

9. Alexandrov A.N. Gravitational lens equation: critical solutions and magnification near folds and cusps / A.N. Alexandrov, S.M. Koval, V.I. Zhdanov // *Advances in Astronomy and Space Physics*. – 2012. – Vol. 2, issue 2. – P. 184–187.
10. Alexandrov A.N. Properties of the gravitational lens mapping in the vicinity of a cusp caustic / A.N. Alexandrov, V.I. Zhdanov, S.M. Koval // *Odessa Astronomical Publications*. – 2013. – Vol. 26/2. – P. 169–171.
11. Heyrovsky D. Microlensing of an elliptical source by a point mass / D. Heyrovsky, A. Loeb // *Astrophys. J.* – 1997. – Vol. 490. – P. 38–50.
12. Gaudi B.S. Microlensing of elliptical sources by fold caustics / B.S. Gaudi, Z. Haiman // *arXiv:astro-ph/0401035*.
13. An J.H. The Chang-Refsdal lens revisited / J.H. An, N.W. Evans // *Mon. Not. Roy. Astron. Soc.* – 2006. – Vol. 369(1). – P. 317–334.
14. Alexandrov A.N. Dynamic systems that describe Chang-Refsdal gravitational lens / A.N. Alexandrov (in ukr.: Динамічні системи, що характеризують гравітаційну лінзу Чанг-Рефсдала) // *Bull. Kyiv Nation. Taras Shevchenko Univ., Astronomiya*. – 2017. – Т. 56 (2). – С. 25–36.

Надійшла до редколегії 07.04.18

Александров А.Н., канд. физ.-мат. наук,
Жданов В.И., д-р физ.-мат. наук
Киевский национальный университет имени Тараса Шевченко, Киев,
Куйбаров А.В., студ. КПИ им. Игоря Сикорского, Киев

ГРАВИТАЦИОННОЕ МИКРОЛИНЗИРОВАНИЕ ЭЛЛИПТИЧЕСКОГО ИСТОЧНИКА ВБЛИЗИ КАУСТИКИ-СКЛАДКИ

Рассмотрен коэффициент усиления блеска протяженного источника, который имеет гауссовское эллиптическое распределение поверхностной яркости и находится вблизи каустики-складки гравитационно-линзовой системы. Для него получена аналитическая формула, которая учитывает второе приближение по параметру близости к каустики. В этом приближении принимаются во внимание соответствующие производные линзового потенциала вплоть до пятого порядка. Найденная формула содержит зависимость коэффициента усиления от координат центра источника, его геометрических размеров и его ориентации относительно каустики. На модельном примере сравниваются аналитические расчеты кривых усиления для разных ориентаций эллиптического источника, а также кругового источника с той же светимостью.

Ключевые слова: гравитационные линзы, каустика-складка, микролинзирование, эллиптический источник, коэффициент усиления, аналитические формулы

Alexandrov A.N., Ph. D.,
Zhdanov V.I., Dr. Sci.
Astronomical Observatory of Taras Shevchenko National University of Kyiv, Kyiv;
Kuybarov A.V., student
Igor Sikorsky Polytechnic Institute, Kyiv

GRAVITATIONAL MICROLENSING OF AN ELLIPTICAL SOURCE NEAR A FOLD CAUSTIC

We consider the amplification factor for the luminosity of an extended source near the fold caustic of the gravitational lens. It is assumed that the source has elliptical shape, and the brightness distribution along the radial directions is Gaussian. During the microlensing event the total brightness of all microimages is observed, which changes when the source moves relative to the caustic. The main contribution to the variable component is given by the so-called critical images that arise/disappear at the intersection of the caustic by the source.

The amplification factor for the critical images of an extended source is given by the following formula

$$K_{\text{tot,cr}}(Y_{c,i}) = \frac{\iint K_{\text{cr}}(y_i) B(y_i - Y_{c,i}) dy_1 dy_2}{\iint B(z_j) dz_1 dz_2}.$$

Here $B(z_j)$ is the brightness distribution of the source in the coordinate system associated with its center; $Y_{c,i}$ are the coordinates of this center in the coordinate system with origin at the caustic point; $K_{\text{cr}}(y_i)$ is the total amplification of two critical images of the point with the coordinates y_i . Brightness of the elliptical source in its own coordinate system is

$$B(z_j) = \exp \left\{ - \left[\left(\frac{z_1}{\tilde{a}} \right)^2 + \left(\frac{z_2}{\tilde{b}} \right)^2 \right] \right\},$$

where \tilde{a} and \tilde{b} are the semi-major and semi-minor axis of the reference ellipse.

Earlier, by an expansion in the generalized Taylor series in the neighborhood of the point $y_i = 0$, a formula for $K_{\text{cr}}(y_i)$ was obtained, which takes into account the derivatives of the lens potential up to the fifth order (Alexandrov et al // *Astron. Lett.*, 2010). It was used to calculate the amplification of a pair of critical images of an extended circular source with various brightness profiles (Alexandrov, Zhdanov // *Mon. Not. Roy. Astron. Soc.*, 2011). In the present paper we obtained an analogous formula for elliptical Gaussian source. The formula involves a dependence on the coordinates of the source centre, its geometric dimensions, and its orientation relative to the caustic. We show that in the linear caustic approximation the amplification of the circular and elliptical sources is described by the same (rescaled) formula. However, in the next approximations the differences are significant. We compare analytical calculations of the amplification curves for different orientations of an elliptical source and for a circular source with the same luminosity for the model example.

Key words: gravitational lenses, fold caustic, microlensing, elliptical source, amplification factor, analytical formulas

УДК 52-852; 524.1; 551.51

В. Данилевський, канд. фіз.-мат. наук
Астрономічна обсерваторія Київського національного університету імені Тараса Шевченка, Київ

КОСМІЧНІ ПРОМЕНІ Й АЕРОЗОЛІ В ЗЕМНІЙ АТМОСФЕРІ

Однією з гіпотез для пояснення змін земного клімату є вплив зовнішніх космічних чинників, зокрема космічних променів галактичного походження, які є основним джерелом іонізації молекул у тропосфері. Відомо, що за умов достатньої перенасиченості пари води й інших речовин іони стають центрами конденсації цієї пари у краплі рідини й утворення аерозольних частинок. Конденсування водяної пари на аерозольних частинках в атмосфері призводить до утворення хмар, які є одним із головних чинників метеорологічних процесів й у значній мірі впливають на клімат у регіональному та глобальному масштабах. Ці факти були покладені в основу гіпотези про можливий вплив космічних променів на кількість і фізичні властивості хмар та на клімат. Проте досі результати пошуків тісного зв'язку між змінами потоку космічних променів під впливом сонячної активності (т. зв. явища Форбуша) та станом хмарності в атмосфері мають низький рівень достовірності, суперечливі і є предметом наукових дискусій. Головна проблема

© Данилевський В., 2018

– пошук відповідних фізичних механізмів, які забезпечували б в атмосферних умовах достатню ефективність формування аерозольних частинок під дією космічних променів, щоб пояснити спостережувані характеристики хмар. У статті розглянуто та проаналізовано механізми утворення молекулярних кластерів та їхнього зростання до розмірів аерозольних частинок у земній атмосфері і роль у них іонів, утворюваних космічними променями. Також наведено огляд спостережних даних про ефективність ядроутворення та зростання аерозольних частинок в атмосфері, внесок іонів і модельних оцінок впливу цих процесів на динаміку атмосфери та кліматичні параметри. Зроблено висновки про вплив ядроутворення на оптичні характеристики аерозольних частинок і можливість дистанційних спостережень явищ ядроутворення.

Ключові слова: космічні промені, земна атмосфера, іонізація, ядроутворення, аерозолі.

Вступ. Одним з аспектів вивчення космічних променів (КП) є дослідження явищ, що відбуваються при їхньому вторгненні в земну атмосферу. Головним механізмом впливу КП на стан земної атмосфери є іонізація молекул, зокрема КП є головним джерелом іонізації молекул повітря нижче 40–35 км [1, 2]. Через іонізацію молекул атмосфери КП впливають на перебіг хімічних реакцій у ній, зокрема на утворення нітратів і, як наслідок, на озоновий шар [1, 4]. У зв'язку з іонізацією молекул у тропосфері опубліковані численні дослідження про можливий зв'язок між варіаціями потоку КП, зокрема через вплив сонячної активності, та довгостроковими змінами земного клімату (див. напр. [1] та наведені там літературні джерела, а також пізніші дослідження, напр. [3–5]). Оцінки впливу КП на зміни клімату містяться й у звітах Міжурядової групи експертів зі змін клімату [9]. У науковій літературі із цієї проблеми наводяться результати досліджень взаємозв'язку між змінами метеорологічних, кліматичних і геофізичних параметрів та потоками космічних променів як галактичного і міжгалактичного походження, так і променів сонячного вітру. Головним механізмом такого зв'язку розглядається вплив КП на інтенсивність утворення й оптичні властивості хмар, пов'язаних, у свою чергу, із вмістом в атмосфері і характеристиками аерозольних частинок.

Аерозолі, як істотний кліматотвірний чинник, відіграють важливу роль у перетвореннях сонячної енергії в земній атмосфері. Аерозольні частинки, крім того, що розсіюють та частково поглинають випромінювання в широкому діапазоні оптичного спектру, зменшуючи його потік на земну поверхню (прямий радіаційний ефект), ще й відіграють роль ядер конденсації водяної пари, впливаючи таким чином на формування хмарного покриву (непрямий радіаційний ефект). Площа хмар, їхня щільність й оптичні характеристики є одним із головних параметрів, що впливають на радіаційний баланс системи атмосфера – земна поверхня, на кількість накопиченої в цій системі енергії і, таким чином, на формування глобального та регіонального клімату [7–9]. У зв'язку із цим природно постає питання про характеристики аерозольних частинок, найважливіші для тих чи інших аспектів їхнього впливу на енергетичний баланс земної атмосфери, що пов'язано з походженням аерозолів та їхньою еволюцією в атмосфері. Відомо, що аерозольні частинки надходять в атмосферу із земної поверхні (грунтовий пил, морська сіль із поверхні океану, попіл при вулканічних виверженнях, унаслідок горіння біомаси при пожежах рослинності, спалюванні різного виду палива в печах і двигунах тощо), з космосу при метеорних явищах та падінні метеоритів, а також утворюються в атмосфері з газів-прекурсорів та водяної пари. Цей останній механізм найменш вивчений, незважаючи на значну кількість наукової літератури із цього питання. У загальних рисах процес утворення аерозольних частинок складається із двох етапів: спочатку відбувається утворення зародків (ядер) із молекул газів під впливом певних чинників і зростання їх до критичного розміру, і наступний етап – зростання краплі рідини на цьому зародку. Ефективність процесу утворення зародків (ядроутворення) залежить від концентрації відповідних молекул та фізичних умов у певному об'ємі атмосфери.

Для досліджень зв'язку між варіаціями потоку космічних променів і вмістом аерозолів в атмосфері та хмарністю використовують дані як космічних, так і наземних дистанційних і місцевих (in situ) вимірювань характеристик аерозольних частинок і площі та щільності хмар. Результати низки досліджень вказують на зв'язок між відносним вмістом дрібнодисперсного аерозолю, параметрами хмарного покриву та потоком космічних променів, переважно галактичних з енергіями $\sim 10^8$ – 10^9 MeV і вище, що надходять на Землю [3], однак загалом результати таких досліджень суперечливі. Так, автори [10] за даними Міжнародного супутникового проекту з досліджень хмар (ISCCP – The International Satellite Cloud Climatology Project, <https://isccp.giss.nasa.gov>), супутникового приладу MODIS (<https://modis-atmos.gsfc.nasa.gov>) та Міжнародної мережі автоматичних сонячних фотометрів AERONET (Aerosol Robotic Network, <https://aeronet.gsfc.nasa.gov>), дослідивши 26 явищ раптового зниження потоку КП, відомого як ефект Форбуша, виявили зв'язок між сонячною активністю, потоком КП, оптичною товщиною аерозолів у всій товщі атмосфери та площею низьких хмар у глобальному масштабі. Однак автори [11], використавши ту ж саму базу даних про характеристики хмар (ISCCP), не виявили жодного істотного відгуку в характеристиках хмар на події Форбуша ні у глобальному, ні в регіональному масштабах. Проте ці дослідники проаналізували значно меншу кількість подій Форбуша (лише 6) упродовж одного 11-річного циклу сонячної активності і використали інший метод аналізу, ніж попередні, хоча аналізували хмари й інтенсивність іонізації молекул повітря в різних діапазонах висот у тропосфері з урахуванням геомагнітного поля на час подій Форбуша. Вчені вважали, що концентрація зародків ядер конденсації (CCN – Cloud Condensation Nuclei) має істотно зменшитися впродовж 1–2 діб після події Форбуша і відновитися приблизно через тиждень після неї. Цей критерій був сформульований на оцінках інтенсивності ядроутворення та швидкості зростання крапель за участі молекул сірчаної кислоти. При цьому вони не враховували можливого впливу атмосферного переносу ядер конденсації.

