

В.В. Смирнов¹, Я.Й. Сальм², Ю.М. Мякела³, Ю. Паатеро⁴

Динамика атмосферного аэрозоля, ионов и минорных газов при вторжениях арктического воздуха

¹ *Институт экспериментальной метеорологии, НПО «Тайфун», г. Обнинск, Россия*

² *Институт физики окружающей среды, Тартуский университет, г. Тарту, Эстония*

³ *Институт физики, Университет технологий, г. Тампере, Финляндия*

⁴ *Институт метеорологии, г. Хельсинки, Финляндия*

Поступила в редакцию 14.10.2003 г.

В ходе Международного комплексного эксперимента ESUP, проведенного в марте–апреле 2000 г. в Южной Финляндии, впервые получены корреляционные связи между вспышечной генерацией ультрамалых ядер конденсации (диаметром от 3 до 10 нм) и концентрациями легких, средних и тяжелых ионов, а также газов NO, NO_x, SO_x, O₃, CO₂ и радона, атмосферных аэрозолей в интервале размеров 10 нм–10 мкм, состоянии метеозлементов в приземном слое и др. Найденные связи помогают уточнить ряд положений о природе явления.

Введение

В работах [12, 21, 24, 30 и др.] представлены ряды регулярных наблюдений ранее неизвестного атмосферного явления, когда в определенной синоптической ситуации происходят интенсивные эмиссии аэрозольных частиц нанометрового интервала размеров и их последующее укрупнение.

В англоязычной литературе в описании этого явления используется термин «nucleation burst» — нуклеационный всплеск (НВ). Выяснение природы и значимости НВ было предметом изучения нескольких европейских проектов, в частности EUROFLUX [30] и BIOFOR [15, 16, 21]. Несмотря на значительный комплекс физических, метеорологических и биохимических исследований, механизмы явления НВ и связь с другими процессами не были выяснены. Не было ясности и с другим явлением — интенсивными эмиссиями в приземной атмосфере средних (СИ) и тяжелых (ТИ) атмосферных ионов [18, 23, 25].

Цель данной работы состояла в обобщении результатов международного комплексного эксперимента ESUP-2000 (Electrical State of Ultrafine Particles), проведенного в марте — апреле 2000 г. в Южной Финляндии. Место экспериментов — лесная обл. Хиитигала в 230 км к северу от Хельсинки, где на основе градиентной метеорологической мачты с уровнями 4, 16 и 67 м создан уникальный измерительный комплекс SMEAR II [17] для комплексного изучения пограничного слоя, лесной микрометеорологии, атмосферных аэрозолей и минорных газов. Акцент экспериментов состоял в выявлении связей между вариациями концентрации аэрозолей в широком интервале размеров (от 3 нм до 10 мкм), атмосферных ионов разной подвижности [$u = 5-5 \cdot 10^{-3} \text{ см}^2/(\text{В} \cdot \text{с})$] и газов O₃,

NO, NO_x, SO_x, CO₂ в приземном слое атмосферы. На основе этих и сопутствующих метеорологических данных планировалось оценить роль фотохимических и электрических процессов в формировании аэрозольного вещества в атмосфере и влияние НВ на электрическое состояние атмосферы.

1. Методики и аппаратура

Измеритель АЛСИ-1 для спектрометрии ионов подвижностью $3-0,1 \text{ см}^2/(\text{В} \cdot \text{с})$ создан на основе дифференциального аспирационного шестиканального счетчика аэроионов UT-8515 [19]. Впоследствии прибор был приспособлен для непрерывного мониторинга спектра подвижности легких и средних ионов с управлением от компьютера [28]. Пробы отбирались со скоростью около $2000 \text{ см}^3/\text{с}$ через металлическую трубу длиной 1 м и диаметром 10 см. Время измерения полного спектра около 5 мин. Интервалы измерений этого и других приборов приведены в табл. 1.

С помощью четырех универсальных интегральных счетчиков аэроионов типа UT-8401 [19], соединенных в общую аспирационную сеть, определялись концентрации легких, средних и тяжелых ионов. Длительность цикла измерения 10 мин. Полярные электропроводности воздуха определялись непрерывно с помощью классического измерителя аэроионов типа Гердиена [13].

Для измерения спектра размеров и концентрации частиц в интервале $D = 5 \text{ нм} \div 1 \text{ мкм}$ использовался электрический анализатор аэрозоля ДАЭС-2 [29]. Принцип действия: униполярная зарядка аэрозолей, селекция заряженных аэрозолей по подвижностям и измерение ионного тока по методу Фарадея. Объемный расход аэрозоля до $250 \text{ см}^3/\text{с}$.

Таблица 1

Измеряемые в эксперименте ESUP характеристики приземной атмосферы

Элемент	Обозначение	Подвижность, см ² /(В·с)	Диаметр, нм	Измеритель	Оператор
Легкие ионы	n_-	0,35–5	1,9–0,5	Счетчик ионов UT8401 – 4 шт.	Эстония
	n_-, n_+	0,9–3,2	1,6–0,6	Спектрометр АЛСИ-1	Россия
	C_-, C_+	2–∞		Измеритель электрической проводимости воздуха типа Гердиена	Финляндия
Средние ионы	m_-	0,035–0,35	7,4–1,9	Счетчик аэроионов UT8401	
	M_-, M_+	0,12–0,9	3,5–1,6	Спектрометр ионов АЛСИ-1	
Тяжелые ионы	N_-	0,005–0,035	20–7,4	Счетчик ионов UT8401	
Аэрозоль	N_-, N_a	$0,25–2,5 \cdot 10^{-5}$	3–500	Спектрометр DMPS	Финляндия
	N_a		$5 \cdot 10^3$	Электрический анализатор ДАЭС-2	Россия
	N_a		$500–5 \cdot 10^3$	Счетчик PC-218 Royco Inc., США	Россия
Электрическое поле	E_z	$E_z = 20–1000$ В/м		Измеритель напряженности ИНЭП	Россия

Как и перечисленные выше приборы, анализатор ДАЭС-2 находился в отдельном здании в лесной зоне. Пробы отбирались круглосуточно на высоте около 2 м. Для управления и сбора данных использовались четыре персональных компьютера. Спектр размеров грубодисперсных частиц ($D = 0,5 \div 5$ мкм) контролировался с помощью фотоэлектрического счетчика PC-218 Royco Instr. Co., USA, с осветителем в виде лампы накаливания и фотодиодом по направлению угла рассеяния вперед $5–30^\circ$. Напряженность электрического поля оценивалась эпизодически по показаниям ротационного флюксметра ИНЭП в интервале от 20 до ± 1000 В/м. Сенсор ИНЭП устанавливался на открытой площадке на удалении от здания 20 м.

