счетной концентрации N от параметра R имеет максимум в области $R \sim 10^{13}$ $\text{эВ}/\text{см}^3$. Дальнейший рост значений R приводит к уменьшению доли мелких частиц из-за ускорения их коагуляционного стока на возникающие более крупные ядра.

4. Более высокие, чем для фоновых аэрозоля, значения изменчивости концентраций $\delta N/N$ искусственного аэрозоля обусловлены не механическим перемешиванием, а вероятней всего, другими факторами, например изменчивостью концентрации газов-прекурсоров [16].

Влияние поглощенной энергии излучения

Для выяснения характера зависимости интегрального выхода M радиолитического аэрозоля от параметра R , а также для оценок влияния географического и метеорологического факторов на зависимость $M = f(R)$ проведены измерения дисперсного состава новых аэрозолей на выходе ионизатора с изотопом Pu-239 в регионах с континентальным, морским, горным и аридным климатом.

Результаты измерений обобщены на рис. 2. Для перехода от данных дисперсного анализа к массовой концентрации M использовано значение плотности вещества аэрозоля $\rho = 1$ $\text{г}/\text{см}^3$. Здесь же приведена теоретическая зависимость максимально возможной массовой концентрации M ($\text{мкг}/\text{м}^3$) радиолитического аэрозоля от производительности и времени действия ионизатора [11]:

$$M = 3 \cdot 10^5 q m_i t_0, \quad (1)$$

где $q = I/eB \approx 1,5 \cdot 10^{10}$ $\text{см}^{-3} \cdot \text{с}^{-1}$ – интенсивность ионообразования; I – ионизационный ток изотопа; $e = 1,6 \cdot 10^{-19}$ Кл – элементарный заряд; $m_i = m_+ + m_- \sim 2 \cdot 10^{-22}$ г – сумма средних масс отрицательного и положительного состаренного легкого иона; $B = 400$ см^3 – объем ионизатора; t_0 – время облучения. Как видно, в интервале времен облучения t_0 от 1 до 10^3 с соблюдалась линейность функции $M = A t_0$, где A – коэффициент пропорциональности, изменяющийся в приземной атмосфере различных регионов (Подмоскowie, Средняя Азия, Западная Украина) в сравнительно небольших пределах: $A = (1,1 \pm 0,3)$ $\text{мкг}/(\text{м}^3 \cdot \text{с})$.

С учетом погрешностей измерения ионного тока $\pm 25\%$ и дисперсности аэрозолей $\pm 20\%$ можно сделать вывод, что зависимость (1) достаточно адекватно описывает кинетику наработки аэрозольного вещества при увеличении вклада ионизирующей энергии в пределах трех порядков. Экспериментальные данные на рис. 2 позволяют сформулировать ряд других интересных выводов:

1) Формула (1) получена в предположении, что для формирования аэрозольного вещества используются все рождающиеся при ионизации легкие ионы. Поскольку данные для удаленных районов с горным, степным и морским климатом группируются вблизи расчетной прямой (1), есть основание судить, что для данного ионизатора при временах облучения выше 10 с влияние местных условий, включая метеорологические, незначительно.

2) В вегетирующих лесах и вблизи автодороги значения M снижены в 10 раз и более по сравнению с рассчитанными по (1). Газовый анализ [31] показал, что здесь характерными были уровни углеродородов в 5–10 раз выше, чем, например,

в горных и полярных районах. Согласно [11] примеси углеводородов снижают содержание окислов азота в воздухе. При более продолжительном облучении, когда начинает эффективно работать собственный радиохимический механизм производства окислов азота, ускоряется наработка конденсата и начинает выполняться соотношение (1).

3) При небольших временах облучения $t_0 < 10$ с независимо от района измерения значения M имеют больший разброс и всегда занижены по сравнению с теоретически ожидаемыми (1). С учетом предыдущего анализа можно полагать, что основными причинами наблюдаемого факта являются вариации концентрации ряда примесных газов, а также относительной влажности и температуры воздуха.