Спостереження за формуванням аерозольних частинок на станції SMEAR II у Фінляндії впродовж сонячного циклу 1996–2008 рр. були виконані авторами [12]. Їхній аналіз показав, що жодна з величин, пов'язаних із формуванням нових частинок, не корелює з інтенсивністю іонізації атмосфери космічними променями. Також був перевірений внесок іонів до формування нових частинок на основі нових наземних спостережень і вимірювань на літаках. Автори дійшли висновку, що внесок іонів становить зазвичай не більше 10 % до загальної кількості нових утворених частинок, що може пояснити відсутність кореляції між інтенсивністю спричиненої КП іонізації і формуванням аерозолів. Головний висновок полягає в тому, що галактичні КП відіграють незначну роль у формуванні атмосферних аерозолів, а також й у впливі на клімат.

Для виявлення й оцінювання відгуку характеристик хмарності на зміни потоку галактичних космічних променів дослідники проаналізували ряди даних про параметри хмар за вимірюваннями супутникового приладу MODIS над

віддаленими від суходолу субтропічними акваторіями океанів південної півкулі [13]. Вибір цих регіонів обґрунтовується тим, що тут низький вміст аерозолів, а хмари характеризуються низькою концентрацією крапель та їхніми великими розмірами і, відповідно, високою відбивною здатністю для світла, що робить вимірювання особливо чутливими до концентрації крапель. Для аналізу використані площа хмар над відповідним регіоном, ефективний радіус крапель, вміст води у хмарі й оптична товщина хмар. Загалом використані 22 події Форбуша впродовж 2000–2005 рр. з амплітудами від 5 до 22 % для досліджень кореляції їхніх змін зі змінами потоку КГП. Висновок авторів: варіації характеристик хмар не показують статистично значимої кореляції зі змінами потоку КГП, хоча в певних регіонах такі кореляції спостерігаються, особливо для подій Форбуша з більшими амплітудами. З огляду на це вчені роблять висновок, що їхні дослідження не дозволяють виявити достовірний вплив КГП на формування хмар, найімовірніше через недостатню кількість розглянутих значних подій Форбуша.

І, нарешті, в останній за часом роботі [14] для пошуку зв'язку між потоком галактичних КГП і змінами в земній атмосфері використали дані приблизно 130 нейтронних моніторів по усій земній кулі, дані мюонного телескопа у Нагойя (Японія), дані супутникових вимірювань спектрального розподілу й інтегральної інтенсивності оптичного сонячного випромінювання, дані про аерозолі в земній атмосфері за вимірюваннями AERONET, супутникові дані про параметри хмар і вміст у них рідкої води. Усього оцінювали шість параметрів, що характеризували стан хмарності: оптична товщина і коефіцієнт випромінювання хмар, вміст рідкої води у хмарах і її оптична товщина, концентрація ядер конденсації водяної пари (тобто дрібних аерозольних частинок) у стовпі атмосфери, ефективний радіус крапель у хмарах. Розвиток атмосферної зливи при вторгненні КГП і відповідна ефективність іонізації атмосфери моделювалися методом Монте-Карло за допомогою моделі CORSIKA для діапазону зенітних відстаней 0° – 70° і діапазону енергій 1–1000 Гев. При цьому найбільша ефективність іонізації виявлена на висотах 12–13 км і становить приблизно 25 іонних пар/с·см³ під час максимуму сонячної активності і приблизно 17 іонних пар/с·см³ під час мінімуму. З розгляду 26 найбільших подій Форбуша впродовж 1987–2007 рр. було виявлено кореляцію між амплітудою подій Форбуша та змінами фізичних властивостей аерозолів і хмар у всіх використаних рядах даних. Ці результати, як стверджують автори, з високою достовірністю показали існування впливу подій Форбуша на мікрофізичні характеристики хмар і підтвердили очікувану послідовність фізичних явищ, відповідальних за спостережувані кореляції: викид речовини із сонячної корони – зменшення потоку галактичних КГП – зменшення рівня іонізації земної атмосфери – зменшення інтенсивності ядроутворення – зменшення концентрації ядер конденсації пари – зменшення кількості крапель у хмарах – збільшення розмірів крапель, зменшення площі, оптичної товщини і коефіцієнта випромінювання хмар. Також збільшення розмірів крапель приводить до збільшення ймовірності опадів та зменшення кількості води у хмарах.

У згаданих тут та в багатьох інших публікаціях методологія досліджень впливу космічних променів на стан і процеси у кліматичній системі Землі, а відповідно й результати, у більшій чи меншій мірі пов'язані з моделюванням фізичних механізмів взаємодії КГП з атмосферою. Ідея про роль КГП у утворенні аерозольних частинок в атмосфері пов'язана з явищем утворення крапель у камері Вільсона чи у дифузійних камерах уздовж треку елементарної частинки з достатньо високою енергією. Ці краплі утворюються у перенасиченій парі води чи іншої речовини унаслідок іонізації молекул пари і наступного утворення кластерів молекул, через що середовище стає двофазним, створюючи можливість для фазових переходів. Як показують результати експерименту з моделювання взаємодії високоенергетичних частинок з молекулами пари різних речовин у спеціальній камері, що проводиться у CERN [15–17], в атмосферних умовах іонізування молекул космічними променями на рівні тропосфери підвищує продуктивність процесів утворення дрібнодисперсних аерозольних частинок і конденсації на них водяної пари у краплі води. Головною проблемою при цьому залишається кількісна оцінка ефективності цих механізмів, що зумовлюють зв'язок між космічними променями й вмістом дрібнодисперсного аерозолу та хмарністю. При оцінюванні ефективності та продуктивності такого механізму необхідно враховувати як фізичні умови для відповідних фазових переходів в атмосфері [18, 19], так і вплив на рухливість (тобто і на здатність до кластерування) утворених космічними променями іонів локальних електричних полів у земній атмосфері і глобального електричного поля Землі [18, 20–22]. Однак поки-що теоретичними методами складно визначити ефективність цих механізмів утворення аерозолів і їхній внесок у загальний вміст аерозолів у земній атмосфері та на їхні оптичні характеристики. Крім того, аерозолі різного типу надходять до атмосфери з багатьох інших джерел, розташованих на поверхні Землі.

Критичним процесом для досліджень є зростання новоутворених частинок до розмірів, що дозволяють їх виявляти, зокрема спостерігатися дистанційно через розсіювання світлових хвиль. Розміри, хімічний склад і фізичні характеристики частинок, утворених із газів-прекурсорів, залежать від речовин, що беруть участь у кластеризації, і від подальшого механізму їхнього зростання. Час існування вже утворених стійких кластерів дуже короткий через їх коагуляцію із більшими частинками. Новоутворені частинки зростають зі швидкістю приблизно 1–20 нм за годину залежно від кількості молекул відповідних газів [18]. У полярних регіонах ця швидкість значно нижча, ~0.1 нм за годину. Крім того, швидкість зростання частинок улітку у кілька разів вища, ніж узимку.

Процеси кластерування й утворення наночастинок спостерігаються і за допомогою спеціального обладнання (лічильники частинок, аналізатори мобільності частинок тощо) у приземному повітрі в окремих місцевостях, й у вільній тропосфері з літаків та повітряних куль. Найчастіше ядроутворення виявляється в таких регіонах: 1) вільна тропосфера поблизу тропопаузи та біля конвективних хмар; 2) у північних лісах; 3) в урбанізованих регіонах; 4) у прибережних зонах Європи й США [23–25]. Очевидно, що тут присутня спостережна селекція – спостереження виконуються у найдоступніших умовах, через складність відповідного обладнання.

Механізми утворення ядер (ядроутворення) і конденсації пари в земній атмосфері. Загалом фазовий перехід від пари до рідини в однофазному середовищі сам по собі може відбуватися дуже повільно. Так, за відносної вологості чистого повітря 200 % і температури +20°C (293 K), чого ніколи не трапляється в реальній атмосфері Землі, швидкість перетворення усієї пари в ядра водяних крапель становить порядку 10^{-54} крапель у см³ за секунду, тобто, щоб за таких умов в 1 см³ утворилася одна крапля, потрібен час порядку 10^{54} с (~ $3 \cdot 10^{46}$ років). Проте насправді в атмосфері водяні краплі утворюються надзвичайно швидко за відносної вологості, що лише трохи перевищує 100 %, і це завдяки присутності в повітрі аерозольних частинок або навіть надзвичайно малих кластерів молекул. Якщо утворюється таке ядро, то подальше конденсація пари на ньому відбувається доволі швидко [18, 19]. Фор-

мування цих нових крапель відбувається у два етапи. Спочатку внаслідок випадкових зіткнень між нейтральними молекулами або молекулам й іонами утворюються кластери з так званим критичним розміром ~ 1 нм, які потім, за відповідних умов, можуть зрости до розмірів ~ 10 – 100 нм і стати ядрами конденсації пари й утворення крапель. Критичний розмір кластера зумовлюється бар'єром вільної енергії Гібса, що виникає згідно із другим законом термодинаміки і який повинні долати молекули й іони для приєднання до кластера. Цей енергетичний бар'єр виникає у зв'язку із формуванням поверхні іншої фази, за якого виникає енергія поверхневого натягу цієї поверхні. За критичного розміру кластера цей бар'єр максимальний і відповідає умові рівності 0 похідної від вільної енергії системи кластер – навколишні молекули відповідного газу по відстані від центра кластера. Ця умова відповідає кінетичній рівновазі молекул, що приєднуються до кластера та від'єднуються від нього, або ж рівності тиску навколишньої атмосфери і тиску насиченої пари речовини, з якої складається кластер, над його поверхнею, тобто мінімальній швидкості зміни розмірів кластера. Кластерування може відбуватися лише в умовах перенасичення пари відповідної речовини, і його критичний розмір R_c залежить як від зовнішніх умов в атмосфері (тиск і температура), так і фізичних та хімічних властивостей молекул речовини, що кластеризується:

$$R_{Cr} = \frac{2 \cdot \sigma \cdot V_{Mol}}{kT \cdot \ln\left(\frac{P}{P_{Sat}}\right)},$$

де σ – коефіцієнт поверхневого натягу кластера; V_{Mol} – об'єм молекули речовини, що кластеризується; k і T – відповідно стала Больцмана і температура середовища; P і P_{Sat} – тиск перенасиченої пари та тиск насиченої пари над поверхнею кластера відповідно (див. напр. [26, с. 18]). Критичний розмір кластера відповідає метастабільному стану системи, а випадкове приєднання або від'єднання однієї молекули порушує цю рівновагу і призводить або до швидкого зростання, або ж до розпаду (випаровування) кластера. Як відомо із фізики, тиск насичення пари над випуклою поверхнею рідини значно перевищує тиск насичення над плоскою поверхнею (ефект Кельвіна [26, 18, 19]), що накладає істотне обмеження на можливість зростання кластерів, оскільки потребує достатньої кількості молекул відповідної речовини у місці утворення крапель. Рівень перенасичення пари в атмосфері впливає на розмір і властивості утворюваних ядер. Збільшення перенасичення пари призводить до зменшення критичного розміру кластера (див. формулу вище) і висоти енергетичного бар'єру, призводячи до зростання швидкості ядроутворення.