Остальные измерители и сенсоры размещались в здании упомянутой выше станции SMEAR II на удалении 450 м. Здесь для анализа дисперсии аэрозолей $D = 3 \div 25$ и $20–500$ нм использовалась система DMPS из двух дифференциальных анализаторов электрической подвижности типа Nauke [33]. Аэрозольный поток составлял 2,5 л/мин. Сепарированные по подвижности частицы поступали на счетчики ядер конденсации TSI-3025 и TSI-3010. Фактический цикл измерения для всей области размеров $D = 3 \div 500$ нм составлял около 10 мин. Высота отбора проб 2 м. Содержание радона в воздухе регистрировалось непрерывно по методу счета бета-частиц, испускаемых дочерними продуктами радона, осаждаемыми на аэрозольных частицах. Аэрозольные частицы осаждались на фильтр. Вход воздуха в прибор находился на высоте 6 м от земли.

2. Микрометеорология и синоптические данные

Результаты вышеупомянутых исследований (см., например, [12, 21]), показывают, что эффект НВ проявляется примерно одинаково: примерно в полдень за период времени порядка 10–30 мин концентрация аэрозольных частиц размерами $D = 3 \div 10$ нм возрастала в течение нескольких десятков минут от единиц – десятков до нескольких тысяч и даже десятков тысяч частиц в 1 см^3 . Затем в 70–80% всех эпизодов за время порядка нескольких часов происходило укрупнение частиц ядерной моды $D = 3 \div 20$ нм и моды Айткена $D = 40 \div 80$ нм. К вечеру эти процессы затухали. Общими природными условиями появления новых частиц являлись отсутствие облачности и поступление воздушных масс с умеренными ветрами северных направлений. В данном цикле экспериментов эти закономерности в целом подтвердились, но при совместном анализе атмосферно-электрических, аэрозольных и микрометеорологических данных процессов выявлен ряд новых закономерностей.

Синоптическая ситуация. Из табл. 2 и рис. 1 можно видеть, что нуклеационным всплескам предшествовали следующие метеорологические условия: перемещение воздушных масс с северо-запада, средние значения скорости и азимута приземного ветра на высоте 17 м соответственно $(4 \pm 1) \text{ м/с}$ и $(235 \pm 20)^\circ$, ясная малооблачная погода, характерная для весенних антициклонов в заснеженных

Таблица 2

Характерные атмосферно-электрические параметры воздуха в обл. Хииттала, Финляндия.
24 марта – 15 апреля 2000 г. Для дней с НВ параметры усреднялись за период 1 ч до начала НВ,
для остальных дней – в период с 10 до 12 ч дня

Дни	Число дней	Начало t_0 , ч	Продолжительность, t , ч	Азимут ветра, град	C , фСм/м	E_z , В/м	$[\text{SO}_2]$, млрд ⁻¹	$[\text{NO}_2]$, млрд ⁻¹	N_0 , см ⁻³ , $D > 3$ нм	N_m , см ⁻³ , $D > 3$ нм	N_m/N_0	N_a , см ⁻³ , $D > 0,5$ мкм
Все	24	10		225	10	120	0,45	2	1500	4100	3	2,4
С НВ	17	10,5	7,3	237	12,3	220	0,4	1,9	1517	6835	4,5	1,87
Без НВ	7	0		200	10,6	70	0,68	2,9	2000	2200	2,1	4,5

регионах, утренние приземные инверсии и значительные суточные перепады температуры — ночью от -10 до $+5$ °С, в полдень от $+3$ до $+7$ °С при относительной влажности воздуха, соответственно, 60–70 и 30–45%.

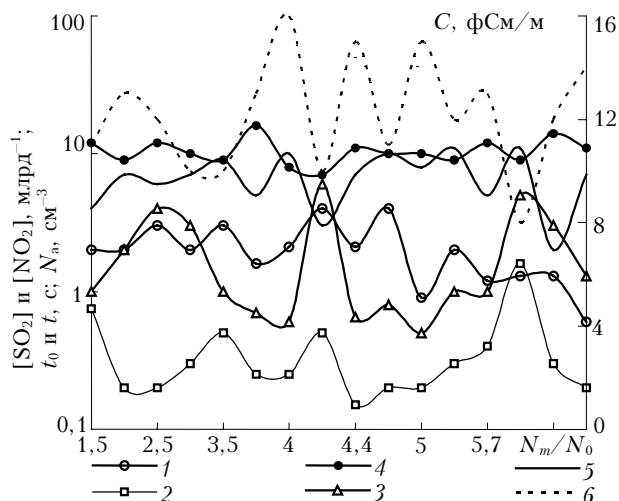


Рис. 1. Максимальные приросты концентрации новых частиц N_m/N_0 как функция параметров атмосферы, предшествующих НВ. Здесь и далее в обс. Хинтиала: кривая 1 — концентрация грубодисперсного аэрозоля N_a ; 2 и 3 — концентрация газов NO_2 и SO_2 ; 4 и 5 — время появления t_0 и продолжительность эмиссий t ; 6 — средняя электропроводность воздуха C (шкала справа)

Исследования в рамках проекта BIOFOR в 1999–2000 гг. показали [21, 22], что эпизоды НВ в Южной Финляндии имели место в тылу холодных фронтов и лишь изредка в тылу фронтов окклюзии. Для детализации макросиноптической ситуации нами анализировались телевизионные изображения со спутника NOAA-14, предоставленные Институтом космических исследований РАН. Отмечалась характерная для этого сезона циркумплярная циркуляция воздушных масс, формирующая в приземном слое умеренные ветры северо-западного направления.

Обратные 24-часовые траектории оценивались по методике, учитывающей разработки [2, 3] для характерных прогностических ситуаций по давлению и полям ветра. С вероятностью 80% эти траектории начинались в районах Северной Атлантики, что в целом подтверждает и уточняет выводы [21].

Пространственный масштаб явления. Из анализа данных [3, 14] вытекает, что в марте–апреле и сентябре–марте для Северной Европы статистически характерна своеобразная циркуляция, когда Арктика изолирована облачными полями западного цикла от Гренландии до Мурманска и полосой ясного неба при ширине поля около 500 км. На территории России эта полоса расширяется до 2000 км, достигая районов восточнее линии Казань — Астрахань. По этому коридору периодически движутся мезомасштабные вихри. В частности, характерный для весны и осени Азорско-

Гренландский антициклон смещается по этому направлению с периодом 6–7 сут, играя роль клапана, пропускающего порции чистого и умеренно холодного океанского воздуха. Видимо, поэтому ежегодно наблюдаемая в марте–апреле синоптическая ситуация хорошо воспроизводится. Струйные течения вдоль этого коридора имеют невысокие скорости и вертикальные градиенты, так что облачность невелика, а дневной прогрев и интенсивность обменных процессов существенны. Можно также с определенной уверенностью ожидать, что возмущения аэрозольной и ионной компонент атмосферы, подобные наблюдаемым нами в Южной Финляндии, имеют синоптический масштаб и должны наблюдаться во всей Северной Европе.