Чтобы получить репрезентативные данные измерений при значениях удельной поглощенной энергии $R < 3 \cdot 10^{12}$ эВ/см³, потребовалось увеличение экспозиции до 10^4 с и более. Здесь, однако, из-за ограниченности объема ионизаторов мы столкнулись с трудно учитываемым явлением диффузиофореза образующихся ионов и наночастиц. Для получения оценочных закономерностей конверсии при низких R рассмотрим рис. 3, где приведены результаты измерений кинетики концентраций средних ионов и наночастиц при их интенсивных эмиссиях весной 2000 г. в обс. Хиитиала, Финляндия [18].

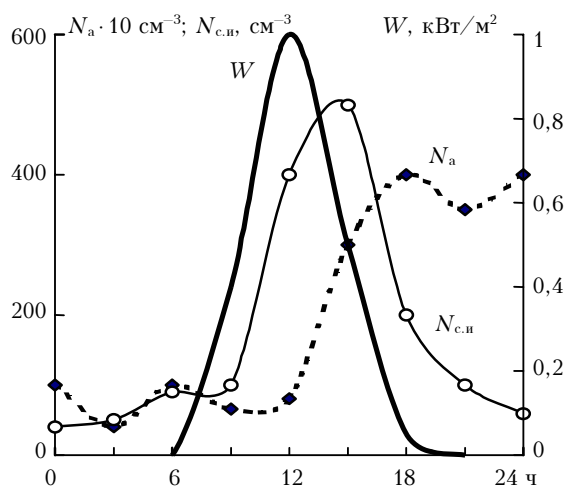


Рис. 3. Пример записи суточных вариаций концентрации средних ионов $N_{с.и}$ и аэрозолей N_a диаметром больше 3 нм, а также полного потока солнечной радиации W в эпизоде с естественной эмиссией новых частиц при интенсивности ионообразования $(5,5 \pm 0,5) \text{ см}^{-3} \cdot \text{с}^{-1}$. Данные из [17]

Как видно, вначале (начиная с 9 ч утра) наблюдались только эмиссии средних ионов. Примерно в полдень появились наночастицы диаметром выше 3 нм. Увеличение их концентрации до $N_a = 4000 \text{ см}^{-3}$ происходило в течение 5–6 ч. К 18 ч массовая концентрация нанометровых частиц достигла значения $M = 10^{-4} \text{ мкг/м}^3$ при среднем кубическом диаметре новых частиц ~ 4 нм. В приближении «рекомбинационной» модели конверсии для получения этой массы конденсата в единице объема была затрачена ионизирующая энергия

$$R = 2q\epsilon t_0 \approx 3 \cdot 10^6 \text{ эВ/см}^3, \quad (2)$$

где $q = (5,5 \pm 0,5) \text{ см}^{-3} \cdot \text{с}^{-1}$ – естественная интенсивность ионообразования на данной площадке [22, 24]; $\epsilon \approx 16 \text{ эВ}$ – энергия образования одного легкого иона; $t_0 = 2 \cdot 10^4 \text{ с}$ – время экспозиции исследуемой воздушной массы. Коэффициент 2 учитывает, что в каждом акте ионизации образуются отрицательный и положительный ионы. Запись (2) означает, что в оптимальных условиях на получение одной молекулы конденсата затрачивается не менее 10 эВ ионизирующей энергии.

Важно отметить, что примерно линейный характер роста счетной концентрации наночастиц N_a наблюдался в течение 6 ч, а корреляция с интенсивностью солнечного излучения не просматривалась. После 17–18 ч рост N_a замедлился, что, по данным [17], связано с интенсивным коагуляционным ростом и укрупнением наночастиц. Объемная (массовая) концентрация при этом продолжала равномерно возрастать до момента прекращения эмиссии нового аэрозольного материала.

На рис. 4 результаты измерений при естественной и искусственной ионизации обобщены и сопоставлены с расчетами по формулам (1) и (2), полученными в рамках «рекомбинационной» модели конверсии и в предположении полного использования «ионного» ресурса.

