

Пространственная и временная изменчивость микродисперсной фракции аэрозоля (наночастиц) на территории Сибири

М.Ю. Аршинов¹, Б.Д. Белан^{1,2}, J.-D. Paris³, Г.О. Задде², Д.В. Симоненков^{1*}

¹Институт оптики атмосферы им. В.Е. Зуева СО РАН, Россия

634021, г. Томск, пл. Академика Зуева, 1

²Томский государственный университет

634050, г. Томск, пр. Ленина, 36, Россия

³Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement IPSL, CEA-CNRS, Saclay, France

Поступила в редакцию 2.09.2008 г.

Рассматривается пространственно-временная изменчивость образования микродисперсной фракции над Сибирью, и сделана оценка приоритетных механизмов генерации наночастиц. Анализ процессов нуклеации в свободной атмосфере показал, что она наблюдалась в 85% случаев из всех проведенных самолетных зондирований. При этом почти 80% слоев частиц образуется в диапазоне высот от 4 до 7 км. Наиболее часто мощность слоя лежит в пределах от 0,5 до 2 км. Она может достигать толщины почти 4 км. Зафиксированное ранее одновременное увеличение концентрации наночастиц и озона выражается в том, что совпадение и несовпадение слоев наночастиц и озона равновероятны на всех высотах. Горизонтальная протяженность слоев наночастиц заключена в пределах от нескольких десятков до 600 км. При этом наиболее вероятной является протяженность 100–300 км (> 50% случаев). В приземном слое минимум среднемесячных значений как общей концентрации микродисперсного аэрозоля, так и частиц нуклеационной моды приходится на летние месяцы. В свободной атмосфере концентрация частиц ($d = 3\text{--}70$ нм) изменяется в диапазоне от 300 летом до 30 см^{-3} зимой. Содержание частиц ($d = 70\text{--}200$ нм) находится в диапазоне 10 и 30 см^{-3} зимой и летом соответственно. Процессы нуклеации наночастиц происходят в пограничном слое и в свободной тропосфере совершенно независимо. Основными источниками генерации наночастиц в свободной атмосфере являются процессы нуклеации и фотохимические процессы. В пограничном слое атмосферы вклады нуклеационных, фотохимических и адвективных процессов соизмеримы.

Ключевые слова: наночастицы, пространственное распределение, нуклеация, сезонный цикл.

Введение

Микродисперсная фракция, или, как теперь называют, наночастицы, образуется в воздухе *in situ* конденсационным путем из газов-предшественников и дает старт всему аэрозольному процессу в атмосфере [1]. Поэтому для понимания поведения аэрозоля в атмосфере в целом необходимо, в первую очередь, иметь представление о процессах и масштабах генерации этой стартовой фракции.

Создание в начале 90-х гг. XX в. оборудования, способного фиксировать частицы размерами 3–15 нм, привело к бурному исследованию процессов образования наночастиц в атмосфере. Полученные результаты в значительной мере уточнили представления о механизмах их образования в воздухе. К настоящему времени во многих натурных и лабораторных экспериментах установлено, что наночастицы в воздухе

могут образовываться по следующим механизмам: бинарная нуклеация, включающая водяной пар и пары серной кислоты; тройная (в зарубежной литературе тернарная), включающая пары водяного пара, серной кислоты и аммиака; ион-индуцированная нуклеация; образование частиц в ходе окисления органических соединений; спонтанная конденсация самих органических соединений; нуклеация с участием галогенсодержащих соединений.

Несмотря на прогресс в изучении наночастиц, в понимании их роли в атмосферных процессах остается много неясных вопросов. Как показано в отчете [2], это обусловлено недостатком данных о пространственных и временных масштабах генерации этой фракции в разных географических районах, на разных высотных эшелонах, ее взаимодействием с более крупными фракциями аэрозоля и присутствующими газообразными соединениями. Более того, в зависимости от физико-географических условий изменяются и приоритетные механизмы, участвующие в генерации наночастиц. Так, например, в прибрежных районах основным становится галогенный механизм, который малоэффективен во внутриконтинентальных

* Михаил Юрьевич Аршинов (michael@iao.ru); Борис Денисович Белан (bdd@iao.ru); Жан-Даниель Парис; Геннадий Освальдович Задде; Денис Валентинович Симоненков (simon@iao.ru).

условиях. Те же авторы сделали обзор всех данных измерений, которые были получены к 2004 г. [3]. В этом обзоре показано, что из 124 проектов, по которым опубликованы результаты натурных измерений, нет ни одного, который бы проводился над обширной территорией России по всей толще тропосферы. Таким образом, огромная часть суши земного шара, имеющая самые разные физико-географические условия, не освещена данными наблюдений. Следовательно, оценка роли микродисперсной фракции в атмосферных процессах, без устранения этого пробела, практически невозможна.

Измерения наночастиц на территории России выполнялись в основном эпизодически и носили локальный характер [4–9], в обзоре [3] упомянута только работа [7]. Поскольку измерения производились в ходе отдельных непродолжительных экспериментов, то целостного представления о поведении наночастиц в приземном слое атмосферы они не дают.