Сезонный или годовой цикл. В период 1996–1999 гг. сезонные факторы НВ были ярко выражены: максимумы в переходные сезоны (в марте — апреле в среднем по 8–10 случаев с величиной всплеска концентрации $N = 6 \cdot 10^3 - 10^4 \text{ см}^{-3}$ и в сентябре–октябре 4–7 случаев. Минимумы НВ в августе (1–2 случая при $N = 2 \cdot 10^3 \text{ см}^{-3}$) и в декабре (0–1 случай) [22, 30]. Для примера на рис. 2 показан среднемесячный ход количества НВ и пиковой концентрации аэрозоля за 1996 г., а также данные [32] о среднем годовом ходе содержания атмосферного озона. Как видно, максимумы НВ и N_m приходятся на весну и осень, причем максимумы N_m сдвигаются на более холодные месяцы — март и октябрь. Вероятность всплесков в августе и декабре невелика.

Рис. 2. Изменения по месяцам количества (1) интенсивных нуклеационных всплесков НВ, пиковой счетной концентрации (2) аэрозолей N_m [30] и общего содержания озона (3), единицы Добсона, по данным 68 наземных станций северного полушария [32]

Суточный цикл. Нуклеационные всплески наблюдались, как видно, только в дневное время, т.е. имели четкий суточный цикл. Начало и длительность НВ варьируются в достаточно широких пределах, так что имеет смысл детальнее рассмотреть данные для характерных дней.

Рис. 3 иллюстрирует случай интенсивного НВ, который наблюдался в условиях достаточно

устойчивого направления ветра (в полдень азимут 220° , утром и вечером 260°). Здесь обращает на себя внимание то, что максимумы общего $GR = 500 \text{ Вт/м}^2$ и ультрафиолетового $UV-A = 30 \text{ Вт/м}^2$ и $UV-B = 0,8 \text{ Вт/м}^2$ потоков солнечного излучения приходились на 12 ч местного времени. Им обычно соответствовал минимум содержания радона, а также максимум отрицательного температурного гра-

диента $dT = -0,02 \text{ }^\circ\text{C}$ и это свидетельствует о достижении максимального перемешивания в приземном слое. Максимумы скорости приземного ветра на уровне 17 м $u = 6 \text{ м/с}$ и температуры $+3 \text{ }^\circ\text{C}$, а также минимум относительной влажности $H = 37\%$ были сдвинуты по времени примерно на 3 ч. В 15 ч достигались максимумы концентраций новых аэрозольных частиц N и средних ионов M .

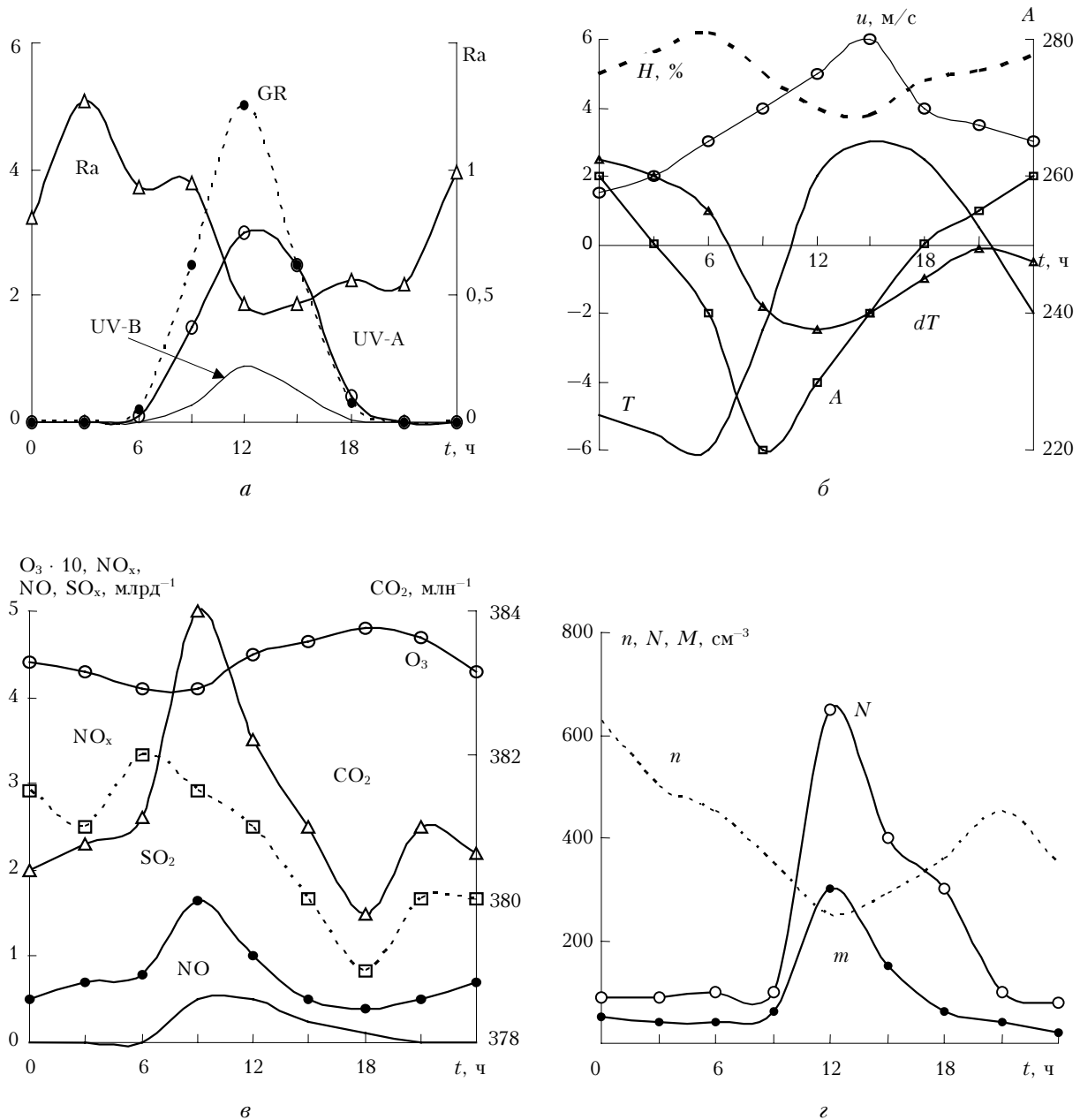


Рис. 3. Вариации радиационных (а), термических (б) газовых (в) и ионных (г) характеристик приземной атмосферы в течение суток 29 марта 2000 г. GR – глобальная радиация; UV-A и UV-B – УФ-компоненты А и В; u и A – скорость и направление ветра на высоте 16 м; T , dT и H – температура, ее градиент и относительная влажность на высоте 16 м; O_3 , CO_2 , NO , NO_x , SO_2 – концентрации озона, углекислого газа, окислов азота и двуокиси серы на высоте 4 м; n , M , N – концентрации легких, средних и тяжелых отрицательных ионов на высоте 2 м; Ra – концентрация радона, отн. ед.