У теорії фазових переходів однорідним (гомогенним) називають ядроутворення лише в парі, за відсутності речовини іншої фази. Неоднорідним (гетерогенним) називають ядроутворення (конденсування), що відбувається на твердих частинках (аніонах) або на поверхні рідини. Крім того, процес ядроутворення і конденсації може бути гомомолекулярним, за участі лише молекул однієї й тієї ж речовини, або гетеромолекулярним, за участі молекул двох і більше речовин. Відповідно, можливі чотири комбіновані процеси: однорідно-гомомолекулярний, однорідно-гетеромолекулярний, неоднорідно-гомомолекулярний і неоднорідно-гетеромолекулярний [18, 19].

В атмосферних умовах гомомолекулярне кластерування водяної пари буває лише гетерогенним, на вже утворених зародках або ж на аерозольних частинках, що вже присутні в атмосфері. Гетерогенне ядроутворення може відбуватися за істотно нижчої перенасиченості пари, ніж гомогенне, і тому цей механізм найефективніший у випадку водяної пари. Нижча перенасиченість пари при гетерогенному ядроутворенні зумовлена тим, що поверхні пилинки зазвичай не сферичні, а радіуси сферичних крапель набагато більші, ніж радіуси новоутворених кластерів, і відповідно менше впливає ефект Кельвіна. Присутність іонів також сприяє конденсації пари, оскільки потрапляння їх на поверхню кластера також зменшує його поверхневий натяг і знижує тиск насиченої пари [18, 19, 26]. Гомогенне ядроутворення наночастинок в атмосфері завжди гетеромолекулярне, за участі двох (бінарне), трьох (потрійне) і більше речовин у газовому стані. Потенціал таких речовин до ядроутворення, найімовірніше, визначається їхнім вмістом і концентрацією в атмосфері, леткістю і хімічною активністю. У випадку суміші пари двох і більше речовин, жодна з яких не перенасичена, кластерування і ядроутворення можливі, якщо ця суміш пари перенасичена відносно пари їхнього розчину. Іншими словами, гетеромолекулярне ядроутворення може відбуватися, коли суміш пари недонасичена відносно кожної із чистих речовин, але перенасичена відносно розчину цих речовин. Найважливішими складовими бінарного ядроутворення в атмосфері є сірчана кислота H_2SO_4 , і вода. Тиск насичення пари H_2SO_4 достатньо низький за атмосферних умов, й у присутності водяної пари він стає ще нижчим. Дослідження показали, що для ефективного кластерування і ядроутворення достатньо концентрації молекул пари цієї кислоти $\sim 10^5$ молекул/см³ [18, 19].

Розміри і хімічний склад кластерів критичного розміру в атмосфері ще недостатньо відомі через брак аналітичних методів для прямих їхніх вимірювань. Непрямі вимірювання та теоретичні оцінки показують, що критичні розміри ядер становлять порядку 1 нм і складаються вони з відносно невеликої кількості молекул, що утримуються разом нековалентними силами Ван дер Ваальса. Оскільки молекули відомих речовин, що беруть участь у ядроутворенні, мають істотний дипольний момент та/або містять атом водню, з'єднаний із негативним іоном (азоту або кисню), то електростатична взаємодія (у т. ч. й через поляризацію молекул) і водневий зв'язок мають відігравати важливу роль у формуванні найдрібніших кластерів. Зі зростанням кластера стає можливим перехід протона від кислотної частини кластера (наприклад H_2SO_4) до основної частини (наприклад H_2O або NH_3), оскільки іонна пара стабілізується взаємодією з навколишніми полярними молекулами (наприклад H_2O) у кластері. Утворення іонних пар може істотно збільшити швидкість ядроутворення через зменшення вільної енергії критичних кластерів. Проте сучасне розуміння ролі переходу фотона й інших можливих хімічних процесів при утворенні молекулярних кластерів в атмосфері усе ще неадекватне [19]. Загалом розміри утворюваних в атмосфері частинок можуть змінюватися на понад п'ять порядків, від розмірів стабільного кластера (~ 1 нм) до дощових крапель (~ 1 мм).

Отже, швидкість утворення кластерів і зростання частинок контролюється п'ятьма ключовими параметрами [22]: концентрацією молекул якоїсь речовини, крім водяної пари (наприклад сірчаної кислоти) в об'ємі атмосфери, температурою, відносною вологістю, швидкістю іонізації, площею поверхні вже присутніх частинок (ядер).

Теорії ядроутворення створюють для опису еволюції популяції кластерів в об'ємі атмосфери, тобто швидкості і механізмів, за яких кластери зростають і розпадаються. Зростання кластера може бути представлено як оборотний покрововий кінетичний процес в одно- або багатоконпонентній системі. За один крок до кластера може бути приєднана або від'єднана одна молекула. Швидкість ядроутворення характеризується швидкістю зростання кластерів критичного розміру: $J = k_i^+ \cdot C_i$, де i – число молекул у кластері; k_i^+ – стала швидкості приєднання молекул до кластера (стала швидкості зростання), C_i – концентрація кластерів розміру i (тобто із числом молекул i). У випадку кластера критичного розміру швидкість зростання кластерів розміру $(i+1)$, де i – число молекул у кожному з них – дорівнює швидкості розпаду, тобто швидкості формування кластерів із розміром $(i-1)$: $k_i^- \cdot C_i = k_i^+ \cdot A_i \cdot C_i$, де k_i^- – стала швидкості втрати молекул кластером (стала розпаду); A_i та C_i – відповідно концентрація приєднуваних молекул та кластерів розміру i . Сталі швидкості приєднання і втрати молекул можуть бути обчислені за допомогою кінетичних теорій, таких як теорія перехідного стану для хімічних реакцій [27]. Для кожного кластера відношення коефіцієнтів швидкості зростання і розпаду перебувають у балансі [19]:

$$\frac{k_{i-1}^+}{k_i^-} = \frac{Q_{C_i}}{Q_{C_{i-1}} \cdot Q_{A_{i-1}}} \cdot \exp\left(\frac{D_{C_i}}{kT}\right),$$

де Q_{C_i} – статистична сума розподілів молекул за станами для ядер критичного розміру; $Q_{C_{i-1}}$ і $Q_{A_{i-1}}$ – статистичні суми для ядер розміру $(i-1)$ і молекул (мономерів) відповідно; D_{C_i} – енергія зв'язку ядер критичного розміру з мономерами і кластерами розміру $(i-1)$. З іншого боку, стала швидкості розпаду кластерів обчислюється як [19]:

$$k_i^- = \frac{kT}{h} \cdot \frac{Q_{C_i}^*}{Q_{C_i}} \cdot \exp\left(-\frac{\Delta E}{kT}\right),$$

де h – стала Планка; $Q_{C_i}^*$ – статистична сума для перехідного стану; ΔE – енергія перехідного стану для кластера критичного розміру. Статистичні суми для цих рівнянь обчислюються за класичною статистикою для поступального й обертального руху, і за квантовою механікою для коливального. Частоти коливань, моменти інерції й енергії реакцій визначаються методами квантової хімії. Очевидно, що при ядроутворенні відношення цих коефіцієнтів повинно бути > 1 , тобто швидкість приєднання молекул до кластерів має перевищувати швидкість випаровування цих кластерів.

Для опису процесу ядроутворення використовують різні підходи, залежно від прийнятих припущень і наближень. Феноменологічні теорії, такі як класична теорія ядроутворення, намагаються визначити вільну енергію критичних ядер із макроскопічних параметрів, таких як поверхневий натяг і густина краплі рідини. Деякі кінетичні теорії визначають розподіл кластерів і швидкість утворення, обчислюючи сталі швидкостей приєднання і від'єднання молекул, уникаючи явного оцінювання енергії формування кластерів із макроскопічних параметрів. Методи молекулярної динаміки, моделювання за методом Монте-Карло і теорія функціонала густини застосовують перші принципи для обчислень структури кластерів і вільної енергії формування кластерів [19].

Класична теорія ядроутворення використовує термодинамічні і кінетичні методи для оцінювання змін вільної енергії Гібса на початковій стадії зародження і формування кластера та для обчислень швидкості його зростання. Швидкість ядроутворення є функцією коефіцієнтів швидкостей приєднання та випаровування молекул певного типу. Ці коефіцієнти обчислюються або на основі кінетичної теорії газів для умов земної атмосфери, або з умови рівноваги хімічних потенціалів рідинної та газоподібної фази речовини при кількох важливих припущеннях. По-перше, молекули переходять із газової фази в рідинну за одного й того ж тиску. Вільна енергія при цьому не змінюється, оскільки обидві фази перебувають у стані насичення та рівноваги за однакового тиску. Кластери, що складаються з невеликої кількості молекул, мають чітку поверхню і той самий поверхневий натяг, що й рідина. Це найважливіше припущення, що покладене в основу класичної теорії ядроутворення і має назву "наближення капілярності" [18, 19]. Таким чином, ця теорія дозволяє оцінити розподіл утворених частинок за розмірами.

Класична теорія може бути застосована як для гомогенного гомомолекулярного, так і для гетеромолекулярного ядроутворення. Наприклад, у випадку бінарного кластерування вільна енергія залежить від концентрації молекул двох речовин, і критичний розмір ядра відповідає сідловій точці на двовимірній поверхні вільної енергії Гібса. Випадкове приєднання до такого кластера однієї молекули будь-якої із двох речовин призводить до його подальшого спонтанного зростання. Класична теорія забезпечує компактні аналітичні формули для критичного насичення пари і для швидкості ядроутворення, засновані на вільній енергії формування критичних ядер, одержаній із вимірювань властивостей крапель рідини для багатьох речовин. Вона дозволяє одержати розумні оцінки рівня перенасичення пари, проте при відтворенні швидкості ядроутворення часто її результати відрізняються на порядки величин для багатьох речовин й експериментальних умов. Зокрема, швидкість ядроутворення недооцінюється за низьких температур і переоцінюється за високих, а критичне перенасичення істотно недооцінюється для молекул із сильною взаємодією, таких як органічні карбоксиліові кислоти. Одним із недоліків цієї теорії є апроксимація поверхні критичного кластера сферою із чіткою межею та із тією ж густиною речовини, що і відповідної рідини (припущення капілярності). Зокрема молекулярна динаміка і теорія функціоналу густини показують, що поверхневий натяг ядра зменшується зі зменшенням його розмірів, а швидкість ядроутворення надзвичайно чутлива до поверхневого натягу й об'єму молекул, отож навіть незначні зміни цих параметрів призводять до її зміни на багато порядків. Оцінки показують, що класична теорія не працює для кластерів із числом молекул < 10 . Крім того, з її рівнянь випливає, що вільна енергія Гібса не дорівнює 0 для "кластера" з однієї молекули, що не має фізичного змісту [19]. Також припущення про стабільний стан популяції кластерів критичного розміру впродовж усього процесу ядроутворення і про те, що концентрація мономерів буде набагато більшою, ніж концентрація субкритичних кластерів, може бути неправильним для широкого діапазону умов ядроутворення в атмосфері. У випадку швидкого ядроутворення значна частина ядер утворюється унаслідок взаємодії між кластерами, призводячи до недооцінки цієї швидкості феноменологічними теоріями порівняно з кінетичними.

Точне обчислення швидкості ядроутворення вимагає точного представлення міжмолекулярної взаємодії у комбінації з теоретичним механізмом, що пов'язує енергію взаємодії зі сталими швидкості і прийнятого статистичного механізму для точного визначення вільної енергії.

Існує чимало **кінетичних теорій** для обчислення розподілу кластерів і сталих швидкості ядроутворення, які унікають явного оцінювання енергії формування кластерів із макроскопічних параметрів. Вони обчислюють швидкості зростання та розпаду кластерів незалежно, розв'язуючи рівняння, що описують рух окремої молекули в потенціальному ямі навколо кластера. Припускається, що кластер має чітку межу й однорідну густину, що дорівнює густині відповідної рідини (теорія Ракенштейна, див. [19]). Параметри потенціалу взаємодії варіюються, щоб одержати правильну густину рідини і коефіцієнт поверхневого натягу для великого сферичного кластера. Ця теорія зводиться до класичної для великих кластерів. У пізніших версіях припущення про однорідність густини усувається шляхом використання теорії функціонала густини.