В настоящей статье приводятся данные о пространственно-временной изменчивости образования микродисперсной фракции над значительной частью территории России (Сибирь) и сделана оценка приоритетных механизмов генерации наночастиц.

1. Методы и материал

Для оценки пространственных (горизонтальных и вертикальных) масштабов областей, в которых происходит образование наночастиц, использовался самолет-лаборатория Ан-30 «Оптик-Э» [10], оснащенный специально созданным в ИХКГ СО РАН

диффузионным спектрометром аэрозоля (ДСА), который позволяет измерять размер частиц в диапазонах 3–70 и 70–200 нм. Параллельно измерялись метеовеличины, дисперсный и химический состав субмикронной фракции аэрозоля, концентрация газовых компонент, навигационные характеристики [10]. В ходе полетов также отработывалась методика определения химического состава микродисперсной фракции аэрозоля с помощью многослойных фильтров, разработанных в НИФХИ им. Л.Я. Карпова.

Задача для самолетных измерений нетривиальная, так как получаемой навески может просто не хватить по массе для анализа. Надо подобрать необходимые расходы воздуха и решить еще ряд технических задач. Полеты осуществлялись по маршрутам Новосибирск–Якутск–Новосибирск и Новосибирск–Салехард–Хатанга–Чокурдах–Певек–Чокурдах–Якутск–Мирный–Новосибирск по оригинальной методике. Суть ее в том, что весь маршрут выполняется с переменной высотой от минимально возможной (500 м) до максимальной 7000 м. В итоге на разрезе получается несколько вертикальных профилей (шаг 50–250 км) с учетом горизонтальной составляющей полета. По полученным данным строится вертикальный разрез измеренной величины.

Таким образом, определение зон образования наночастиц может осуществляться с разрешением от 50 до 250 км по горизонтали и 50–100 м по вертикали. Последнее определяется скоростью подъема или спуска самолета, что задается диспетчером авиатрассы, и частотой регистрации ДСА. Схема полета по такой методике показана на рис. 1.

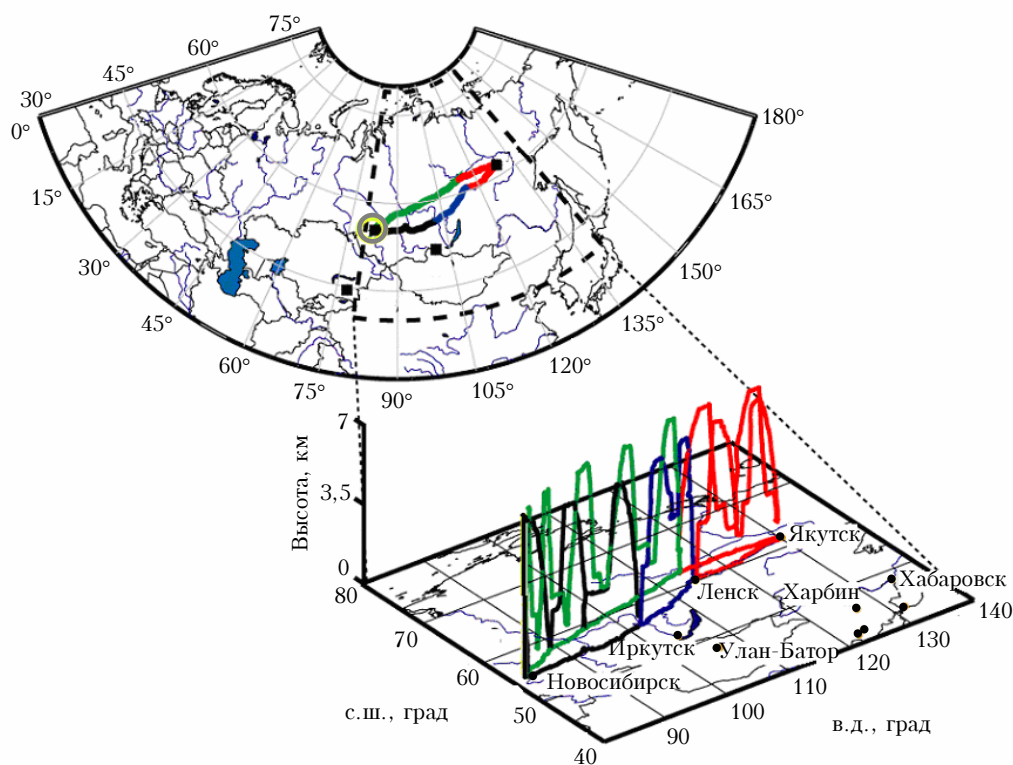


Рис. 1. Схема полета по проекту YAK-AEROSIB

Для исследования пространственного распределения наночастиц меньшего масштаба использовалась мобильная станция АКВ-2, оснащенная тем же набором приборов, что и самолет-лаборатория [11]. Станция работала по маршрутам Томск—Барнаул—Томск, Томск—Омск—Томск, Томск—Иркутск—Томск. В отличие от других мобильных станций АКВ-2 позволяет производить измерения при своем движении. Это даст возможность оценивать дополнительно и микромасштабные изменения концентрации наночастиц.

