Чукин В.В., Платонова А.С.

Кандидат физико-математических наук, доцент кафедры экспериментальной физики атмосферы; аспирант, кафедра экспериментальной физики атмосферы, Российский государственный гидрометеорологический университет

КРИСТАЛЛИЗАЦИИ ПЕРЕОХЛАЖДЕННЫХ КАПЕЛЬ

Кристаллизация переохлажденных капель в облаках может происходить в результате гомогенного и/или гетерогенного образования ледяных ядер. Основным механизмом при формировании облаков верхней тропосферы и нижней стратосферы ($T \leq -35°C$) является гомогенная кристаллизация переохлажденных капель. Скорость кристаллизации таких капель значительно увеличивается с понижением температуры. В нижней и средней тропосфере ($T \geq -35°C$) кристаллы льда появляются в основном за счет гетерогенного механизма. Для гетерогенного ядрообразования необходимо присутствие инородных частиц, так называемых ядер кристаллизации, которые значительно понижают энергетический барьер при образовании твердой фазы на поверхности инородных частиц, находящихся в объеме переохлажденных капель.

Многие атмосферные аэрозоли могут способствовать замерзанию переохлажденных капель, эффективность которых определяется их размером, концентрацией и поверхностными свойствами. Присутствие инородных частиц в переохлажденных каплях приводит к увеличению температуры замерзания капель. Учесть данные особенности инородных частиц позволяет такой параметр, как удельная поверхностная энергия α, который служит мерой энергетических затрат на образования частицы новой фазы. Наиболее благоприятные условия образования ледяных ядер

складываются на поверхностях частиц с низким значением удельной поверхностной энергии.

За последние несколько десятков лет было проведено достаточно большое количество экспериментов по скорости гомогенного ядрообразования [1, 155; 9; 13; 14; 18, 210]. Более ранние данные показали недостаточно точное согласование с теоретической зависимостью, что говорит об использовании в этих экспериментах недостаточно чистых образцов проб [2; 3; 10; 16].

Недавно Куп и другие [12] разработали термодинамическую модель для гомогенной кристаллизации водного раствора. Авторы показали, что гомогенное образование ледяных ядер в водных растворах зависит только от активности раствора a_w, которая является количественной мерой растворенных веществ в воде, а не от его природы.

Для расчета скорости гомогенного льдообразования нами предложена формула, которая одновременно учитывает влияние температуры и активности раствора воды на процесс образования кристаллов льда на поверхности инородных частиц внутри капли. Данная формула основана на классической теории ядрообразования [9; 13; 18, 207] и предположении о подобии зависимостей температуры кристаллизации и температуры плавления от активности водного раствора.

Результаты численного моделирования показали хорошее согласование с современными данными [9; 12; 14; 22], что говорит о возможности использования данной формулы в облачных моделях.

Последние исследования в области гетерогенного замерзания переохлажденных капель [5; 15; 19; 23] показали, что минеральные частицы могут служить активными ядрами кристаллизации, т.е. инициировать образование кристаллов при более высокой температуре, чем при гомогенном ядрообразовании. Также сравнительно недавно был проведен ряд экспериментов с участием таких инородных частиц, как сажа [6],

биологические частицы [4; 17; 21]. Лабораторные исследования, проводимые с биологическими частицами, показали, что капли начинают замерзать при значительно более высоких температурах, чем при контакте переохлажденной воды с другими ядрами кристаллизации. В частности, такие биологические аэрозольные частицы, как бактерии способствуют замерзанию переохлажденных капель при температуре -2°C [8; 20].

Для расчета скорости гетерогенного льдообразования нами предложена формула, аналогичная формуле для расчета скорости гомогенного ядрообразования [11; 18, 347]. Отличие заключается в учете уделенной поверхностной энергии, которая для каждого типа ядер кристаллизации имеет определенное значение.

Результаты численного моделирования показали хорошее согласование с данными экспериментов по кристаллизации переохлажденных капель растворов, содержащих инородные частицы, что дает возможность использования предлагаемой формулы для расчета скорости гетерогенного ядрообразования при численном моделировании процесса кристаллизации в облаках.

Литература

1. *Мейсон Б.Дж*/Пер. с англ. Г.Т. Никандоровой и В.С. Протопопова. Физика облаков. — Л.:Гидрометеоиздат, 1961.
2. *Broto F., Clausse D.* A study of the freezing of supercooled water dispersed within emulsions by differentional scanning calorimetry // Journal of Physical Chemistry. — 1976. — Vol. 9. — № 23. — P. 4251–4257.
3. *Butorin G. T and Skripov K. P.* Crysstallizaton of supercooled water // Soviet Phys. Crystallogr. — 1972. — № 17. — P. 322–326.
4. *Cantrell, W. and Robinson, C*. Heterogeneous freezing of ammonium sulfate and sodium chloride solutions by long chain alcohols // Geophysical research letters. — 2006. — Vol. 33. — L07802.