У **теорії динамічного ядроутворення** ядроутворення у парі трактується як багатокроковий процес бінарних зіткнень між молекулами та кластерами. Шляхом розв'язування кінетичних рівнянь, що явно враховують взаємодію молекул, визначаються параметри еволюції кластера. Зокрема обчислюється стала розпаду кластера (див. відповідне рівняння вище, розд. 2.1). Сталу швидкості зростання кластера обчислюють потім із відношення між сталими розпаду та зростання і з використанням різниці у вільній енергії Гельмгольца між близькими за розміром кластерами з умови балансу, як й у більшості інших теорій, у т. ч. й класичній. Критичний стан у динамічній теорії характеризується роздільною поверхнею у фазовому просторі, що розділяє стан реагентів від стану створених продуктів реакції за умови детального балансу між сталими швидкості приєднання та від'єднання молекул. Динамічна теорія показує добру узгодженість з експериментальними та спостережними даними для ядроутворення в чистій воді і може бути розширена на багатокомпонентні системи [19].

Молекулярна динаміка і метод Монте-Карло використовують перші принципи для обчислень вільної енергії при формуванні кластера та його структури. Метод Монте-Карло стохастичний і моделює еволюцію ансамблю молекул, створюючи випадкові конфігурації і відбираючи їх відповідно до певних критеріїв. Навпаки, класичний метод молекулярної динаміки використовує закони Ньютона для явного моделювання траєкторій усіх молекул, що беруть участь у фазовому переході. Траєкторії визначаються задаванням початкових положень і моментів молекули та потенціалом міжмолекулярної взаємодії. Наявність зародка нової фази визначається щільністю молекул, числом зв'язків на молекулу, хімічним потенціалом молекул у новій фазі або іншими характеристиками. Ця інформація використовується для обчислень сталих швидкості зростання і розпаду зародка та швидкості ядроутворення. Оскільки не існує аналітичного розв'язку задачі багатьох тіл, то обчислення за методами молекулярної динаміки або Монте-Карло потребують багато обчислювальних ресурсів. Це накладає обмеження на число молекул, що можуть бути залучені до моделювання, на об'єм простору і час інтегрування, тому пряме моделювання ядроутворення непрактичне. Альтернативою прямому моделюванню є методи зміщеної вибірки, наприклад метод парасольки (Umbrella sampling) [28].

Для класичних методів молекулярної динаміки і Монте-Карло потрібно знати реалістичний міжмолекулярний потенціал. Потенціал Ленарда – Джонса неприйнятний для молекул речовин, що розглядаються при моделюванні ядроутворення, таких як вода, сірчана кислота й інші імовірні атмосферні складові. Створені нові моделі потенціалу, такі як перехідний (transferable) міжмолекулярний потенціал, застосування якого дає прийнятне узгодження з вимірюваними характеристиками молекул води, пов'язаними з міжфазовими переходами. Хоча використання такого типу потенціалу для переходу між парою і рідиною правильно відтворило температурну залежність швидкості ядроутворення, передобчислення абсолютних значень цього параметра усе ще помилкові на кілька порядків величини [19].

Перший принцип молекулярної динаміки не потребує визначення моделі потенціалу, оскільки використовує електронну структуру системи молекул, застосовуючи теорію функціонала густини або квантову хімію. Проте застосування такого гібридного методу вимагає забагато обчислювальних потужностей і досі обмежується дослідженнями динаміки на проміжках часу у десятки й сотні пікосекунд [19].

У **теорії функціоналу густини** (Density Functional Theory) при застосуванні до задачі ядроутворення пару речовин розглянуто як неоднорідне плинне середовище. Межа між зародком нової фази і парою має обмежену товщину та характеризується профілем густини, але на відміну від класичної теорії ядроутворення густина в центрі зародка не обов'язково має бути рівною густині краплі рідини. Також профіль густини біля поверхні не повинен збігатися із профілем для плоскої поверхні, а лише прямувати до густини пари над краплею на великій відстані від кластера. Теорія функціонала густини розглядає взаємодію між кожною молекулою і середнім потенціальним полем, створеним іншими молекулами.

Фундаментальною змінною у теорії функціонала густини є густина молекулярного поля як функція просторових координат, тоді як усі інші змінні, у тому числі й вільна енергія, є функціями густини. Ця теорія оцінює властивості критичних зародків з вільною енергією неоднорідної системи, що є однозначним функціоналом усередненої густини і його мінімум визначає термодинамічно стабільні стани за заданої температури. За заданого перенасичення пари функціонал має сідлову точку у просторі функцій, на яких він визначений. Розв'язком є профіль густини критичних ядер і вільна енергія або робота з його формування з нестабільної пари. Метод теорії функціонала густини ефективний для обчислень, дозволяє опрацювати складні системи, пов'язані з ядроутворенням в атмосфері. При використанні відповідного потенціалу взаємодії він може успішно застосовуватися для молекул пари речовин, що беруть участь у ядроутворенні, і визначає правильні температурні залежності для швидкості ядроутворення у парі води [19].

На відміну від інших теорій ядроутворення **теорема ядроутворення** не робить апіорних передобчислень швидкості ядроутворення й одержується прямо з першого принципу, тобто з рівності 0 похідної від вільної енергії Гібса по розміру ядра за його критичного розміру. Теорема ядроутворення забезпечує інформацію про молекулярний склад критичних ядер, якщо використовується з експериментальними вимірюваннями. Можна показати, що відношення логарифмів швидкості ядроутворення J і ступеня насичення пари S_{Ai} пов'язане з числом молекул i у критичному ядрі:

$$\left[\frac{\partial \ln J}{\partial \ln S_{Ai}} \right]_{T, Ai} = i + \delta$$

де $\delta = 2$ для ядроутворення в однокомпонентній парі і $\delta = 0 - 1$ для бінарного ядроутворення. Оскільки експериментально швидкість ядроутворення вимірюють часто за сталої температури, то тиск насичення пари теж сталий, і це

робить можливим замінити відношення тиску пари ядротвірної речовини до тиску насичення цієї ж речовини (тобто величину S_{A_i}) на тиск або концентрацію молекул цієї речовини.

Теорема ядроутворення є термодинамічним результатом, що пов'язує чутливість висоти бар'єра ядроутворення до змін логарифма концентрації ядротвірних молекул. Було показано, що теорема ядроутворення дає загальні співвідношення незалежно від спеціальних припущень у моделі ядроутворення і може бути застосована до критичних ядер будь-яких розмірів. Правильність цієї теорії була підтверджена на основі аргументів кінетики і статистичної механіки та розширена на мультикомпонентні системи води [19].

Вплив іонів на процеси ядроутворення та конденсації. В атмосфері загалом мають місце і гомогенні, і гетерогенні процеси. Зокрема, гетерогенна конденсація водяної пари в атмосфері відбувається у присутності твердих аерозольних частинок, причому за значно нижчого рівня перенасичення пари, ніж гомогенна. У випадку гомогенного ядроутворення кластери утворюються між молекулами самого газового середовища, тоді як у присутності іонів кластери формуються переважно навколо них, оскільки електростатична взаємодія між іонами і молекулами, що конденсуються, зменшує вільну енергію цього процесу. Збільшення швидкості утворення крапель рідини з перенасиченої пари у присутності іонів було показано експериментально, причому ця швидкість прямо пропорційна концентрації іонів, хоча й не залежить від їхніх хімічних властивостей [18]. Також було з'ясовано, що одночасна присутність негативних і позитивних іонів в одних речовинах однаково впливає на швидкість кластерування, тоді як в інших речовинах вона зростає лише у присутності іонів якогось одного заряду.

Іон, який є ядром кластера, створює поле центральних сил, що ускладнює випаровування молекул із нього, порівняно з незарядженим кластером. Через взаємне відштовхування іонів з однойменним зарядом і зазвичай низьку їхню концентрацію можна вважати, що кожен кластер містить лише один іон. Критичним розміром кластера при ядроутворенні є такий, за якого настає рівновага між кількістю приєднаних і втрачених молекул. Присутність іона у кластері впливає сильніше на швидкість втрати ним молекул, ніж на швидкість їхнього приєднання. Цей дисбаланс призводить до істотного зменшення критичних розмірів таких кластерів порівняно з однотипними кластерами без іона, оскільки зменшення швидкості втрати молекул означає, що рівновага між втратою та приєднанням молекул настане і за меншої швидкості їхнього приєднання, тобто за менших розмірів кластера. А це призводить до зменшення й коефіцієнта насичення пари відповідної речовини, за якого настає рівновага між приєднанням і втратою молекул, порівняно з коефіцієнтом насичення за відсутності іонів. Отже, іонізація молекул атмосфери призводить до зниження коефіцієнта насичення пари, за якого настає ядроутворення і таким чином впливає на швидкість цього процесу.

Спостережені дані про процеси ядроутворення в атмосфері. Сучасні засоби вимірювань розмірів аерозольних частинок дозволяють спостерігати за процесами ядроутворення в атмосфері. Ці прилади, що використовують методи мас-спектрометрії, вимірюють розподіл за розмірами як заряджених, так і нейтральних частинок із мінімальним діаметром приблизно 0.5 нм [29, 25, 30–32]. Однак унікальність таких приладів, а також й інші специфічні умови обмежують можливості виконання таких вимірювань, і число даних про швидкість утворення та зростання молекулярних кластерів у реальній атмосфері досі доволі обмежена. Вимірювання виконуються найчастіше у приземному шарі атмосфери, хоча й у різного типу середовищах, як в екологічно чистих, так і в урбанізованих регіонах.

Огляд результатів досліджень процесів зростання зародків у діапазоні розмірів 3–20 нм наведено у [23]. Вимірювання виконували як на земній поверхні, так і на різних висотах в атмосфері з літаків і повітряних куль, зокрема у вільній тропосфері, а також поблизу хмар. За географічним розподілом вимірювань – це ліси суб-антарктичної Лапландії, агрокультурна зона в Німеччині, прибережні зони навколо Європи, індустріально-урбаністичні регіони Північної Америки, тропічні ліси Амазонії. Головні висновки такі. Ядроутворення відбувається усюди в атмосфері в денний час, що вказує на центральну роль фотохімічних процесів. Ядроутворення відбувається впродовж усього року, в окремих місцевостях можливі сезонні варіації швидкості з максимумами як у теплу, так і в холодну пору року. Темпи зростання новоутворених частинок улітку вищі, ніж у холодну пору року, і вони істотно вищі у середніх широтах, ніж у полярних. Спостерігається очевидний зв'язок темпів ядроутворення із присутністю молекул сірчаної кислоти. Для швидкості утворення наночастинок із розмірами 3 нм одержані оцінки $\sim 0.01\text{--}10\text{ см}^{-3}\cdot\text{с}^{-1}$ у граничному шарі атмосфери (boundary layer). На урбанізованих територіях ця швидкість може перевищувати $100\text{ см}^{-3}\cdot\text{с}^{-1}$, а у прибережній зоні та в індустріальних викидах навіть $10^4\text{--}10^5\text{ см}^{-3}\cdot\text{с}^{-1}$. Типова швидкість зростання частинок у середніх широтах становить приблизно 1–20 нм/год, залежно від температури та концентрації пари конденсованих речовин, а у полярних широтах ця швидкість усього ~ 0.1 нм/год. Типовий середній час зростання частинок від 5 нм до 45 нм становить приблизно 8 год. Спостерігаються регіональні "спалахи" ядроутворення, що відбуваються впродовж усього дня більш-менш однорідно в масі повітря з розмірами порядку сотні кілометрів. Зокрема такі спалахи відбуваються в індустріальних плямах, що містять SO_2 .