3. Динамика минорных газов, аэрозолей и ионов

3.1. Минорные газы

Экспериментально установлено, что некоторые атмосферные газы при определенных концентрационных соотношениях стимулируют образование природных и антропогенных смогов (см., например, [1]). Соответственно решающий вклад в изучение генезиса НВ ожидалось получить при анализе вариаций аэрозолей и таких минорных газов, как SO_2 , NO_x , NO , O_3 , CO_2 . Оборудование станции SMEAR II позволяло круглосуточно контролировать эти газы на трех уровнях — 4,2; 16,8 и 67,2 м. Эпизодически контролировался приземный радон (рис. 3,а). Сразу же заметим, что изучаемый приземный слой в толще 4–70 м в дневное время был чаще всего однородным в смысле малости вертикальных градиентов SO_2 , NO_x , NO , O_3 , а также водяного пара. Это является признаком отсутствия местных источников. Как и ожидалось, в толще леса заметным был вертикальный ход углекислого газа. Его концентрация на отметке 4 м была наибольшей и составляла 385 млн^{-1} с градиентом не более $0,5 \text{ млн}^{-1}$ на каждые 10 м.

Результаты измерений для всех дней и дней с НВ приведены в табл. 3. Для сопоставления использованы данные из [5] для средних и полярных широт. Как видно из табл. 3, содержание минорных газов в периоды, предшествующие НВ, заметно не отличаются как от фоновых, так и от глобальных значений. Вполне обычным (для теплых периодов года) был суточный ход озона с максимумом в 17–18 ч, равным $47\text{--}50 \text{ млн}^{-1}$, и с минимумом $40\text{--}43 \text{ млн}^{-1}$ в 6 ч утра. Пример записи суточного хода озона и других газов дан на рис. 3,в. Примерно в противофазе с озоном изменялась концентрация углекислого газа, что характерно для районов с активной вегетацией.

Концентрации окислов азота и серы хорошо выраженного суточного хода в целом не испытывали, так что их выбросы с 8 до 12 ч на рис. 3,в были нетипичными и не связанными с ходом метеоэлементов или содержания аэрозолей и аэроионов. Рис. 3 является еще одной (см. также рис. 1 и табл. 2) иллюстрацией того, что вариации концентрации новых частиц и упомянутых минорных газов слабо коррелируют друг с другом. Интересно, однако, почему в эпизодах НВ концентрации SO_2 и NO_x

были часто на 20% ниже, чем до эпизодов. Возможно, что именно в дни с НВ были характерными затоки арктического воздуха, более чистого по содержанию минорных газов (см. табл. 3). Для сравнения в 1992–1995 гг. в финской части Лапландии в 60% времени наблюдений массовая концентрация SO_2 не превышала 1 млрд^{-1} при скачках зимой до $2\text{--}3 \text{ млрд}^{-1}$ [31].

3.2. Атмосферный аэрозоль

Возвратимся к табл. 2 и отметим, что в дни с НВ усредненная пиковая концентрация частиц $N_m \approx 7 \cdot 10^3 \text{ см}^{-3}$ превышала среднее фоновое значение $N_0 \approx 1500 \text{ см}^{-3}$ в 5 раз, а в отдельные дни — в 10–13 раз. Продолжительность всплесков колебалась от 3 до 10 ч при превышениях концентрации N_m над «аэрозольным» средним фоном приземной N_0 от 3 до 10 раз (среднее значение $N_m/N_0 = 4,5$). Наиболее вероятное время начала НВ — это 10–11 ч местного времени, а продолжительность 7 ч.

Дисперсный состав приземного аэрозоля в дни с НВ отличался от фонового появлением ядерной моды $D = 3 \div 20 \text{ нм}$ (см. для сравнения средние спектры аэрозоля на рис. 4).

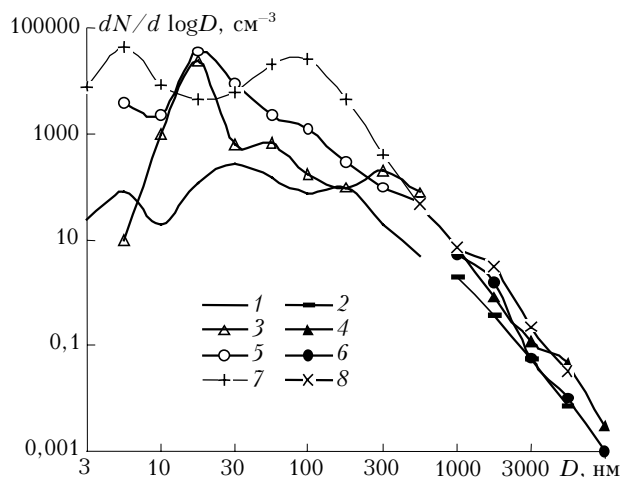


Рис. 4. Распределения аэрозолей по размерам, характерные для слабо- (1, 2) и умеренно- (3–8) запыленного приземного слоя. 1 и 2 — эпизод НВ, 10 ч, 25.03.2000; 3 и 4 — с 6 до 9 ч 7.04.2000; 5 и 6 — эпизод НВ, 12 ч 7.04.2000; 7 и 8 — измерения в Подмосковье, утро, лето 1990–2000 гг. Данные 1 получены с помощью спектрометра DMPS, 3, 5 и 7 — анализатора ДАЭС-2, данные 2, 4, 6 и 8 — счетчика PC-218

Таблица 3

Средние концентрации некоторых газов (в млрд^{-1} по массе) в приземном слое в обс. Хииттала в 2000 г., а также в средних широтах и в полярной области [5]

Тип газа	Обс. Хииттала, все случаи	Обс. Хииттала, случаи НВ*	Средние широты	Полярные широты
SO_2	0,48 (0,25–2)**	0,38	0,2–5	0,002–0,02
NO	0–0,05 (0–0,8)			
NO_2 ***	2,1 (1–5)	1,63	1–3	0,2–2
O_3	41 (38–50)	43	20–40	15
$\text{CO}_2, \text{ млн}^{-1}$	375–385			
$\text{OH}, \text{ см}^{-3}$			$1,3 \cdot 10^6$	$5 \cdot 10^5$

* Усреднение за 3 ч перед НВ. ** В скобках интервал значений с доверительной вероятностью 85%. *** В обс. Хииттала измерялась концентрация NO_x .

Как видно, в эти дни заметные вариации испытывали также частицы из моды Айткена $D = 40 \div 80$ нм, размеры которых достаточны, чтобы действовать как облачные ядра конденсации. Скорость увеличения размера ядер в первые 2 ч после начала НВ могла достигать 10 нм/ч. Практически во всех эпизодах до начала НВ ядерная мода отсутствовала, а вариации фракции грубодисперсных частиц $N_a = 0,5 \div 5$ мкм были невелики.