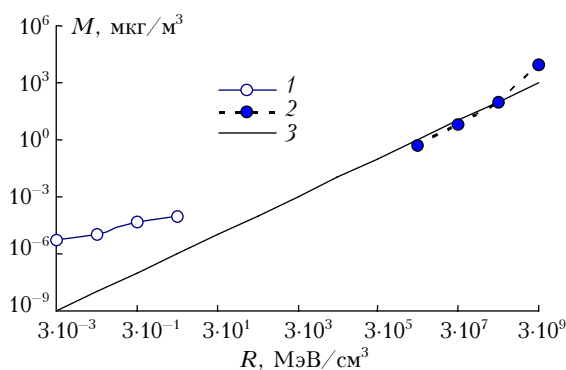


Рис. 4. Массовая концентрация M новых частиц как функция удельной поглощенной энергии излучения R при естественной 1 и искусственной 2 ионизации воздуха. Кривая 3 – результат расчетов по формулам (1) и (2)

Видно, что порогу появления новых частиц при естественной ионизации соответствует минимальное значение удельной поглощенной энергии $R = 10^3 \text{ эВ/см}^3$. Это означает, что вся толща тропосферы при характерных значениях интенсивности ионообразования 3–20 пар ионов/(см³·с) имеет вполне определенные ресурсы для ион-стимулированного формирования аэрозольных частиц.

Нужно отметить также удовлетворительное соответствие хода эмпирической и расчетной функций $M(R)$ в широком интервале энергий $R = 10^2$ – 10^9 МэВ/см^3 . Это дает основание, во-первых, предполагать определенную общность механизма конверсии «газ–аэрозоль» в широком интервале интенсивности ионообразования: от естественных значений $q = 5 \div 10 \text{ см}^{-3} \cdot \text{с}^{-1}$ до полученных при

интенсивной ионизации $q = 2,5 \cdot 10^{11} \text{ см}^{-3} \cdot \text{с}^{-1}$. Во-вторых, появляется физическое основание считать, что при прочих равных условиях основным фактором наработки конденсата является поглощенная энергия ионизирующего излучения.

3. Конденсационная активность радиолитических ядер

Представленные факты формирования новых аэрозольных частиц при биполярной ионизации воздуха в различных климатогеографических зонах дают необходимую, но пока недостаточную информацию, чтобы судить о существенном влиянии этих частиц на облакообразующие процессы. Ответ можно получить, анализируя экспериментальные данные о конденсационных свойствах новых частиц в реальной, а не только в модельной атмосфере, как на рис. 1.

Результаты натурных измерений влияния относительной влажности на условия формирования новых частиц при ионизации альфа-радиоактивным и фотоионизирующим излучениями представлены на рис. 5.