Огляд спостережних даних щодо часової та просторової змінності концентрації в атмосфері, зокрема у нижній тропосфері, іонів і кластерів (субчастинок) із розмірами, меншими за 3 нм, і щодо швидкості їхнього формування та зростання подано у статті [25]. Наведені характеристики приладів, що використовуються для вимірювань цих параметрів. Ці прилади вимірюють мобільність (рухливість) іонів, за якими на основі відповідних кінетичних моделей визначають так званий масовий діаметр частинок, який ще називають об'ємним та/або мобільним діаметром [25, 29]. За зазначених розмірів частинок (чи субчастинок) набуває принциповості питання про розділення понять молекула (молекулярний кластер) і власне макроскопічна частинка. Згідно з [29] критерієм такого розділення є домінування пружних і непружних зіткнень між частинками. У випадку молекул і молекулярних кластерів з розмірами, не більшими 1.5 нм, домінує пружне зіткнення, тоді як між частинками з розмірами, що перевищують 2 нм, домінують непружні зіткнення.

Аналіз спостережних даних показав, що іони існують в атмосфері завжди, з концентрацією приблизно $200\text{--}2500\text{ см}^{-3}$, часом до 5000 см^{-3} [25]. Зазвичай концентрація іонів над океанами нижча через відсутність іонізованого радону. Також зменшенню вмісту іонів сприяє і висока концентрація аерозолів і хмар. Проте кожна спостережна станція характеризується своєю власною комбінацією джерел і стоків іонів. Загальний висновок полягає в тому, що хоча загалом іонні кластери починають зростати швидше і за нижчого рівня перенасичення пари ніж нейтральні, але частка частинок розмірами приблизно 2 нм, створених за участі (посередництва) іонів, становить не більше 10 % від утворених нейтральних частинок над урбанізованими територіями і прибережними зонами Європи. Спостереження

в Антарктиці підтвердили теорію про сприятливий вплив низької температури на утворення частинок за участі іонів. Загалом спостережень над процесами формування і зростання з іонів частинок до розмірів 2–3 нм було виконано мало. Оцінки швидкості формування частинок з розмірами 2 нм за участі іонів становлять $0\text{--}1.1\text{ см}^{-3}\cdot\text{с}^{-1}$, тоді як швидкість формування такого розміру частинок загалом – $0.001\text{--}60\text{ см}^{-3}\cdot\text{с}^{-1}$. Внесок частинок, сформованих за посередництва іонів, зростає у випадку зменшення темпів зростання загального числа частинок такого розміру.

Детальний аналіз вимірювань, виконаних на півдні Фінляндії між 14 березня і 16 травня 2011 р. у приземному повітрі, представлено у статті [30]. Вимірювалася сумарна концентрація нейтральних наночастинок й іонів разом із концентрацією газів (сірчана кислота, аміак, аміни, озон, двоокис сірки, окисли азоту, леткі органічні сполуки). Абсолютні похибки вимірювань становили приблизно 0.2 нм у розмірах і 10 % у швидкості ядроутворення. Концентрації наночастинок й іонів визначали окремо у шести піддіапазонах розмірів у межах 0.9–2.1 нм. У підсумку виявлено, що концентрація частинок, сформованих як нейтральні без участі іонів у всіх випадках, перевищувала концентрацію іонів і нейтральних частинок, сформованих унаслідок рекомбінації іонів. Також домінування нейтральних частинок над іонами було явним і впродовж періоду активного формування ядер із розмірами 3 нм і подальшого їхнього зростання. Максимум концентрації іонів наставав при розмірах до 1.5 нм, потім вона поступово зменшувалася при збільшенні розмірів частинок. Цей розмір відповідає розмірам стабільних іонних кластерів згідно з теорією ядроутворення, спричиненого іонами (ion-induced nucleation). Ці вимірювання показали, що динаміка суб-2-нм кластерів була зумовлена домінуванням нейтральних механізмів із малим впливом іонів, що збігається з висновками [25] для приземного шару атмосфери над континентами за різноманітних фізичних умов. Крім того, у всьому діапазоні мобільних розмірів, не більших за 2 нм, спостерігалася приблизно стала кількість нейтральних кластерів, що вказує на неперервне утворення нейтральних кластерів і їхнє зростання до 2 нм. При цьому концентрація цих кластерів була приблизно у 10 разів більшою, ніж концентрація аерозольних частинок із розмірами 3–12 нм.

Також у статті зазначено, що впродовж усього періоду досліджень відзначалися дні, коли спостерігалася підвищена концентрація кластерів і частинок й інтенсивність їхнього утворення та зростання (дні з активним ядроутворенням), усього приблизно половина з понад 60-ти спостережних днів [30]. У ці дні спостерігалась і підвищена концентрація молекул сірчаної кислоти. Формування кластерів і швидкість їхнього зростання впродовж доби у дні з активним ядроутворенням і без нього було дуже різним у різних піддіапазонах розмірів. Так, при розмірах кластерів <1.2 нм їхня концентрація впродовж доби була схожою у всі дні, з невеликим зростанням у денні години, а за більших розмірів концентрація кластерів у дні з активним ядроутворенням мала чіткий максимум у денні години, поблизу та після полудня, дещо відстаючи від часу максимуму концентрації молекул сірчаної кислоти. Максимальна концентрація кластерів із розмірами 1.9–2.1 нм у дні з активним ядроутворенням була приблизно у 50 разів вищою, ніж в інші дні. Концентрація кластерів швидко зменшувалась зі збільшенням їхніх розмірів. Швидкість зростання кластерів у дні з активним ядроутворенням становила приблизно 0.2, 0.9 і 2 нм/год у піддіапазонах розмірів <1.2 нм, 1.4–1.8 нм і 2–3 нм, відповідно. Ці результати приводять до висновку, що найдрібніші нейтральні кластери утворюються в атмосфері постійно, зі сталою швидкістю, але повільно зростають, унаслідок приєднання та втрати молекул, тоді як зі збільшенням розмірів збільшується і швидкість зростання, але зменшується концентрація кластерів.

Про зв'язок ядроутворення із фотохімічними процесами та кореляцію з концентрацією сірчаної кислоти свідчать і результати вимірювань швидкості ядроутворення в урбанізованому регіоні Китаю (м. Нанджінг, дельта р. Янцзи), що виконувались улітку, навесні й узимку, усього впродовж 90 діб у приземному шарі атмосфери в межах 15 м від поверхні [33]. Швидкість ядроутворення становила приблизно від $2.1\cdot 10^2\text{ см}^{-3}\cdot\text{с}^{-1}$ на початку розвитку явища ядроутворення до $2.5\cdot 10^3\text{ см}^{-3}\cdot\text{с}^{-1}$ поблизу полудня незалежно від сезону. У всіх випадках швидкість зростання частинок монотонно збільшувалась із їхнім розміром у діапазоні 1–3 нм, і досягала 25 нм/год. Очевидно, це узгоджується з наведеними вище результатами [23] для частинок дещо більшого розміру і свідчить про істотну роль антропогенного чинника у формуванні аерозольних частинок малих розмірів (наночастинок).

У зв'язку із впливом на ядроутворення та зростання аерозольних частинок таких атмосферних домішок, як сірчана кислота, аміак, аміни й інші органічні сполуки, становлять інтерес результати згаданого раніше експерименту CLOUD. Загалом на 2015 р. було виконано понад 300 вимірювань швидкості ядроутворення при мобільному діаметрі частинок 1.7 нм у діапазоні температур 208–298 К, за різних концентрацій молекул сірчаної кислоти й аміаку, під впливом іонізації і без неї [34]. Результати експериментів показують, що швидкість ядроутворення швидко зменшується зі зростанням температури. Іонізація й аміак сприяють ядроутворенню. При низьких температурах (208–223 К) бінарні кластери (вода + сірчана кислота) достатньо стабільні, якщо концентрація сірчаної кислоти достатня. При цьому іони не справляють істотного впливу на швидкість ядроутворення, а присутність аміаку хоча б на рівні pptv (parts per trillion of volume) істотно збільшує швидкість ядроутворення. З підвищенням температури (вимірювання при 248К) вплив іонів на ядроутворення у бінарній системі стає істотним, що пов'язано з високою швидкістю випаровування нейтральних кластерів, але на кластеризацію у потрійній системі (з аміаком) іонізація не впливає, оскільки молекули аміаку дуже ефективно стабілізують такі кластери. Проте при підвищенні температури до 278–292 К іони істотно сприяють кластеруванню як у бінарній, так й у трикомпонентній системі, зменшуючи швидкість випаровування кластерів. Отже, результати експериментів CLOUD приводять до висновку, що в чистій верхній тропосфері, де швидкість іонізації галактичними космічними променями висока, а вміст аміаку низький, домінує ядроутворення за участі іонів.

Проте експерименти в камері CLOUD показали також, що заряджені кластери, утворені за участі іонів, з часом нейтралізуються через рекомбінацію з іонами протилежного заряду. Найвища відносна концентрація заряджених кластерів спостерігалася при розмірах ≤ 1.5 нм, а при розмірах ≥ 2.5 нм понад 90 % кластерів вже були нейтральними [35]. Інакше кажучи, хоча кластери й утворюються за участі іонів, при зростанні до розмірів 2.5 нм і більше практично всі вони нейтралізуються. Порівняння цих даних із результатами спостережень у реальній атмосфері, виконаних у південній частині Фінляндії (дослідницька станція Університету Гельсінкі, поблизу Тампере) показало, що в реальній атмосфері концентрація і їхній внесок у ядроутворення ще нижчі, ніж у камері. Зазначені розбіжності потребують подальших досліджень для з'ясування їхніх причин [35].

Іонне ядроутворення в моделюванні атмосферних і кліматичних процесів. Оцінювання внеску у загальний вміст аерозолів у земній атмосфері частинок вторинного походження, тобто утворених з газів-прекурсорів

шляхом кластерування, виконується шляхом моделювання, і відповідні програмні модулі включаються до складу регіональних і глобальних моделей циркуляції атмосфери, змін клімату чи забруднення атмосфери. Огляд й оцінювання ефективності дванадцяти глобальних моделей для обчислення мікрофізичних характеристик аерозольних частинок можна знайти у Г. Манна [36]. Критерієм ефективності тут було порівняння промодельованого і визначеного зі спостережень розподілу аерозольних частинок за розмірами. Порівняння показало, що усереднені модельні результати добре узгоджуються зі спостережними, усередненими за рік по багатьох спостережних станціях, але для багатьох станцій були виявлені схожі систематичні відхилення. Зокрема, модельна концентрація аерозолів кумулятивної моди (accumulation mode, розміри частинок у межах приблизно 100–1000 нм) занижена взимку, а концентрація ядер Ейткена (Aitken) (розміри частинок у межах приблизно 10–100 нм) має тенденцію до завищення узимку та заниження влітку щодо спостережних даних. На високих північних широтах моделі значно занижують концентрацію і ядер Ейткена, і частинок кумулятивної моди. У граничному шарі атмосфери над океанами моделі загалом правильно відтворюють спостережні меридіональні зміни в розподілах частинок за розмірами, при домінуванні ядер Ейткена на високих широтах і зростанні концентрації кумулятивної моди при зниженні широти. Також при обчисленнях вертикального розподілу аерозолів в атмосфері моделі відтворюють пік сумарної концентрації частинок у верхній тропосфері відповідно до механізмів формування вторинних частинок, але мають тенденцію до завищення положення піка над Європою. Загалом мультимодельний усереднений ряд даних про розподіл частинок за розмірами і його зміни показують, що більшість моделей добре відтворюють мікрофізичні характеристики аерозольних частинок, але значний розкид цих даних вказує на те, що результати деяких моделей погано узгоджуються зі спостереженнями.