Неожиданными оказались данные о связи динамики концентрации малых частиц $D < 100$ нм в эпизодах НВ с начальной концентрацией грубодисперсного аэрозоля. На рис. 5 представлены диаграммы суточного хода общей концентрации аэрозоля, средних ионов и минорных газов для двух конкретных дней с малой (2 апреля 2000 г.) и умеренной (29 марта 2000 г.) начальной запыленностью воздуха. Метеорологические и синоптические условия в эти дни были идентичными, но сценарии развития аэрозольной среды оказались разными. В первом случае в практически обеспыленном воз-

духе за 6–7 ч сформировалась «классическая» аэрозольная система с модой Айткена $D = 40 \div 80$ нм и кумулятивной модой $D = 100 \div 200$ нм. Во втором случае к подобной, но ранее сформированной, системе на период времени 6–7 ч лишь «пристроилась» ядерная мода $D = 3 \div 10$ нм.

Случай слабо запыленного воздуха (25% эпизодов). Этот случай иллюстрирует рис. 5, а. До начала НВ концентрация частиц в моде Айткена и кумулятивной моде колебалась в пределах $N_0 = 500\text{--}1000$ см⁻³. Концентрация грубодисперсных частиц не превышала порядка $N_a = 1$ см⁻³. Генерация новых частиц началась в полдень, к этому времени концентрация частиц в ядерной моде снизилась к нулю и общая концентрация частиц составила около 500 см⁻³, в основном за счет частиц кумулятивной фракции. В течение 1–2 ч происходило формирование ядерной моды. Частицы постепенно укрупнялись и к 15 ч сформировалась фракция ядер Айткена, а к 18 ч — кумулятивная фракция $D = 100\text{--}200$ нм (см. рис. 4, кривые 1 и 2, а также рис. 5, а).

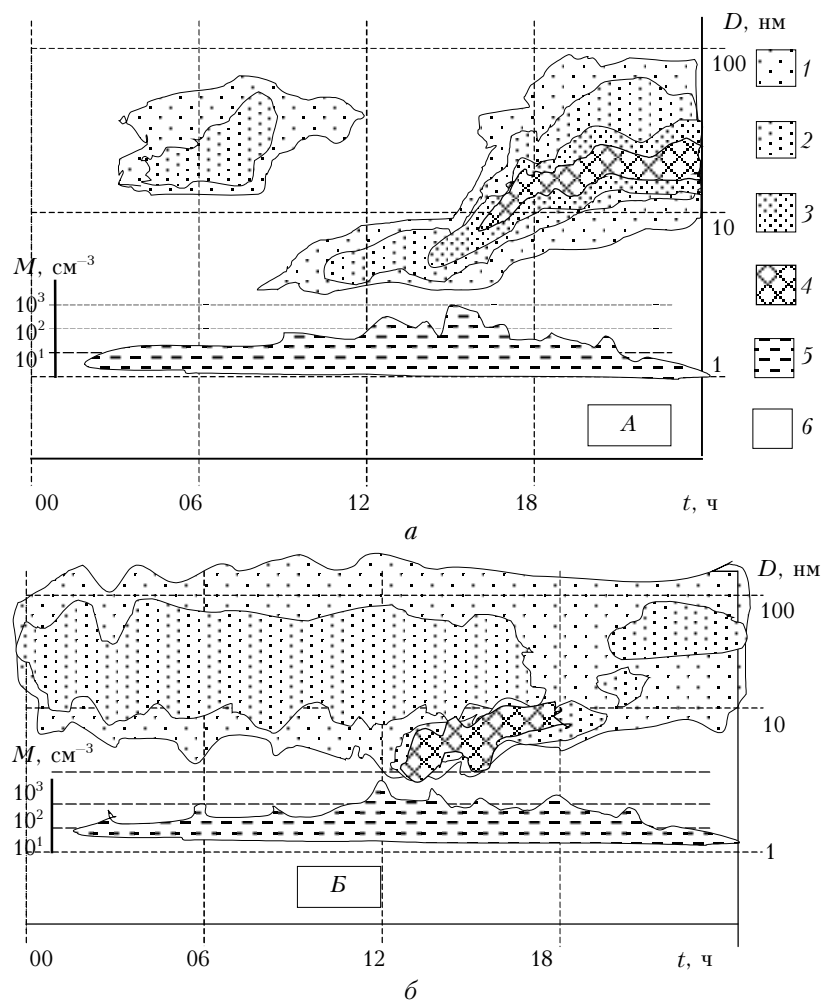


Рис. 5. Диаграммы суточных вариаций аэрозоля, средних ионов и минорных газов при слабой (а) и умеренной (б) запыленности воздуха: кривые 1–4 — концентрация аэрозоля диаметром $D = 3 \div 100$ нм (1 — более $5 \cdot 10^2$ см⁻³; 2 — более 10^3 см⁻³; 3 — более $5 \cdot 10^3$ см⁻³; 4 — выше $5 \cdot 10^3$ см⁻³, но без зарядника); 5 — концентрация средних ионов M_+ (5, шкала слева); 6 — случаи заметного превышения концентрации газов над фоновым значением: А — $[\text{SO}_2] = 0,5 \div 0,75$ млрд⁻¹, $[\text{NO}_x] = 0,75 \div 1,5$ млрд⁻¹; Б — $[\text{SO}_2] = 1 \div 1,75$ млрд⁻¹, $[\text{NO}] = 0,25 \div 0,75$ млрд⁻¹, $[\text{NO}_x] = 3 \div 5$ млрд⁻¹

Изменения не затрагивали распределения грубодисперсного аэрозоля, имеющего форму юнговского с показателем степени 3,5. Концентрация частиц этой фракции оставалась на сравнительно низком уровне $N_a < 1 \text{ см}^{-3}$. Скорость ветра на высоте 67 м в этот период не превышала 3–4 м, направление ветра постепенно менялось от 0 до 90°. Относительная влажность достигла минимума 25% к 15 ч. Примерно к 17 ч концентрация аэрозолей достигла максимума $N = 5000 \text{ см}^{-3}$, причем ядерная мода, как видно из рис. 5,а, уже не селектировалась. Одномодальная функция распределения с максимумом в районе моды Айткена (близкая к кривым 1 и 2 на рис. 4) сохранялась вплоть до утра следующего дня.

Случай умеренно запыленного воздуха (35–40% эпизодов). Здесь, как видно из рис. 5,б, новые частицы нанометрового интервала размеров начали появляться в 9–10 ч. Концентрация частиц в ядерной моде достигла максимума к 12 ч. Начальные концентрации частиц диаметром выше 3 нм находились в интервале $N_0 = 2000 \div 20000 \text{ см}^{-3}$, а грубодисперсных — $N_a = 1 \div 2 \text{ см}^{-3}$. Моды Айткена $D = 40 \div 80 \text{ нм}$ и кумулятивная $D = 100 \div 200 \text{ нм}$ в начальном спектре хорошо селектировались (см. рис. 4), причем их положение сохранилось при увеличении общей концентрации частиц до 20000 см^{-3} в 12 ч. К 16–17 ч ядерная мода, в которой находилось до 80% новых частиц, постепенно диссипировала. Форма спектра размеров частиц соответственно восстановилась. Общая концентрация частиц снизилась к вечеру до начального значения $2000\text{--}3000 \text{ см}^{-3}$.