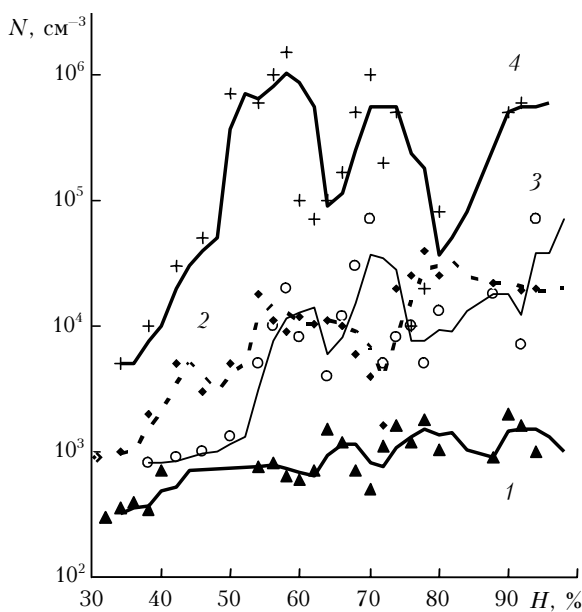


Рис. 5. Счетные концентрации N аэрозольных частиц диаметром от 5 до 1000 нм как функции относительной влажности воздуха в летний период (лесная местность, Подмосковье): 1 – естественный аэрозоль; 2 – после ионизации изотопом Рu-239 при поглощенной энергии $R = 7 \cdot 10^{12} \text{ эВ/см}^3$; 3 – то же при $R = 5 \cdot 10^{13} \text{ эВ/см}^3$; 4 – после ионизации жестким УФ при $R = 10^{12} \text{ эВ/см}^3$. Линии – результат скользящего усреднения

Можно видеть, что, как и на рис. 1, характер зависимости концентрации аэрозоля от относительной влажности воздуха H идентичен для обоих видов излучений: постепенное увеличение счетной концентрации N до первого максимума в районе 50–75%, минимум в районе $H = (80 \pm 5)\%$, затем рост до значения $H = 95\%$. Изменение поглощенной энергии излучений в 15 раз эти закономерности

не меняет. В целом в интервале относительной влажности воздуха $H = 30\text{--}95\%$ изменения концентрации радиолитического аэрозоля достигают порядка (100 ± 50) раз, а концентрации фонового аэрозоля тех же размеров – не более 3 раз.

Результаты измерения спектров радиолитических ядер по пересыщениям иллюстрирует рис. 6.

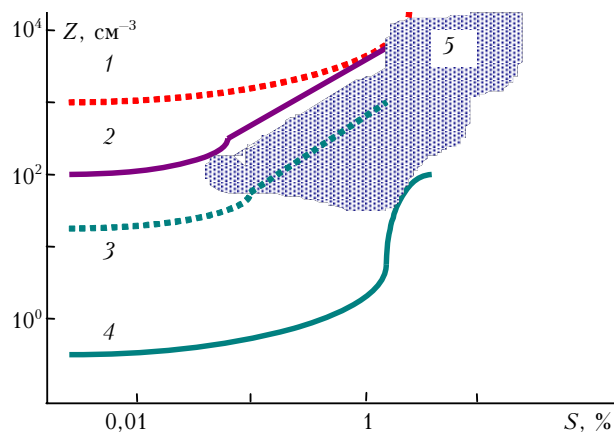


Рис. 6. Интегральный спектр распределений концентраций ядер конденсации Z по величине пересыщений S . Кривые 1–4 получены в эпизодах с ионизацией наружного воздуха изотопом Рu-239, область 5 – без ионизации. Данные 1, 3, 5 получены при подаче в ионизатор наружного воздуха с частицами фонового аэрозоля; 2, 4 – после фильтрации от фоновых частиц. Кривые 1 и 2 получены при нижнем пределе измерения каплей $D = 0,3 \text{ мкм}$, 3 и 4 – $D > 3 \text{ мкм}$

Использовалась разнотемпературная термодиффузионная камера с фотоэлектрическим счетчиком капель. Интервал модельных пересыщений по водяному пару составлял $S = 0,01\text{--}40\%$, измеряемых размеров выросших капелек $0,3\text{--}10 \text{ мкм}$. При измерении активности фоновых ядер конденсации на вход камеры поступал наружный воздух при нормальных атмосферных условиях, а при измерении активности искусственных ядер – либо очищенный от аэрозолей и прошедший ионизатор на основе изотопа Рu-239, либо в смеси с фоновыми ядрами. Новые частицы формировались при поглощенной энергии излучения $R = 3 \cdot 10^{12} \text{ эВ/см}^3$.

Для сопоставлений на рис. 6 приведена область распределения концентраций фоновых ядер Z , наблюдаемых в приземной атмосфере в интервале пересыщений $S = 0,1\text{--}10\%$. В отличие от фонового радиолитического аэрозоля формировал в 10 раз большее количество мелких ядер, но достаточно активных ядер. При умеренных пересыщениях ($S = 0,1\text{--}10\%$) на этих ядрах формировались дымки с концентрацией каплей 1000 см^{-3} диаметром $0,3\text{--}3 \text{ мкм}$. При малых пересыщениях $S < 0,1\%$ преимущество в активности облачных ядер конденсации, т.е. в способности образовывать более крупные капли, имел фоновый аэрозоль.