5. *Cziczo, D. J., P. J. DeMott, S. D. Brooks, et al*. Observations of organic species and atmospheric ice formation // Geophys. Res. Lett. — 2004. — Vol. 31 — L12116.
6. *DeMott, P. J.* An exploratory stuffy of ice nucleation by soot aerosols //Journal of applied meteorology. —1990. — Vol. 29. — P. 1072–1079.
7. *DeMott, P. J., Sassen, K., Poellot, M. R., et al.* African dust aerosols as atmospheric ice nuclei // Geophys.Res. Lett. — 2003. — Vol. 30(14) — 1732.
8. *Douglas G-S. and Steven E.L.* Bacterial ice nucleation: significance and molecular basis//The FASEB Journal. — 1993. — Vol. 7 — P. 1338–1343.
9. *Jeffery, C. A. and Austin, P. H.*: Homogeneous nucleation of supercooled water. Results from a new equation of state // Journal of Geophysical Research — 1997. — Vol. 102. — P. 25.269–25.279.
10. *Hagen D. E., Anderson R. J. and Kassner J. L.* Homogeneous freezing nucleation rates of measurements for small water droplets in an expansion cloud chamber // Journal of Atmos. Sci. — 1981. — № 38. — P. 1236–1243.
11. *Khvorostyanov, V., and Curry, J.A.* The Theory of Ice Nucleation by Heterogeneous Freezing of Deliquescent Mixed CCN. Part I: Critical Radius, Energy, and Nucleation Rate // J. Atmos. Sci. — 2004. — Vol. 61. — P. 2676–2691.
12. *Koop T., Luo B., Tsias A. and Peter T.* Water activity as the determinant for homogeneous ice nucleation in aqueous solution // Nature. — 2000. — P. 611–614.
13. *Kramer B., Hubner O., Vortisch H., Woste L. and Leisner T.* Homogeneous nucleation rates of supercooled water measured in single levitated microdroplets // Journal of Chemical Physics. — 1999. — Vol. 111. — № 14. — P. 6521–6527.

14. *Larson B. H. and Swanson B. D.* Experimental Investigation of the Homogeneous Freezing of Aqueous Ammonium Sulfate Droplets // Journal of Physical Chemistry A. — 2006. — Vol. 110. — № 5. — P. 1907–1916.
15. *Marcolli, C., Gedamke, S., Peter, T. and Zobrist, B.* Efficiency of immersion mode ice nucleation on surrogates of mineral dust // Atmos. Chem. Phys. — 2007. — Vol. 7. — P. 5081–5091.
16. *Massop S. C.* The freezing of supercooled water // Proc. Phys. Soc. — 1955. — Vol. B68. — № 1. — P. 193–203.
17. *Mohler,O., DeMott, P.J., Vali, G. and Levin, Z.* Microbiology and atmospheric processes: the role of biologica particles in cloud physics// Biogeosciences. — 2007. — P. 1059–1071.
18. *Pruppacher, H. R. and Klett, J. D.* Microphysics of Clouds and Precipitation, Springer Publications. — New York, 1997.
19. *Richardson, M. S., DeMott, P. J., Kreidenweis, S. M., et al.* Measurements of heterogeneous ice nuclei in the Western US in springtime and their relation to aerosol characteristics // J. Geophys. Res. — 2007. — Vol. 112. — P. 1065–1070.
20. *Vali, G., Christensen, M., Fresh, R. W., Galyan, L. R., Maki, L. R., and Schnell, R. C*. Biogenic Ice Nuclei. Part II: Bacterial Sources // J. Atmos. Sci. — 1976. — Vol. 33. — P. 1065–1070.
21. *von Blohn, N., Mitra, S.K., Dieh, K. and Borrmann, S.* The ice nucleating ability of pollen Part III: New laboratory studies in immersion and contact freezing modes including more pollen types //Atmospheric Research. —2005. — Vol. 78. — P. 182–189.
22. *Wood, S.E., Baker, M.B. and Swansona, B.D.*. Instrument for studies of homogeneous and heterogeneous ice nucleation in free-falling supercooled water droplets // Review of scientific instruments. — 2002. — Vol. 73. — P. 3988–3996.

23. *Zuberi B., Bertram A. K, Cassa C. A., Molina L. T. and Molina M. J.* Heterogeneous nucleation of ice in $(NH_4)_2SO_4$–H_2O particles with mineral dust immersions // Geophysical research letters. — 2002. — Vol. 29. — P. 142-1–142-4.