Полезно заметить, что низкая и умеренная запыленность воздуха характерна не только для переходных сезонов в обс. Хиитиала, Южная Финляндия. Так, для сравнения в 1992–1995 гг. в финской части Лапландии средняя концентрация частиц диаметром более 0,5 мкм не превышала $1,5 \text{ см}^{-3}$, а частиц в интервале $D = 0,3 \div 0,5 \text{ мкм} - 10 \text{ см}^{-3}$ [31]. По поводу других особенностей аэрозольного климата Финляндии отметим, что в приземной атмосфере умеренных широт [4, 10] и даже некоторых субполярных районов [11] значения N_0 и N_a в 5–7 раз выше, чем в воздушном бассейне в обс. Хиитиала. В лесах Подмосковья (кривые 7 и 8) в утренние инверсии также идентифицируются ядерная и кумулятивная моды, хотя мода Айткена не выражена. По модели [10] за интенсивные утренние всплески концентрации частиц в ядерной моде в широколиственных лесах Подмосковья ответственны летние смоги природного происхождения. В отличие от наблюдаемых ситуаций в хвойных лесах Финляндии, в Подмосковье в полуденное время ядерная мода практически никогда не наблюдалась.

Случай запыленного воздуха (25–35% эпизодов). При повышении концентрации приземного аэрозоля $N_0 > 2000 \text{ см}^{-3}$, $N_a > 2 \text{ см}^{-3}$ нуклеационные всплески нами не отмечались. Заметим, что найденный порог не противоречит экспериментальной оценке порога НВ по общей площади частиц $S < 100 \text{ мкм}^2/\text{см}^3$ [21].

Таким образом, «аэрозольное» состояние атмосферы является весьма существенным фактором появления НВ. В частности, высокие значения интенсивности нуклеации N_m/N_0 присущи пониженным концентрациям аэрозолей диаметром выше 0,5 мкм, а порог появления НВ однозначно соответствует условию $N_a < 2\text{--}3 \text{ см}^{-3}$. Вместе с тем при невысокой запыленности заметной корреляции между параметром N_m/N_0 , временем начала НВ t_0 и их длительностью t и содержанием аэрозоля не обнаруживается. Не удалось также установить каких-либо надежных связей между N_m/N_0 , t_0 и t и концентрацией исследованных минорных газов. Малая запыленность воздуха является, по всей видимости, фактором, необходимым, но явно недостаточным, поскольку в ночное время (см., например, рис. 5,а), а также в 20% эпизодов дневного времени явления НВ не отмечались.

По представлениям [12, 23, 27] некоторые ответы на вопросы о генезисе НВ можно получить, детально анализируя характер электрических взаимодействий в атмосфере.

3.3. Электрическое состояние воздуха

Из табл. 2 следует, что фоновая (перед эпизодами НВ) электропроводность воздуха $C = (C_+ + C_-)/2$ составляла в среднем (12 ± 2) фСм/м. Это на 25–35% больше значений, характерных для центра ЕТР [6, 8]. Коэффициент униполярности C_+/C_- был близок к равновесному 0,95–1,1, а напряженность электрического поля находилась в пределах 100–250 В/м. Такие значения позволяют характеризовать электрическое состояние приземной атмосферы в периоды НВ как квазинейтральное и близкое к среднелобальному [20].

На рис. 6 рассмотрены взаимосвязи пиковых концентраций частиц N_m , зарождающихся в эпизодах НВ, и основных групп подвижностей атмосферных ионов: легких n , средних M_+ , M_- , m_- и тяжелых N_- .

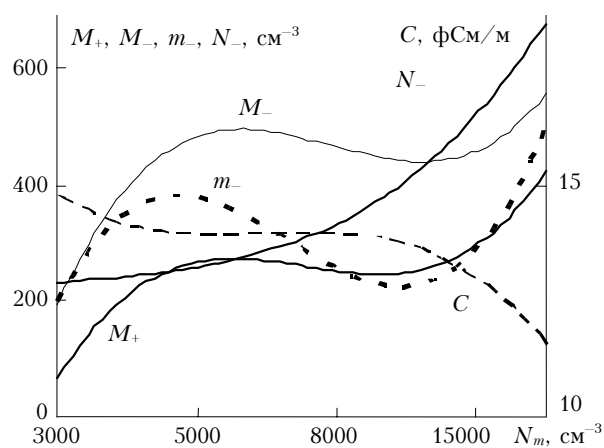


Рис. 6. Статистические связи максимальной концентрации новых аэрозолей N_m со средней электропроводностью воздуха и с концентрациями ионов M_+ , M_- , m_- , N_- в периоды НВ. Обозначения в табл. 1. Данные измерений аппроксимированы многочленами 3-й степени

Значения подвижностей в группах даны в табл. 1. Можно видеть, что нуклеационные всплески сопровождались однозначными приростами концентрации средних и тяжелых атмосферных ионов. Концентрации легких ионов n_- и полярных электропроводимостей воздуха C более консервативны, но в при интенсивных НВ ($N_m > 5 \cdot 10^3 \text{ см}^{-3}$) уменьшались на 30–40% (см. рис. 3,2 и рис. 6). Качественно эти результаты можно объяснить снижением интенсивности ионообразования из-за дневного уменьшения концентрации радона (см. рис. 3,а) и роста аэрозольного сечения адсорбции легких ионов.

Вариации тяжелых ионов (см. рис. 3 и рис. 6) также логично связать с вариациями общей концентрации N атмосферных аэрозолей. Если вариации N достаточно медленные и больцмановское распределение по зарядам реализуется (см., например, [20, 26]), то концентрация тяжелых ионов обоих знаков N_+ , N_- следует общей концентрации частиц N примерно пропорционально. При наблюдаемых в obs. Хиитиала интервалах концентрации легких ионов обоих знаков $n_+ = n_- = 500 \div 800 \text{ см}^{-3}$ характерное время ионной зарядки субмикронных аэрозолей составляет порядка нескольких часов, что соответствует реальному масштабу времени эволюции НВ.

Поскольку вопрос о степени стационарности и равновесности электрических процессов принципиально важен, были поставлены специальные эксперименты. В части измерений биполярный зарядник аэрозольного спектрометра DMPS отключался, т.е. прибор переводился в режим высокочувствительного анализатора электрической подвижности тяжелых ионов в интервале от 0,25 до $2,5 \cdot 10^{-5} \text{ см}^2/(\text{В} \cdot \text{с})$. Анализировались электрические подвижности частиц, заряд которых приобретен теперь уже в естественном биполярно ионизованном воздухе. На рис. 4 этот режим проявился уменьшением примерно вдвое области, за которую ответственны частицы ядерной моды, т.е. условия электрического равновесия в воздушной среде достигались для частиц с $D < 5 \text{ нм}$ и не достигались для частиц большего размера ($D = 10 \div 50 \text{ нм}$), но при условии, если концентрация последних превышала $5 \cdot 10^3 \text{ см}^{-3}$. Отношение концентраций частиц при отключенном и включенном биполярном заряднике $N_{\text{откл}}/N_{\text{вкл}}$ в разные дни менялось от 0,2 до 1. В измерениях 2 апреля 2002 г. это отношение близко к 0,9, что объясняется малостью общего содержания аэрозолей и небольшой скоростью роста при достаточно высокой электропроводности воздуха. При измерениях 29 марта 2000 г. в более запыленном воздухе отклонения от электрического равновесия были велики: $N_{\text{откл}}/N_{\text{вкл}} = 0,2 \div 0,3$.