Важно заметить, что, как видно из рис. 6, пребывание фонового аэрозоля в ионизаторе также стимулирует повышение его конденсационной активности. Физический анализ этого эффекта, выполненный в [9] применительно к аэрозольным

процессам в 30-км зоне аварии Чернобыльской АЭС, предполагает осаждение радиолитических ядер на более крупные фоновые аэрозольные частицы и повышение их конденсационной активности.

Таким образом, аэрозольные частицы, сформированные в ходе ион-стимулированной конверсии «газ–аэрозоль», обладают свойствами облачных ядер конденсации и могут принимать участие в модификации облачных процессов.

Заключение

1. Биполярная ионизация воздуха в приземной атмосфере полярных, морских, горных, лесных и других районов излучениями изотопа Pu-239 и жесткого ультрафиолета при интенсивности ионообразования в пределах от 5 до 10^{12} пар ионов/ $(\text{см}^3 \cdot \text{с})$ стимулирует образование новых аэрозольных частиц диаметром 5–100 нм. Энергетические затраты превышают 100 эВ на каждые 10 молекул конденсата.

2. Экспериментально оцененному нижнему порогу появления новых частиц при естественной ионизации в приземной атмосфере соответствует значение удельной поглощенной энергии $R = 10^3$ эВ/ см^3 . При прочих равных условиях основным фактором наработки нового аэрозоля является поглощенная энергия ионизирующего излучения. Основными факторами, снижающими эффективность конверсии «газ–частица», являются относительная влажность и температура воздуха, а также содержание ряда примесных газов. Наименьшее влияние этих факторов оказывается при интенсивной и длительной ионизации.

3. В широком интервале поглощенных энергий $R = 10^4 \pm 10^{13}$ эВ/ см^3 удовлетворительное описание эмпирических значений массовой концентрации новых частиц получено в рамках «рекомбинационной» модели ион-стимулированной конверсии «газ–аэрозоль». Это говорит об общности механизма конверсии «газ–аэрозоль» при интенсивностях ионообразования, характерных как для тропосферы $q = 5\text{--}10 \text{ см}^{-3} \cdot \text{с}^{-1}$, так и эпизодов тяжелых ядерных аварий с выбросом нуклидов.

4. Аэрозольные частицы, сформированные при биполярной ионизации, обладают основными свойствами облачных ядер конденсации и могут принимать участие в модификации облачных процессов.

Работа была частично поддержана грантами № 04-05-39020 и 04-05-64925 Российского фонда фундаментальных исследований.

1. Качурин Л.Г. Физические основы воздействий на атмосферные процессы. Л.: Гидрометеониздат, 1990. 462 с.
2. Кондратьев К.Я. От нано- до глобальных масштабов: свойства, процессы образования и последствия воздействий атмосферного аэрозоля // Оптика атмосф. и океана. 2004. Т. 17. № 10. С. 787–807.
3. Лушиников А.А. Нуклеационные всплески в атмосфере // Физика атмосферного аэрозоля. М.: Диалог-МГУ, 1999. С. 207–215.
4. Мэйсон Б.Дж. Физика облаков. Л.: Гидрометеониздат, 1961. 542 с.