Таким образом, совмещение двух носителей оборудования позволяет охватить пространственные масштабы от 3000 до нескольких километров, т.е. от макро- до микромасштаба, с пересечением на мезомасштабе.

Временные масштабы оценивались двумя способами. Первый — с помощью данных самолета-лаборатории, получаемых ежемесячно в ходе вертикального зондирования на юге Западной Сибири. Полеты происходят над одним и тем же районом, по одной и той же методике. Второй способ заключается в организации непрерывных (круглосуточные, ежечасные) измерений концентрации аэрозолеобразующих газов: диоксида серы, сероводорода, аммиака, оксида и диоксида азота, суммарных углеводородов; газов, участвующих в фотохимических процессах: озона, оксида и диоксида углерода, метана; микродисперсной и субмикронной фракций аэрозоля; интегральной и ультрафиолетовой солнечной радиации; метеовеличин в двух районах: в фоновом и урбанизированном. Такая организация измерений позволит охватить временные масштабы от сезона до нескольких часов.

Оценка вклада различных механизмов в нуклеацию частиц выполнялась по оригинальной методике [12]. Ее суть в том, что для оценки того или иного механизма используются данные измерений газов-предшественников (сернистый ангидрид, аммиак, водяной пар, концентрация углеводородов), промежуточные компоненты (гидроксил) рассчитываются по хорошо проверенным эмпирическим соотношениям, контроль расчета ведется по концентрации наночастиц и продуктам реакций. Этот подход позволяет избежать необходимости постановки дополнительных дорогостоящих экспериментов и вместе с тем быть уверенным в надежности качественных выводов. Поскольку в условиях реальной атмосферы все вышеперечисленные механизмы работают одновременно и ряд одинаковых компонент может участвовать в разных механизмах в одно и то же время, то даже измерение всех составляющих не избавит исследователя от неуверенности при интерпретации результатов.

Объем материала оказался следующим. Два года непрерывного мониторинга микродисперсной фракции на ТОР-станции (1996 и 2005–2006 гг.) [13, 14]. Пять полетов по маршруту Новосибирск—Якутск—Новосибирск, 64 вертикальных профиля в районе Новосибирска, 2 полета по маршруту Новосибирск—Салехард—Новосибирск и 1 полет Новосибирск—Салехард—Хатанга—Чоккурдах—Певек—Чоккурдах—Якутск—Мирный—Новосибирск. Несколько маршрутов выполнено с помощью мобильной станции.

2. Пространственное распределение наночастиц

Рассмотрение пространственного распределения микродисперсной фракции аэрозоля в атмосфере разобьем на две части. Отдельно рассмотрим вертикальное распределение, которое проведем по профилям, снятым во время подъема и спуска самолета. Горизонтальное распределение — на основании вертикальных разрезов, построенных по данным вертикального зондирования при полетах по вышеперечисленным маршрутам.

2.1. Вертикальное распределение

За рубежом первые эпизодические эксперименты были проведены в середине XX в. Они дали лишь общее представление о вертикальном распределении аэрозоля, включая микродисперсную фракцию [15]. В последние годы исследованием микродисперсных аэрозольных частиц применительно к проблеме облакообразования в свободной атмосфере занимаются сборные группы американских ученых, представляющих различные институты и университеты США, объединяемые различными совместными программами или проектами [16–19]. Однако данными группами в основном проводятся самолетные исследования нуклеации и вертикального распределения аэрозоля в атмосфере экваториальных районов Тихого океана, которые вначале были нацелены на изучение процессов облакообразования. За последние пять лет ими же был проведен ряд экспериментов по изучению процессов образования аэрозоля в свободной атмосфере удаленных морских районов.

Эти исследования показали [16, 18, 19], что при определенных условиях нуклеация может быть достаточно интенсивной, вплоть до появления аэрозольных слоев, в которых концентрация микродисперсных частиц превышает таковую в пограничном слое. Работы над континентом проводятся и европейскими группами ученых, однако из-за сильной антропогенной нагрузки Европы по имеющимся результатам трудно выявить природные процессы аэрозолеобразования в свободной тропосфере [20–22].

Проведенные нами эксперименты [23] показали, что в пограничном слое атмосферы содержание наночастиц изменяется вначале по модели Jaenicke, а в свободной тропосфере наблюдаются слои с повышенной концентрацией. Нетрудно сделать вывод, что эти слои являются результатом процессов образования новых частиц непосредственно в средней тропосфере, так как сами частицы и аэрозолеобразующие соединения из нижележащих слоев не поступали. Нельзя объяснить их появление и дальним переносом, так как время жизни микродисперсных частиц ($d < 70$ нм) в атмосфере невелико из-за высокой скорости конденсационного роста.

Анализ распределения концентрации более старых и долгоживущих частиц ($d > 70$ нм) показал, что она, по сравнению с вновь образовавшимися, была более низкой и монотонно убывала практически от самой поверхности земли. При дальнем переносе концентрации частиц $d < 70$ нм и $d > 70$ нм были