Полезную информацию о связях концентрации аэрозолей N и средних ионов M дает анализ их суточных вариаций. Уже отмечалось, что максимумы концентраций новых частиц N и ионов M могут совпадать, как на рис. 5,б, или не совпадать, как на рис. 5,а, с максимумом солнечного излучения. Во втором случае задержка составила 3 и 6 ч для

средних ионов и аэрозолей соответственно. Максимум M чаще всего приходился на время, когда воздух максимально прогрет и хорошо перемешан, а процесс аэрозолеобразования еще интенсивен. Это означает, что по аналогии с лабораторными опытами [7–9] интенсивное рождение новых аэрозольных частиц стимулирует процесс исчезновения (вероятней всего, за счет адсорбции) не только легких, но и средних ионов. Количественный анализ соответствующих закономерностей выходит за рамки настоящего исследования.

Заключение

1. В весенний и осенний сезоны в дневное время в приземной атмосфере может происходить формирование аэрозольных частиц нанометрового интервала $D = 3 \div 20 \text{ нм}$, формирующих так называемую ядерную фракцию размеров с концентрацией частиц от $3 \cdot 10^3$ до $20 \cdot 10^3 \text{ см}^{-3}$. Эта фракция существует порядка нескольких часов. В дальнейшем может происходить укрупнение частиц внутри фракции Айткена $40 \div 80 \text{ нм}$ и кумулятивной фракции $100\text{--}200 \text{ нм}$. Характерное время начала подобного процесса 11 ч, а длительность — около 7 ч.

2. Важным результатом наших наблюдений является статистически обеспеченный факт, что каждому появлению нанометровых частиц предшествует формирование атмосферных ионов средней подвижности $0,5\text{--}0,05 \text{ см}^2/(\text{В} \cdot \text{с})$. И наоборот, интенсивная наработка аэрозольных частиц приводит к исчезновению средних ионов. Возможно, что средние ионы и продукты их ассоциации в дальнейшем играют роль затравочных ядер.

3. Существенным фактором появления новых частиц является «аэрозольное» состояние атмосферы. В частности, высокие значения интенсивности нуклеации N_m/N_0 присущи невысоким концентрациям аэрозолей диаметром выше 0,5 мкм, а порог появления НВ однозначно соответствует условию $N_a < 2\text{--}3 \text{ см}^{-3}$. Вместе с тем при невысокой запыленности заметной корреляции между параметром N_m/N_0 , временем начала НВ t_0 , их длительностью t и содержанием аэрозоля не обнаруживается. Малая запыленность воздуха является, по всей видимости, фактором, необходимым, но явно недостаточным, поскольку в ночное время, а также в некоторых эпизодах дневного времени явления НВ отсутствовали.

Таким образом, для понимания механизма эмиссии новых частиц очевидна роль солнечного дневного прогрева, стимулирующего поступление в приземный слой менее запыленного воздуха.

5. Интенсивность нуклеации N_m/N_0 не зависит непосредственно и однозначно от наблюдаемых концентраций окислов серы и азота. Последние испытывают синхронные и сильные флуктуации, не выходящие за пределы естественных суточных изменений. При этом значения N_m/N_0 минимизируются при ветрах южных направлений. Между тем было бы логичным полагать обратную зависимость, поскольку согласно [28] именно ветрами южных

направлений в Скандинавию из Европы переносятся различные загрязнители, в частности смогообразующие газы и пыль. Не удалось установить каких-либо надежных связей между N_m/N_0 , временем начала t_0 и длительностью эмиссий t . Эти обстоятельства, а также факт отсутствия корреляций интенсивности НВ и концентраций SO_2 , NO и NO_x наталкивают на некоторые принципиальные размышления об основных факторах НВ в смысле их генезиса и интенсивности. Если следовать многочисленным фотохимическим и биогенным моделям аэрозолеобразования (см., например, [1]), то логично выдвинуть в качестве факторов появления НВ рост содержания окислов серы и азота, а также продуктов жизнедеятельности леса. Однако анализ рис. 1–3 говорит о проявлении лишь отдельных факторов этих моделей. Так, НВ проявляются исключительно в солнечные дни, в дневное время концентрации газов O_3 , SO_2 , CO_2 , NO и NO_x иногда увеличиваются, весной возрастает концентрация приземного озона (см. рис. 2).

Статистически более надежны другие факты. Во-первых, эмиссии новых частиц проявляются чаще всего ранней весной и поздней осенью, т.е. когда выход биопродуктов минимален. Максимум биогенных веществ в атмосфере обычно имеет место в летние месяцы, когда явления НВ редки. Во-вторых, выход биогенных продуктов значительно превалирует ночью, а не в полдень, когда имеют место эмиссии новых частиц. В-третьих, мы не обнаружили явных зависимостей концентраций новых частиц от концентраций таких смогообразующих газов, как озон, углекислый газ, окислы азота и окислы серы.

Учитывая полученные результаты, можно сделать вывод, что в дальнейших исследованиях будут важны детализация формирования спектра ионов и аэрозоля по высоте приземного слоя, знание вертикальных разрезов метеорологических и других элементов, по крайней мере, для высот до 300 м.

Работа была частично поддержана грантами № 4622 и № 5387 Эстонского научного фонда.