5. Поздняков Д.Е. Вторичные аэрозоли, или аэрозоли, образующиеся *in situ* // Аэрозоль и климат / Под ред. К.Я. Кондратьева. Л.: Гидрометеониздат, 1991. С. 141–190.
6. Розенберг Г.В. Тонкодисперсный аэрозоль и климат // Изв. АН СССР. Физ. атмосф. и океана. 1982. Т. 18. № 11. С. 1192–1198.
7. Сальм Я.Й. Ионы в приземном слое атмосферы // Химия плазмы. 1993. Вып. 17. С. 194–217.
8. Смирнов В.В. Аэрозольный климат Подмосковья // Метеорол. и гидрол. 2003. № 9. С. 37–49.
9. Смирнов В.В. Деформации характеристик атмосферы в районах аварий атомных электростанций // Эколого-геофизические аспекты ядерных аварий. М.: Гидрометеониздат, 1992. С. 117–130.
10. Смирнов В.В. Изменения ионного, аэрозольного и газового состава воздушной среды при ее радиоактивном загрязнении // Изв. РАН. Физ. атмосф. и океана. 1992. Т. 28. № 9. С. 958–966.
11. Смирнов В.В. Ионизация в тропосфере. СПб.: Гидрометеониздат, 1992. 312 с.
12. Смирнов В.В. Наночастицы в атмосфере: происхождение и эволюция // Тезисы докл. XV Междунар. школы морской геологии «Геология морей и океанов». 17–21 ноября 2003 г. Т. 2. М.: Геос. С. 142–143.
13. Смирнов В.В. Факторы изменчивости концентрации средних ионов в приземной атмосфере // Изв. РАН. Физ. атмосф. и океана. 2005. Т. 41. № 6. С. 1–17.
14. Смирнов В.В. Электрические факторы чистоты воздуха // Тр. ИЭМ. 1983. Вып. 30(104). С. 76–106.
15. Смирнов В.В., Савченко А.В. Высокочувствительные спектрометры легких и средних атмосферных ионов // Сб. научн. трудов Пятой Российской конф. по атмосф. электричеству. В 2 т. Т. I. Владимир: Транзит ИКС, 2003. С. 72–75.
16. Смирнов В.В., Савченко А.В. Ресурсы ионизированной атмосферы как источника аэрозоля // Химия в интересах устойчивого развития. 2005. Т. 13. № 5. С. 649–654.
17. Смирнов В.В., Сальм Я.Й., Мякела Ю.М., Паатеро Ю. Динамика атмосферного аэрозоля, ионов и минорных газов при вторжениях арктического воздуха // Оптика атмосф. и океана. 2004. Т. 17. № 1. С. 71–80.
18. Смирнов В.В., Сальм Я.Й., Мякела Ю.М., Паатеро Ю. О взрывном появлении сверхмалых аэрозольных частиц в атмосфере // Метеорол. и гидрол. 2005. № 4. С. 40–55.
19. Hämeri K., Väkevä M., Aalto P., Kulmala M., Swietlicki E., Zhou J., Seidl W., Becker E., O'Dowd C.D. Hygroscopic and CCN properties of aerosol particles in boreal forest // Tellus. B. 2001. V. 53. P. 359–379.
20. Harrison R.G., Aplin K.L. Atmospheric condensation nuclei formation and high-energy radiation // J. Atmos. and Sol.-Terr. Phys. 2001. V. 63. P. 1811–1819.
21. Kulmala M., Mäkelä J.M., Koponen I.K., Pirjola L. Formation of cloud condensation nuclei in boreal forest area // J. Aerosol Sci. 1998. V. 29. P. S567–S568.
22. Laakso L., Petäjä T., Lehtinen K.E.J., Kulmala M., Paatero J., Hörrak U., Tammet H., Joutsensaari J. Ion production rate in a boreal forest based on ion, particle and radiation measurements // Atmos. Chem. Phys. 2004. V. 4. P. 1933–1943.
23. Kulmala M., Vehkamäki H., Petäjä T., Dal Maso M., Lauri A., Kerminen V.-M., Birmili W., McMurry P.H. Formation and growth rates of ultrafine atmospheric particles: a review of observations // J. Aerosol Sci. 2004. V. 35. N 2. P. 143–176.
24. Mäkelä J.M., Salm J., Smirnov V.V., Koponen I., Paatero J., Pronin A.A. Electrical charging state of