У зв'язку з ефектами космічних променів у земній атмосфері тут розглядаються окремі результати моделювання ролі іонізації у ядроутворенні в атмосфері. Автори [37] використали тривимірну модель загальної циркуляції атмосфери з розділом (підпрограмою) обчислень мікрофізичних характеристик аерозольних частинок для досліджень формування аерозолів шляхом бінарного гомогенного ядроутворення за участі пари води і сірчаної кислоти та за участі іонів у верхній тропосфері й у стратосфері. Обчислення виконувалися на основі класичної та кінетичної теорій ядроутворення. Моделювання показало, що швидкість ядроутворення за участі іонів у верхній тропосфері і нижній стратосфері на 25 % вища порівняно з бінарним ядроутворенням, обчисленим за кінетичною теорією, але різниця між швидкостями ядроутворення, обчисленими без іонів за класичною і кінетичною теоріями, становить майже два порядки величини. Також було встановлено, що концентрація ядер із розмірами, більшими за 10 нм, визначається переважно процесами коагуляції частинок. Коагуляція призводить до того, що розподіли частинок за розмірами стають ідентичними при використаних механізмах ядроутворення, і тому цей параметр не може бути діагностичним для встановлення типу ядроутворення. Порівняння модельних даних на висотах від тропопаузи до середньої стратосфери зі спостереженнями із супутника SAGE II (The Stratospheric Aerosol and Gas Experiment II; <https://www.nasa.gov/centers/langley/news/factsheets/SAGE.html>) показало, що вище 30 км виникають розбіжності між модельними і спостережними значеннями аерозольної екстинкції, які автори пояснюють впливом мікрметеоритів. Головний підсумок роботи [37] полягає в тому, що використана модель може прийнятно представляти процес ядроутворення у зазначеній сфері атмосфери за участі сульфатів, і що характеристики частинок зазначених розмірів не залежать від механізму ядроутворення.

Для досліджень зв'язку між потоком космічних променів і концентрацією ядер конденсації хмар (CCN – Cloud Condensation Nuclei) у діапазоні висот від земної поверхні до приблизно 80 км було використано глобальну хіміко-транспортну модель GEOS-Chem (www.geos-chem.org), створену у NASA [38]. Досліджувалася чутливість зв'язку між КП і CCN від параметрів моделі, таких як емісія первинних частинок, конденсація вторинних частинок із молекул органічних газів-прекурсорів і вплив іонів на швидкість зростання вторинних частинок. За допомогою спеціального модуля для обчислень мікрофізичних характеристик аерозольних частинок (TOMAS – the Two-Moment Aerosol Sectional microphysics model) моделювалися зміни розподілу частинок за розмірами в діапазоні розмірів від 1 нм до 10 мкм. При цьому обчислювали показник Ангстрема (AE – Ångström Exponent), інтегральний в усьому стовпі атмосфери в діапазоні спектру 340–440 нм і результати порівнювали з даними спостережень із сонячними фотометрами на 299 станціях мережі AERONET (<http://aeronet.gsfc.nasa.gov/>), кожна з яких мала понад тисячу вимірювань. Як з'ясувалося, модельні значення AE в середньому занижені щодо спостережних приблизно на 0.33, а концентрації частинок приблизно на 10 %. Очікувалося, що зміна швидкості ядроутворення за збільшення потоку космічних променів (тобто за зростання рахунку іонізації) має призводити до зменшення ефективного розміру частинок у стовпі атмосфери і, відповідно, до збільшення AE. Однак різниця між концентрацією усіх частинок з розмірами, що перевищували 80 нм, обчислена за зазначеною моделлю для мінімуму і максимуму сонячної активності (тобто для максимального і мінімального потоку ГКП), виявилася меншою ніж 0.2 %, а для усіх частинок із розмірами, більшими за 10 нм, меншою за 1 %. Відповідні зміни AE також виявилися нехтовно малими (< 0.015 для усіх регіонів земної кулі). Це свідчить, що й ефективний діаметр частинок не змінюється істотно зі зміною потоку КП унаслідок сонячної активності. Це означає, що вплив КП на CCN і хмарність у земній атмосфері через "іонно-аерозольний" механізм гаситься іншими механізмами надходження аерозолів. Проте автори зазначають, що ці результати не виключають можливості впливу КП на клімат Землі, оскільки тут дослідники тестували лише найімовірніші, на їхню думку, механізми такої взаємодії, хоча можливі й інші, як, наприклад, механізм впливу іонів на властивості аерозолів безпосередньо поблизу хмар (ion-aerosol near cloud mechanism). Однак стратегія такого тестування ще тільки створюється.

Вплив сонячної активності (а відповідно і змін потоку КП) на ядроутворення і формування CCN також оцінювався [39]. Для цього теж використовували модель GEOS-Chem, але з іншим модулем (APM – Advanced Particle Microphysics), що моделює ядроутворення та формування CCN у діапазоні розмірів 1.2–120 нм за участі іонів з урахуванням кінетичної конденсації органічних газів із низькою леткістю та їхнім подальшим окислюванням. Моделювання виконане для проміжку приблизно в один рік (жовтень 2005 – грудень 2006). Автори перевіряли, як може вплинути можлива зміна температури в земній атмосфері за зміни сонячної активності та потоку КП на ядроутворення і вміст ядер конденсації крапель (CCN) під дією космічних променів. Попереднє моделювання без таких температурних змін показало, що глобальна середня концентрація усіх частинок із розмірами, більшими

3 нм упродовж циклу сонячної активності в нижній тропосфері (висоти 0–3 км) змінюється приблизно на 1.91 %, а усіх частинок із розмірами більшими за 10 нм – на 1.36 %. Також глобально усереднена концентрація CCN при ступені перенасичення водяної пари 0.8, 0.4 і 0.2 % змінюється на 0.74, 0.54 і 0.43 % відповідно. Припускалося, що усереднена температура атмосфери змінюється на 0.2° впродовж циклу сонячної активності. Моделювання показало, що при цьому зміни зазначених параметрів у нижніх шарах тропосфери, де формуються так звані теплі хмари, збільшилися приблизно до 2.74, 1.95, 1.13, 0.84 та 0.67 %, відповідно. Встановлено також, що ці зміни зменшуються зі збільшенням розмірів частинок унаслідок коагуляції, а просторовий і сезонний розподіл амплітуди цих варіацій пов'язується з відповідним розподілом концентрації молекул газів-прекурсорів в атмосфері, які істотно впливають на темпи зростання нових утворених ядер до CCN.

Для оцінювання кліматичних ефектів від впливу іонів на формування аерозолів використовували також тривимірну глобальну модель атмосфери CAM5 (the Community Atmosphere Model version 5), створену в Національному центрі атмосферних досліджень США (<https://ncar.ucar.edu/community-resources/models>) [40]. Модель використовувалася зі спеціальним аерозольним модулем MAM3, що будує лог-нормальний розподіл частинок за розмірами для ядер Ейткена та частинок кумулятивної і крупнодисперсної мод. При цьому, крім бінарного гомогенного, за участі молекул сірчаної кислоти, й індукованого іонами ядроутворення у місці спостережень урахувалося переміщення аерозолів із повітряними потоками і надходження первинних частинок, а також конденсація молекул сірчаної кислоти і напівлетких (semi-volatile) органічних речовин на первинних частинках, коагуляція і вимивання частинок. Моделювання виконували для 2000–2006 рр. з урахуванням і без урахування іонізації, зокрема з темпом іонізації як під час мінімуму сонячної активності 1996 р. і максимуму 1989 р. Модельні обчислення показали, що при іонізації, унаслідок взаємного притягання негативних іонів і нейтральних молекул сірчаної кислоти, ядроутворення відбувається за приблизно удвічі меншої концентрації цих молекул, ніж це необхідно для бінарного гомогенного механізму. Проте при зростанні темпу іонізації приблизно на порядок сумарна концентрація частинок у всьому стовпі атмосфери збільшується лише приблизно удвічі. Вплив іонізації вищій у вільній тропосфері, ніж у приграничному шарі, головним чином унаслідок надходження сюди первинних частинок.

Порівняння результатів модельних обчислень із даними спостережень на 26 станціях показало, що в середньому по земній кулі модель недооцінює концентрацію ядер конденсації води (CCN) як для індукованого іонами, так і бінарного гомогенного ядроутворення приблизно на 21 і на 28 % відповідно. Це недооцінювання істотно більше для Європи, особливо в північних лісах, що може бути пов'язано із недостатнім урахуванням внеску малолетких органічних молекул. Також одержано, що порівняно з бінарним гомогенним ядроутворенням, індуковане іонами збільшує глобальну хмарність на 1.9 % але зменшує опади на 1.1 %, а вміст води у хмарах збільшується на 7.5 %. Вплив сонячної активності на концентрацію ядер конденсації води і на усереднений по земній кулі потік енергії сонячного випромінювання (т. зв. радіаційний форсинг) упродовж досліджуваного періоду виявився незначним, у середньому усього приблизно -0.02 Вт/м², хоча міжрічні зміни виявилися дещо більшими: від -0.18 до 0.17 Вт/м². Проте загалом за даними моделювання з CAM5+MAM3 у [40] зроблено висновок, що, оскільки іонізація істотно впливає на концентрацію молекул сірчаної кислоти, швидкість ядроутворення, концентрацію аерозолів і ядер конденсації водяної пари, на характеристики хмар та опади і, як наслідок, на радіаційний форсинг, створений хмарами, то іонізація атмосфери може стати важливим фізичним механізмом, що впливає на кліматичні зміни.

Висновки. Однією з найактуальніших наукових проблем сучасності є проблема з'ясування причин змін клімату на Землі. Однією з гіпотез є вплив зовнішніх космічних чинників, зокрема космічних променів галактичного походження. Встановлено, що ці промені є основним джерелом іонізації молекул у тропосфері. З іншого боку, фізичні дослідження таких елементарних частинок високих енергій показали, що за умов достатньої перенасиченості пари води й інших речовин іони стають центрами конденсації цієї пари у краплі рідини. Аналогічні процеси конденсації водяної пари на аерозольних частинках в атмосфері призводять до утворення хмар, які є одним із головних чинників метеорологічних процесів й у значній мірі впливають на клімат у регіональному і глобальному масштабах. Ці факти були покладені в основу зазначеної гіпотези про можливий вплив космічних променів на умови конденсації пари і, як наслідок, на кількість і фізичні властивості хмар та на клімат. Проте досі результати пошуків тісного зв'язку між змінами потоку космічних променів під впливом сонячної активності (т. зв. явища Форбуша) та станом хмарності в атмосфері мають низький рівень достовірності, суперечливі, і є предметом наукових дискусій. Головною проблемою є пошук відповідних фізичних механізмів, які забезпечували б в атмосферних умовах можливість формування під дією космічних променів аерозольних частинок у достатній кількості та їхнє зростання із достатньою швидкістю до розміру крапель у хмарах, щоб пояснити спостережувані характеристики хмар.

Огляд відомих досі механізмів формування аерозольних частинок в атмосфері під впливом космічних променів та відповідних теорій показав, що побудовані досі відповідні математичні моделі ще недостатньо досконалі, щоб з адекватною точністю відтворити зазначені процеси утворення частинок і їхню роль у формуванні хмар. З іншого боку, кількість спостережених даних, особливо у верхніх шарах атмосфери, та їхня точність також ще не дають повних кількісних характеристик параметрів, що визначають вплив космічних променів на процеси ядроутворення та на характеристики утворюваних таким шляхом аерозольних частинок і хмар. Із цих причин механізми і вплив ГКП на характеристики атмосфери недостатньо повно відтворюються при моделюванні атмосферних процесів та клімату.