1. Кондратьев К.Я., Поздняков Д.В. Аэрозольные модели атмосферы. М.: Наука, 1981. 104 с.
2. Куценогий К.П., Смирнова А.И. Метод обратных траекторий для идентификации источников атмосферных аэрозолей регионального и глобального масштабов // Оптика атмосф. и океана. 2001. Т. 14. № 6–7. С. 510–514.
3. Руководство по использованию спутниковых данных в анализе и прогнозе погоды (под ред. И.П. Ветлова и Н.Ф. Вельтищева). Л.: Гидрометеониздат, 1982. 299 с.
4. Панченко М.В., Польшкин В.В. Представление о микроструктуре тропосферного аэрозоля Сибири на основе измерений фотоэлектрическим счетчиком // Оптика атмосф. и океана. 2001. Т. 14. № 6–7. С. 526–537.
5. Поздняков Д.Е. Вторичные аэрозоли, или аэрозоли, образующиеся *in situ* // Аэрозоль и климат / Ред. К.Я. Кондратьев. Л.: Гидрометеониздат, 1991. С. 141–190.
6. Сальм Я.Й. Ионы в приземном слое атмосферы // Химия плазмы. 1993. Вып. 17. С. 194–217.
7. 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.
8. Смирнов В.В. Ионизация в тропосфере. СПб.: Гидрометеониздат, 1992. 312 с.
 9. Смирнов В.В. Электрические факторы чистоты воздуха // Тр. ИЭМ. 1983. Вып. 30(104). С. 76–106.
 10. Смирнов В.В. Аэрозольный климат Подмосквья // Метеорол. и гидрол. 2003. № 9. С. 18–27.
 11. Смирнов В.В., Пронин А.А., Радионов В.Ф., Савченко А.В., Шевченко В.П. Внутрисезонные факторы изменчивости аэрозольного и ионного состава полярных атмосфер // Изв. РАН. Физ. атмосф. и океана. 1999. Т. 36. № 5. С. 639–649.
 12. Смирнов В.В., Сальм Я.Й., Мякеля Ю.М., Паатеро Ю. Атмосферно-электрические измерения в международном эксперименте ESUP-2000 // Тр. 5-й Российской конф. по атм. электричеству. Владимир, 21–27 сент. 2003 г. С. 127–130.
 13. Таммет Х.Ф. Аспирационный метод измерения спектра аэроионов // Уч. зап. Тартуск. гос. ун-та. Тарту, 1967. 82 с.
 14. Хайруллин Р.Р. Атлас синоптических характеристик цикло- и антициклогенеза и цикло- и антициклолиза в Северном полушарии. Обнинск, 1990. 83 с.
 15. Buzorius G., Rannik Ü., Mäkelä J.M., Vesala T., Kulmala M. Vertical Aerosol Particle Flux Measured by Eddy Covariance Technique Using Condensational Particle Counter // J. Aerosol Sci. 1998. V. 29. P. 157–171.
 16. Buzorius G., Rannik Ü., Nilsson D. and Kulmala M. Vertical fluxes and micrometeorology during the new aerosol particle formation // Tellus. 2000. V. 53B. P. 394–405.
 17. Haataja J. and Vesala T. (eds.). SMEAR II. Station for measuring forest ecosystem – atmosphere relation. Aseman kir., Orivesi, Finland. 1997. 100 p.
 18. Hörrak U., Salm J., Tammet H. Bursts of intermediate ions in atmospheric air // J. Geophys. Res. 1998. V. 103. P. 13909–13915.
 19. Hörrak U., Miller F., Mirme A., Salm J., Tammet H. Air ion observatory at Tahkuse: Instrumentation // Уч. зап. Тартуск. гос. ун-та. 1990. N 880. P. 33–42.
 20. Israel H. Atmospheric Electricity (V. 2). Israel Program for Sci. Translations. Jerusalem, 1973. 796 p.
 21. Kulmala M., Hämeri K., Mäkelä J.M. et al. Biogenic aerosol formation in the boreal forest // Boreal Environ. Res. 2000. V. 5. N 4. P. 281–297.
 22. Mäkelä J.M., Dal Maso M., Pirjola L., Keronen P., Laakso L., Kulmala M., Laaksonen A. Characteristic of the atmospheric particle formation events observed at the boreal forest site in Southern Finland // Boreal Environ. Res. 2000. V. 5. N 4. P. 299–314.
 23. Mäkelä J.M., Salm J., Smirnov V.V., Koponen I., Paatero J., Pronin A.A. Measurements of the mobility distributions of air ions as a source of information for the study of aerosol generation // Proc. of 12th Intern. Conf. on Atmospheric Electricity (compiled S. Chauzy and P. Laroche. 9–13 June 2003. Versailles, France). P. 793–796.
 24. Mäkelä J.M., Koponen I.K., Aalto P., and Kulmala M. One-year data of submicron size modes of tropospheric background aerosol in Southern Finland // J. Aerosol Sci. 2000. V. 31. P. 595–611.
 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. Mäkelä J.M., Salm J., Smirnov V.V., Koponen I., Paatero J. and Pronin A.A. Electrical charging state of

- fine and ultrafine particles in boreal forest air // *J. Aerosol Sci.* 2001. V. 32. Suppl. S149–S150.
27. *Smirnov V.V., Mäkelä J.M.* Ultrafine nucleus in ionized air // *Proc. of 12th Intern. Conf. on Atmospheric Electricity* (compiled by S. Chauzy and P. Laroche. 9–13 June 2003. Versailles, France). P. 397–399.
 28. *Smirnov V.V.* Differential ultrafine aerosol and air ion spectrometer // *Intern. Aerosol Conf. to memory Prof. A. Sutugin* (Moscow, Russia, 26–30 June 2000). P. 219–220.
 29. *Smirnov V.V., Savchenko A.V., Pronin A.A.* Mobile apparatus for high dispersed aerosol investigations // *J. Aerosol Sci.* 1998. V. 29. Suppl. 1. P. S875–S876.
 30. *Vesala T., Haataja J. Aalto P., Altimir N., Buzorius G., Garam E., Hämeri K., Ilvesniemi H., Jokinen V., Keronen P., Lahti T., Markkanen T., Mäkelä M., Nikinmaa E., Palmroth S., Palva L., Pohja T., Pumpanen J., Rannik U., Siivola E., Ylitalo H., Hari P., Kulmala M.* Long-term field measurements of atmosphere-surface interactions in boreal forest combining forest ecology, micrometeorology, aerosol physics and atmospheric chemistry // *Trends in Heat, Mass & Momentum Transfer*. 1998. V. 4. P. 15–35.
 31. *Virkkula A., Hillamo R.E., Kerminen V.-M., Stohl A.* The influence of Kola Peninsula, continental European and marine sources on the number concentrations and scattering coefficients of the atmospheric aerosol in Finnish Lapland // *Boreal Env. Research*. 1997. V. 2. P. 317–336.
 32. *Willett H.C.* The relationship of total atmospheric ozone: to the sunspot cycle // *J. Geophys. Res.* 1962. V. 67(2). P. 661–670.
 33. *Winklmayr W., Reischl G.P., Lindner A.O., Berner A.* A new electromobility spectrometer for the measurement of aerosol size distributions in the size range from 1 to 1000 nm // *J. Aerosol Sci.* 1991. V. 22. P. 289–296.

V.V. Smirnov, J. Salm, J.M. Mäkelä, J. Paatero. **Dynamics of atmospheric aerosol, ions, and minor gases at Arctic air outbreak.**

Within the ESUP International Experiment conducted in March–April 2000 in Southern Finland, the correlations were found for the first time between the burst generation of ultrafine condensation nuclei (from 3 to 10 nm in diameter) and the concentrations of light, medium, and heavy ions, as well as NO, NO_x, SO_x, O₃, CO₂, and radon gases, and atmospheric aerosols in the size range of 10 nm to 10 μm, the state of meteorological elements in the atmospheric surface layer, and other parameters. These correlations allow better understanding of the phenomenon observed.