- fine and ultrafine particles in boreal forest air // *J. Aerosol Sci.* 2001. V. 32. P. S149–S150.
25. *Mäkelä J.M., Smirnov V.V.* Ultrafine aerosol origin in weak ionized atmosphere // Intern. Aerosol Conf. to memory Prof. A. Sutugin (Moscow, Russia, 26–30 June 2000). Moscow, 2000. P. 156–157.
 26. *Martinsson B.G., Frank G., Cederfelt Sven-Inge.* Droplet nucleation and growth in orographic clouds in relation to the aerosol population // *Atmos. Res.* 1999. V. 50. N 3–4. P. 289–315.
 27. *O'Dowd C.D., McFiggan G., Creasey D.J., Pirjola L., Hoell C., Smith M.H., Allan B.J., Plane J.M.C., Heard D.E., Lee J.D., Pilling M.J., Kulmala M.* On the photochemical production of new particles in the coast boundary layer // *Geophys. Res. Lett.* 1999. V. 26. N 12. P. 1707–1710.
 28. *Smirnov V.V., Salm J., Mäkelä J.M.* Study of the emission of nanometer aerosol particles and intermediate air ions in atmospheric boundary layer // *Nucleation and Atmospheric Aerosols-2004: 16th Intern. Conf. Japan, Kyoto, 2004.* P. 316–319.
 29. *Smirnov V.V.* Differential ultrafine aerosol and air ion spectrometer // Intern. Aerosol Conf. to memory Prof. A. Sutugin (Moscow, Russia, 26–30 June 2000). Moscow, 2000. P. 219–220.
 30. *Smirnov V.V., Mäkelä J.M.* Ultrafine nucleus in ionised air // Proc. 12th Int. Conf. on Atmospheric Electricity (compiled by S. Chauzy and P. Laroshe. 9–13 June 2003, Versailles, France). P. 397–399.
 31. *Smirnov V.V., Savchenko A.V.* Ion-Stimulated Nucleation: Role of Impurity Gases // *Nucleation and Atmospheric Aerosols-2004: 16th Intern. Conf. Japan, Kyoto, 2004.* P. 281–285.
 32. *Smirnov V.V., Shevchenko V.P.* Nanoaerosols in the Arctic atmosphere // Proc. European Aerosol Conf. EAC 2005. Belgium, Ghent. 28 Aug. – 02 Sept 2005. (In print).
 33. *Turco R.P., Yu F., Zhao J.-X.* A new source of tropospheric aerosols: Ion-induced nucleation // *J. Geophys. Res.* 1998. V. 25. P. 635–638.
 34. *Yu F., Turco R.P.* From molecular clusters to nanoparticles: Role of ambient ionization in tropospheric aerosol formation // *J. Geophys. Res.* 2001. V. 106. P. 4797–4814.
 35. *Yu F., Turco R.P.* Ultrafine aerosol formation via ion-mediated nucleation // *Geophys. Res. Lett.* 2000. V. 27. N 6. P. 883–886.

V.V. Smirnov, A.V. Savchenko, V.N. Ivanov. **Modification of condensation nuclei under energy impacts. 1. Ion-stimulated nucleation.**

Experiments in different climatic regions of Russia have shown that the bipolarly ionizing radiation can stimulate formation of new aerosol particles of 5–10 nm in diameter at the energy consumption of about 100 eV for each 10 condensate molecules independently of the radiation type and intensity within $5\text{--}10^{12}$ ion pairs/($\text{cm}^3 \cdot \text{s}$). These particles have principle properties of cloud condensation nuclei and can participate in modification of cloud processes. Main factors decreasing the efficiency of the gas particle conversion are relative humidity and temperature of air, as well as some admixture gases. The influence of these factors is the less under impact of intense and long time ionization.

Main factor in formation of new aerosol, all other things being equal, is the absorbed energy of ionizing radiation R . The R value equal to 10^3 eV/ cm^3 is a threshold one for new particle appearance under natural ionization in the low atmosphere.