Однак як спостереження, так і моделювання показують, що КП є лише одним із чинників, що визначають процеси утворення аерозольних частинок у земній атмосфері. Важливими чинниками є й інші складові атмосфери, такі як сірчана кислота, аміак та інші органічні сполуки, які надходять в атмосферу як від природних джерел (вулкани, рослинність, тварини, океанічний планктон), так й унаслідок антропогенних викидів. Зважаючи на це, ядроутворення внаслідок іонізації повітря КП може мати більший чи менший вплив на вміст аерозолів в атмосфері залежно від багатьох умов, що впливають на вміст зазначених атмосферних домішок, але поки-що внесок цього механізму оцінюється не більшим за 10 %. Як теоретичні дослідження, так і спостереження та моделювання показують, що космічні промені впливають як на умови конденсації пари й інших газів і на швидкість утворення аерозолів, так і на фізичні та хімічні властивості утворюваних аерозолів. Насамперед при інтенсивному ядроутворенні слід очікувати їхнього впливу на розподіл аерозолів і водяних крапель за розмірами. Кількісні оцінки такого впливу одержані шляхом мо-

делювання зазначених вище процесів для умов у реальній атмосфері (див. напр. [20–22, 36–38, 40]). Зокрема результати моделювання вказують, що ядроутворення за участі іонів найважливіше в нижній атмосфері, зокрема й у нижній тропосфері аж до граничного шару включно, де присутня здатна до ефективної конденсація пара такої речовини, як сірчана кислота. Також спостереження і моделювання показують, що наслідком іонізації повітря є збільшення відносного вмісту дрібнодисперсних частинок із розмірами порядку десятків нанометрів (ядра Ейткена) в інтегральному стовпі атмосфери розподілу аерозолів за розмірами. Отже, розподіл частинок за розмірами – характеристика аерозолів, яка у принципі може бути визначена за даними дистанційних спостережень, і яка може бути використана для оцінок впливу космічних променів на оптичні характеристики аерозольного шару у місці спостережень. Проте при зростанні ядер до розмірів понад 10 нм унаслідок коагуляції, розподіли частинок за розмірами стають ідентичними за різних механізмів ядроутворення, і тому цей параметр не дозволяє встановити тип ядроутворення [37]. Однак, оскільки спостереження та моделювання показують, що найімовірнішою умовою утворення зародків і зростання їх до розмірів аерозольних частинок є присутність в атмосфері достатньої кількості молекул сірчаної кислоти, то її вміст в аерозольних частинках має впливати на такі їхні оптичні характеристики, як показник заломлення, альbedo однократного розсіювання і фазову функцію. Ці параметри є основними при моделюванні параметрів аерозольних частинок для аналізу даних дистанційних оптичних спостережень наземними [41, 42] та космічними засобами [43–45]. Зокрема, краплі сірчаної кислоти мають дуже мале значення уявної частини комплексного показника заломлення і тому високе альbedo однократного розсіювання, особливо у короткохвильовій частині оптичного спектру, порівняно із частинками іншого походження, наприклад ґрунтового пилу чи диму. Отже, малі розміри (~ 0.1 мкм і менші) і високі значення альbedo одноразового розсіювання аерозольних частинок ($\approx 96\%$ і більше) за дуже малих значень уявної частини комплексного показника заломлення свідчать про найімовірніше їхнє походження унаслідок гетеромолекулярного кластерування пари сірчаної кислоти, найчастіше – з водяною паром, згідно з наведеними вище механізмами. А для оцінювання впливу КП на вміст і динаміку аерозолів за дистанційними дослідженнями необхідно виявляти та кількісно оцінювати внесок в аерозольну спектральну оптичну товщину (AOT) найдрібніших частинок – ядер Ейткена, розміри яких становлять приблизно 10–100 нм. Сучасні засоби дистанційних досліджень, такі як сонячні фотометри мережі AERONET, загалом дозволяють одержувати достовірні дані щодо розподілу частинок за розмірами, який визначається з вимірювань спектральної AOT [31]. Поки-що стандартний алгоритм AERONET розв'язування відповідної оберненої задачі обмежується мінімальним розміром частинок у 50 нм [42], але удосконалення фотометрів й алгоритмів обробки даних загалом спонукає і до розширення діапазону визначуваних розмірів аерозольних частинок.

Список використаних джерел

1. Dorman L.I. Cosmic rays in the Earth's atmosphere and underground / L.I. Dorman. – N. Y., 2004.
2. Energetic Particle Influence on the Earth's Atmosphere / I.A. Mironova, K.L. Aplin, F. Arnold, G.A. Bazilevskaya et al. // *Space Sci Rev.* – 2015. – Vol. 194. – P. 1–96.
3. Kirkby J. Cosmic Rays and Climate / J. Kirkby // *Surveys in Geophysics.* – 2007. – Vol. 28. – P. 333–375.
4. Influence of Galactic Cosmic Rays on atmospheric composition and dynamics / M. Calisto, I. Usoskin, E. Rozanov and T. Peter // *Atmos. Chem. Phys.* – 2011. – Vol. 11. – P. 4547–4556.
5. Dorman L.I. Cosmic rays and space weather: effects on global climate change / L.I. Dorman // *Ann. Geophys.* – 2012. – Vol. 30. – P. 9–19.
6. Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change / T.F. Stocker, D. Qin, G.-K. Plattner, M. Tignor et al. (eds.). – Cambridge; N. Y., 2013.
7. Aerosols, their direct and indirect effects / J.E. Penner, M. Andreae, H. Annegarn et al. // *Climate Change 2001: The Scientific Basis. Contribution of Working Group I Third Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change* / eds. J.T. Houghton, Y. Ding, D.J. Griggs et al. – Cambridge; N. Y., 2001. – P. 289–347.
8. Changes in atmospheric constituents and in radiative forcing / P. Forster, V. Ramaswamy, P. Artaxo et al. // *Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change* / S. Solomon, D. Qin, M. Manning et al. – Cambridge; N. Y., 2007. – P. 129–234.
9. Clouds and Aerosols / O. Boucher, D. Randall, P. Artaxo et al. // *Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change* / T.F. Stocker, D. Qin, G.-K. Plattner et al. (eds.). – Cambridge; N. Y., 2013. – P. 571–657.
10. Svensmark H. Cosmic ray decreases affect atmospheric aerosols and clouds / H. Svensmark, T. Bondo and J. Svensmark // *Geophys. Res. Lett.* – 2009. – Vol. 36. – P. L15101.
11. Sudden cosmic ray decreases: No change of global cloud cover / J. Calogovic, C. Albert, F. Arnold et al. // *Geophys. Res. Lett.* – 2010. – Vol. 37. – P. L03802.
12. Atmospheric data over a solar cycle: no connection between galactic cosmic rays and new particle formation / M. Kulmala, I. Riipinen, T. Nieminen et al. // *Atmos. Chem. Phys.* – 2010. – Vol. 10. – P. 1885–1898.
13. Cosmic rays, cloud condensation nuclei and clouds – a reassessment using MODIS data / J.E. Kristjansson, C.W. Stjern, F. Stordal et al. // *Atmos. Chem. Phys.* – 2008. – V. 8. – P. 7373–7387.
14. The response of clouds and aerosols to cosmic ray decreases / J. Svensmark, M.B. Enghoff, N. Shaviv and H. Svensmark // *J. Geophys. Res. Space Physics.* – 2016. – Vol. 121. – P. 8152–8181.
15. Results from the CERN pilot CLOUD experiment / J. Duplissy, M.B. Enghoff, K.L. Aplin et al. // *Atmos. Chem. Phys.* – 2010. – Vol. 10. – P. 1635–1647.
16. Role of sulphuric acid, ammonia and galactic cosmic rays in atmospheric aerosol nucleation / J. Kirkby, J. Curtius, J. Almeida, E. Dunne et al. // *Nature.* – 2011. – Vol. 476. – P. 429–435.
17. Evolution of particle composition in CLOUD nucleation Experiments / H. Keskinen, A. Virtanen, J. Joutsensaar et al. // *Atmos. Chem. Phys.* – 2013. – Vol. 13. – P. 5587–5600.
18. Seinfeld J.H. Atmospheric chemistry and physics: from air pollution to climate change / J.H. Seinfeld // *Pandis Atmospheric chemistry and physics: from air pollution to climate change.* – N. Y., 2006.
19. Zhang R. Nucleation and Growth of Nanoparticles in the Atmosphere / R. Zhang, A. Khalizov, L. Wang, M. Hu et al. // *Chem. Rev.* – 2012. – Vol. 112. – P. 1957–2011.
20. Harrison R.G. Ion-aerosol-cloud processes in the lower atmosphere / R.G. Harrison, K.S. Carslaw // *Reviews of Geophysics.* – 2003. – Vol. 41, № 3. – P. 1–26.
21. Arnold F. Atmospheric aerosol and cloud condensation nuclei formation: a possible influence of cosmic rays? / F. Arnold // *Space Science Reviews.* – 2006. – Vol. 125. – P. 169–186.
22. Yu F. Ion-mediated nucleation in the atmosphere: Key controlling parameters, and look-up table / F. Yu // *Journal of Geophysical Research.* – 2013. – Vol. 115. – P. D03206-1–D03206-12.
23. Formation and growth rates of ultrafine atmospheric particles: a review of observations / M. Kulmala, H. Vehkamäki, T. Petäjä, M. Dal Maso et al. // *J. Aerosol Sci.* – 2004. – Vol. 35. – P. 143–176.
24. Kulmala M. On the formation and growth of atmospheric nanoparticles / M. Kulmala and V.-M. Kerminen // *Atmos. Res.* – 2008. – Vol. 90. – P. 132–150.

25. Atmospheric ions and nucleation: a review of observations / A. Hirsikko, T. Nieminen, S. Gagne et al. // *Atmos. Chem. Phys.* – 2011. – Vol. 11. – P. 767–798.
26. Сивухин Д.В. Общий курс физики / Д.В. Сивухин. – М., 1975. – Т. 2.
27. Laidler K. Development of transition-state theory / K. Laidler, C. King // *The Journal of Physical Chemistry.* – 1983. – Vol. 87. – P. 2657–2664.
28. Kästner J. Umbrella sampling / J. Kästner // *WIREs Computational Molecular Science*, 2011. – Vol.1. – P. 932–942.
29. Tammet H. Size and mobility of nanometer particles, clusters and ions / H. Tammet / *J. Aerosol Sci.* – 1995. – Vol. 26, No. 3. – P. 459–475.
30. Direct Observations of Atmospheric Aerosol Nucleation / M. Kulmala, J. Kontkanen, H. Junninen et al. // *Science.* – 2013. – Vol. 339. – P. 943–946.
31. How to reliably detect molecular clusters and nucleation mode particles with Neutral cluster and Air Ion Spectrometer (NAIS) / H.E. Manninen, S. Mirme, A. Mirme et al. // *Atmos Meas Tech.* – 2016. – Vol. 9. – P. 3577–3605.
32. On the accuracy of ion measurements using a Neutral cluster and Air Ion Spectrometer / R. Wagner, H.E. Manninen, A. Franchin et al. // *Boreal Environment Research*, 2016. – Vol. 21. – P. 230–241.
33. Nucleation and growth of sub-3nm particles in the polluted urban atmosphere of a megacity in China / H. Yu, L. Zhou, L. Dai et al. // *Atmos. Chem. Phys.* – 2016. – Vol. 16. – P. 2641–2657.
34. Experimental particle formation rates spanning tropospheric sulfuric acid and ammonia abundances, ion production rates, and temperatures / A. Kürten, F. Bianchi, J. Almeida et al. // *J. Geophys. Res. Atmos.* – 2016. – Vol 121. – P. 12,377–12,400.
35. The role of ions in new particle formation in the CLOUD chamber / R. Wagner, C. Yan, K. Lehtipalo, J. Duplissy // *Atmos. Chem. Phys.* – 2017. – V. 17. – P. 15181–15197.
36. Intercomparison and evaluation of global aerosol microphysical properties among AeroCom models of a range of complexity / G.W. Mann, K.S. Carslaw, C.L. Reddington, K.J. Pringle // *Atmos. Chem. Phys.* – 2014. – Vol. 14. – P. 4679–4713.
37. Microphysical simulations of new particle formation in the upper troposphere and lower stratosphere / J.M. English, O.B. Toon, M.J. Mills, and F. Yu. // *Atmos. Chem. Phys.* – 2011. – Vol. 11. – P. 9303–9322.
38. Cosmic rays, aerosol formation and cloud-condensation nuclei: sensitivities to model uncertainties / E.J. Snow-Kropla, J.R. Pierce, D.M. Westervelt and W. Trivittayanurak // *Atmos. Chem. Phys.*, 2011. – Vol. 11. – P. 4001–4013.
39. Yu F. Effect of solar variations on particle formation and cloud condensation nuclei / F. Yu and G. Luo // *Environ. Res. Lett.* – 2014. – Vol. 9. – P. 045004 (7pp).
40. Indirect radiative forcing by ion-mediated nucleation of aerosol / F. Yu, G. Luo, X. Liu, R. C. Easter // *Atmos. Chem. Phys.* – 2012. – Vol. 12. – P. 11451–11463.
41. AERONET – a federated instrument network and data archive for aerosol characterization / B.N. Holben, T.F. Eck, I. Slutsker et al. // *Remote Sensing of Environment.* – 1998. – V. 66. – P. 1–16.
42. A flexible inversion algorithm for retrieval of aerosol optical properties from Sun and sky radiance measurements / O. Dubovik and M.D. King // *J. Geophys. Res.* – 2000. – V.105. – P. 20,673–20,696.
43. Remote Sensing of Tropospheric Aerosols from Space: Past, Present, and Future / M.D. King, Y.J. Kaufman, D. Tanre et al. // *Bulletin of the American Meteorological Society.* – 1999. – Vol. 80, № 11. – P. 2229–2259.
44. Atmospheric Aerosol Monitoring from satellite Observations: A History of Three Decades / K.H. Lee, Z. Li, Y.J. Kim et al. // *Atmospheric and Biological Environmental Monitoring* / Y.J. Kim et al. (eds.). – Springer, 2009. – P.13–38;
45. The inter-comparison of major satellite aerosol retrieval algorithms using simulated intensity and polarization characteristics of reflected light / A.A. Kokhanovsky, J.L. Deuze, D.J. Diner et al. // *Atmos. Meas. Tech.* – 2010. – V. 3. – P. 909–932.

Надійшла до редколегії 20.04.18

В. Данилевский, канд. физ.-мат. наук

Астрономическая обсерватория Киевского национального университета имени Тараса Шевченко, Киев

КОСМИЧЕСКИЕ ЛУЧИ И АЭРОЗОЛИ В ЗЕМНОЙ АТМОСФЕРЕ

Одной из гипотез для объяснения изменений земного климата является влияние внешних космических факторов, таких как космические лучи галактического происхождения, которые являются основным источником ионизации молекул в тропосфере. Известно, что при условии достаточной перенасыщенности пара воды и других веществ ионы становятся центрами конденсации этого пара в капли жидкости и образования аэрозольных частиц. Конденсирование водяного пара на аэрозольных частицах в атмосфере приводит к образованию облаков, которые являются одним из главных факторов метеорологических процессов и в значительной степени влияют на климат в региональном и глобальном масштабах. Эти факты были положены в основу гипотезы про возможное влияние космических лучей на количество и физические свойства облаков и на климат. Однако до сих пор результаты поисков тесной связи между изменениями потока космических лучей под влиянием солнечной активности (так называемые явления Форбуша) и состояния облачности в атмосфере имеют низкий уровень достоверности, противоречивы и являются предметом научных дискуссий. Главная проблема – поиск соответствующих физических механизмов, которые могли бы обеспечить в атмосферных условиях достаточную эффективность формирования аэрозольных частиц под действием космических лучей, чтобы объяснить наблюдаемые характеристики облаков. В статье рассмотрены и проанализованы известные на данный момент механизмы образования молекулярных кластеров и их роста до размеров аэрозольных частиц в земной атмосфере и роль в них ионов, которые создаются космическими лучами. Также приведен обзор наблюдательных данных об эффективности ядрообразования и роста аэрозольных частиц в атмосфере, вклад ионов и модельных оценок влияния этих процессов на динамику атмосферы и климатические параметры. Сделаны выводы о влиянии ядрообразования на оптические характеристики аэрозольных частиц и возможность дистанционных наблюдений явлений ядрообразования.

Ключевые слова: космические лучи, земная атмосфера, ионизация, ядрообразование, аэрозоли.

V. Danylevsky, Ph. D.

Astronomical Observatory of Taras Shevchenko National University of Kyiv, Kyiv

COSMIC RAYS AND AEROSOLS IN THE TERRESTRIAL ATMOSPHERE

Galactic cosmic rays are considered as one of the external force influencing the Earth's climate change. The cosmic rays are the main cause of the troposphere ionization. Ions are considered as one of the factors that participates in producing of the aerosol particles and cloud condensation nuclei, when the supersaturation level of the water vapor or/and other atmosphere constituents vapor is sufficient. Aerosols are present throughout the atmosphere and affect Earth's climate directly through backscattering of sunlight and indirectly by altering cloud properties. Both effects are known with considerable uncertainty only, and translate into even bigger uncertainties in future climate predictions. Whereas disputable, the idea is discussed by the scientists that variations in galactic cosmic rays closely correlate with variations in atmospheric cloud cover and therefore constitute a driving force behind aerosol-cloud-climate interactions. A lot of studies were performed to validate or disprove the connection between cosmic ray's variation (e.g. the Forbush events) and changes of the aerosol content and properties in the atmosphere, cloud cover and properties and other climate parameters, but results are controversial. The enhancement of atmospheric aerosol particle formation by ions generated from cosmic rays was proposed as a physical mechanism explaining this correlation. But the main problem is to find the appropriate physical model which allows to calculate correctly the ion concentrations, nucleation and aerosol particles rate and cosmic rays intensity. Aerosol particle formation occurs in two stages: nucleation to form a critical nucleus and subsequent growth of the critical nucleus to a larger size (>2 – 3 nm) that competes with removal of the freshly nucleated nanoparticles by coagulation with pre-existing aerosols. The most used nucleation and particle growth theories are reviewed and analyzed in the article. The base of the theories is follow. Nucleation is generally defined as creation of molecular embryos or clusters prior to formation of a new phase during the transformation of vapor → liquid → solid. This process is characterized by a decrease in both enthalpy and entropy of the nucleating system. A free energy barrier is often involved and needs to be surmounted before transformation to the new phase becomes spontaneous. Another limitation in the nucleation and growth of atmospheric nanoparticles lies in significantly elevated equi-

librium vapor pressures above small clusters and nanoparticles, also known as the Kelvin (curvature) effect, which considerably restricts growth of freshly nucleated nanoparticles. Ions are capable, under certain conditions, of suppressing or even removing the barrier to nucleation in embryonic molecular clusters of water. But results of the theories are very uncertain so far.

Results of the observations of the nucleation and particles formation as well as the special CLOUD experiment results are reviewed and analyzed in the article. The molecular clusters and nuclei can not be observed by remote sensing techniques like sun-photometers, lidars or satellite instruments. The in-situ measurements of the nucleation concentration and particles growth rate are performed in the certain sites only. The observations and experiments revealed the important influence of the trace gases and organic molecules on the nucleation and particle growth rate. Sulphuric acid, ammonia, amines, and oxidised organics play a crucial role in nanoparticle formation in the atmosphere competing with ion-mediated mechanism. Saturation pressure of the sulphuric acid and organics vapors at the typical atmospheric conditions is much lower than for water vapor and at typical atmospheric concentration they are capable of suppressing the nucleation barrier. Nucleation with ions started earlier and run faster but the nucleus with sizes ≥ 3 nm more than 90 % of clusters are neutral. Ion-mediated mechanism can dominate when sulphuric acid and organic molecules concentration is low. But more observations in the different atmosphere layers and locations and experiments at different conditions is required to better understanding the ion-mediated nucleation in the atmosphere.

Nucleation contribution to the aerosol content and properties in the terrestrial atmosphere is also simulated by the special modules included to the regional and global models of the atmosphere and climate, e.g. GEOS-Chem and CAM5. Comparison of the simulation and observations has showed that in general the averaged model results are in good agreement with observational data at some sites but same biases were revealed at some sites too. It requires the further analysis and models developments. Also ion-mediated mechanism contribution was also estimated by the simulation not more than 10%.

Analysis of the observations and models results in the article showed that cosmic rays influencing the aerosol formation also influence the microphysical and optical properties of the particles. First of all particles size distribution is influenced by nucleation mechanism and relative content of the Aitken nuclei increases. Also sulphuric acid can influence the particle refractive index increasing the single-scattering albedo of the aerosols. Modern remote sense technique such as the AERONET sun-photometers can measure the spectral AOD and sky radiance with high accuracy and the reliable size distribution, refractive index and single-scattering albedo averaged over atmosphere column can be determined from that observations, but the AERONET inversion algorithm has to be developed to obtain the particles size finer than 50 nm.

Key words: cosmic rays, the terrestrial atmosphere, ionization, nucleation, aerosols.

УДК 524.8

В. Жданов, д-р фіз.-мат. наук, проф.,
О. Федорова, канд. фіз.-мат. наук,
М. Хелашвілі, студ.

Астрономічна обсерваторія Київського національного університету ім. Тараса Шевченка, Київ

ФОРМА МІКРОЛІНЗОВАНОЇ ЛІНІЇ ВІД АКРЕЦІЙНОГО ДИСКУ В МОДЕЛІ ЛІНІЙНОЇ КАУСТИКИ

Форма спектральних ліній типу флуоресцентної Fe K α в рентгенівському випромінюванні активних ядер галактик (АЯГ) відображає характеристики центральних частин цих об'єктів. Ці лінії можуть формуватися в акреційних дисках навколо надмасивних чорних дір у центрах АЯГ. Якщо ж зазначене АЯГ є джерелом випромінювання у складі гравітаційно-лінзової системи, де присутні процеси мікролінзування, то профіль лінії несе важливу інформацію не тільки про параметри диску, але й про параметри гравітаційно-лінзової системи. У статті проведено моделювання мікролінзованих профілів спектральних ліній, що формуються в акреційних дисках АЯГ. Розрахунки здійснено у наближенні лінійної каустики. Часова залежність профілю лінії визначається кутом нахилу каустики до осі диску, що дає принципову змогу оцінити орієнтацію каустики.

Ключові слова: гравітаційне мікролінзування, релятивістські профілі спектральних ліній, активні ядра галактик.

Вступ. Рентгенівське випромінювання активних ядер галактик (АЯГ) іде від центральної частини, найближчої до "центральної машини" – так у літературі часто називають зону, найближчу до центральної чорної діри АЯГ, де розташовані акреційний диск і газо-пиловий тор. Над диском може розміщуватися гаряча корона, випромінювання якої відбивається від диску та тору і, зокрема, породжує флуоресцентні лінії. Якщо зазначене АЯГ належить до гравітаційно-лінзової системи [1–3], де присутні процеси мікролінзування, то ці лінії також зазнають його впливу, який у цьому випадку виявляє себе у спотворенні їхніх профілів [1].

Люмінесцентні лінії заліза (Fe K) та інших елементів (наприклад кобальту або нікелю) у спостережуваних спектрах зустрічаються як вузькі, так і широкі, або навіть у комбінаціях. "Вузький" варіант зазвичай має ширину порядку сотень км/с, принаймні, до 1000 км/с. Вузькі лінії виникають досить далеко від центральної зони, у газо-пиловому торі (змінність таких ліній повільна), або в далеких від центру ділянках акреційного диску. Лінії, що виникають у внутрішніх ділянках акреційного диску, завдяки суттєвому впливу як ефекту Доплера, так і гравітаційного червоного зміщення у гравітаційному полі центральної чорної діри, мають сильно несиметричний профіль, витягнутий у бік менших частот і більш пологий із цього боку. З боку більших частот профіль лінії різкіший та інтенсивніший [4].

На параметри спостережуваної лінії впливають спін чорної діри та нахил акреційного диску, що надає змогу визначити характеристики цієї системи. Для цього необхідно мати досить чіткі профілі ліній, що не завжди має місце. Необхідно також зауважити, що процедура розв'язання оберненої задачі визначення характеристик АЯГ спирається на певні модельні уявлення щодо форми диску, метрики простору часу, а також щодо розподілу яскравості по диску. Більш повне та точне визначення потребує додаткової інформації.

Цю нестачу інформації певною мірою можна компенсувати, якщо джерело ліній є членом гравітаційно-лінзової системи. Таких об'єктів небагато, але вони є. Наприклад, процеси мікролінзування спостерігалися в АЯГ PKS 1830-211 [5], B0218+357 [6], RX J1131-1231 і HE1104-1805 [7], Q2237+0305 [8] та ін. Гравітаційно-лінзова система є природним телескопом, що дозволяє "роздивитися" дрібні деталі джерела. Це неможливо зробити іншими методами на сучасному рівні роздільної здатності оптичних телескопів.

У статті ми моделюємо ефект спотворення профілю емісійних ліній із релятивістським профілем внаслідок впливу гравітаційного мікролінзування, для різних положень каустики гравітаційної мікролінзи щодо акреційного диску, із використанням наближення лінійної каустики.