

Р.Ф. Рахимов, В.С. Козлов, Э.В. Макиенко

## Некоторые особенности формирования дисперсной структуры дымовых аэрозолей при термическом разложении хвойной древесины.

### 1. Вариации массы сжигаемых образцов

*Институт оптики атмосферы СО РАН, г. Томск*

Поступила в редакцию 19.11.2007 г.

Проведена серия дымовых экспериментов в большой аэрозольной камере (БАК) по изучению динамики изменения поляризационных характеристик дымовых аэрозолей, оценены их микроструктурные изменения в процессе релаксации и распада. Показано, что специфика формирования тонкодисперсной составляющей дымов зависит не только от массы хвойных образцов древесины, но и от продолжительности пребывания аэрозольно-газовой смеси внутри камеры термического разложения (КТР) (муфельной печи). С увеличением массы образцов увеличиваются «коагуляционные» потери мелких частиц радиусом  $< 0,2$  мкм. Активное формирование среднедисперсной фракции способствует более эффективной очистке воздушной среды от тонкодисперсных аэрозолей, в том числе и нанометрового диапазона. Частицы пиролизного дыма, генерируемые при небольших температурах разложения хвойных образцов древесины  $\sim 300$  °С, представляют собой преимущественно слабо поглощающие видимое излучение аэрозоли. Оценки показывают, что значения реальной части показателя преломления варьируют в интервале значений  $n \sim 1,52-1,58$ , при этом искомый минимум регулизирующего функционала обычно достигается при значениях мнимой части комплексного показателя преломления  $\chi \sim 0,001$ .

#### Введение

При термическом разложении биомассы от очагов лесных пожаров и возгораний торфяников в атмосферу выносятся тонкодисперсные аэрозоли и аэрозолеобразующие соединения (АОС) в аномально высоких концентрациях. В пожароопасные сезоны (май – сентябрь) в регионах, прилегающих к зоне бореальных лесов, рассеяние дымовых аномалий обычно протекает по сложным траекториям движения воздушных масс. По данным многолетних наблюдений в указанный период зафиксированы существенные вариации оптических параметров атмосферы, в том числе и с аномальными спектральными ходами коэффициента аэрозольного ослабления  $\beta_e$ ,  $\text{км}^{-1}$ , и, как следствие, характерная неустойчивость оптической погоды [1, 2].

Выносы продуктов термического разложения в регионах Западной Сибири достигают порой таких масштабов, что оказывают влияние на эффективность конвективного подъема аэрозольных фракций в свободную атмосферу [3]. Изучение специфики формирования микроструктуры и оптических свойств дымов давно является предметом аппаратных исследований [1–5].

Ранее в [6] основное внимание было уделено разработке методических вопросов организации лабораторных экспериментов в большой аэрозольной камере (БАК), методике калибровки спектрофелометра и вопросам синхронизации измеренных данных.

Серия экспериментов, выполненная параллельно, позволила изучить общую динамику изменения поляризационных характеристик дымовых аэрозолей, оценить некоторые микроструктурные изменения в процессе релаксации и распада. В ходе указанных экспериментов была установлена необходимость предварительной обработки результатов измерений, выделения оптимального временного масштаба синхронизации данных, привлекаемых для решения обратной задачи аэрозольного светорассеяния. Оценена допустимая погрешность измерений для получения информации о микроструктурных изменениях дымов. Оработана методика оценки среднеэффективного показателя преломления.

При анализе данных некоторых экспериментов было отмечено, что уровень накопления и эффективности стока дымовых частиц аккумулятивной фракции зависят от состояния среды, в которую они внедряются при выходе из камеры термического разложения (КТР) – муфельной печи. Поэтому в данной статье представлены результаты экспериментов, которые более детально характеризуют закономерности формирования спектра размеров дымовых аэрозолей при их переходе из КТР муфельной печи в БАК.

#### Методика исследования

Для оптической диагностики микроструктурных изменений в качестве исходной информации используются данные спектрофелометрических измерений

в контролируемых условиях поляризационных компонент коэффициента направленного светорассеяния древесных дымов  $\beta_i^p(\lambda)$  с помощью поляризационного нефелометра. Измерения проводятся на пяти углах рассеяния  $\theta = 15; 45; 110; 135; 165^\circ$ , девяти длинах волн в интервале  $\sim 0,44\text{--}0,69$  мкм. Таким образом, для решения обратной задачи светорассеяния и определения микроструктурных параметров дыма в одной из (условных) точек процесса изменения состояния дыма в эксперименте проводилось последовательное измерение 90 значений поляризационных компонент коэффициента направленного светорассеяния. Процесс измерения осуществлялся в автоматизированном режиме. Управление режимом регистрации параметров светорассеяния осуществлялось компьютером на основе разработанного алгоритма с пофайловым процессом накопления оптических данных в экспериментах разной направленности. Полный цикл измерений по углам и длинам волн составляет 8–9 мин, что требует применения методики синхронизации и сглаживания измеренных данных.

В обсуждаемых экспериментах с использованием БАК дымы генерировались сначала в КТР муфельной печи, представляющей форму параллелепипеда  $10 \times 16 \times 32$  см (объем  $\sim 5$  л).

При разложении древесины в режиме пиролиза доступ кислорода в зону прогрева ограничивался плотно закрытой дверцей муфельной печи. Чтобы исключить возможность возникновения пламени в КТР при высоких температурах ( $\sim 600^\circ\text{C}$  и выше), дверца муфельной печи закрывалась достаточно плотно. Поэтому дымовая смесь, прежде чем попасть из КТР муфельной печи в БАК через каналы пониженной мощности, задерживалась в КТР на некоторое время в зоне прогрева. Таким образом, продукты разложения взаимодействовали между собой не только при более высокой температуре, чем в БАКе, но и при более высокой концентрации частиц в аэрозольно-газовой смеси (АГС).

При пониженных температурах разложения ( $\sim 300^\circ\text{C}$ ) вероятность возникновения режима горения с пламенем существенно снижалась, и это позволяло использовать облегченный выход прогретой АГС из КТР в большую камеру, т.е. сокращать при необходимости время пребывания АГС внутри КТР. С увеличением мощности подачи дисперсной смеси из КТР в БАК уменьшалась и концентрация АГС в локальном объеме и в потоках, выносимых из КТР в БАК. Указанные особенности механизма генерации дисперсной смеси нашли свое отражение в качественном своеобразии восстановленных спектров размера дымовых аэрозолей.

## Обсуждение результатов

На рис. 1 показана трансформация микроструктуры дыма в процессе пиролиза при различных массах  $M$  разлагаемой древесины (сосны) и приведены оценки значений комплексного показателя преломления частиц по результатам обращения данных оптического эксперимента.

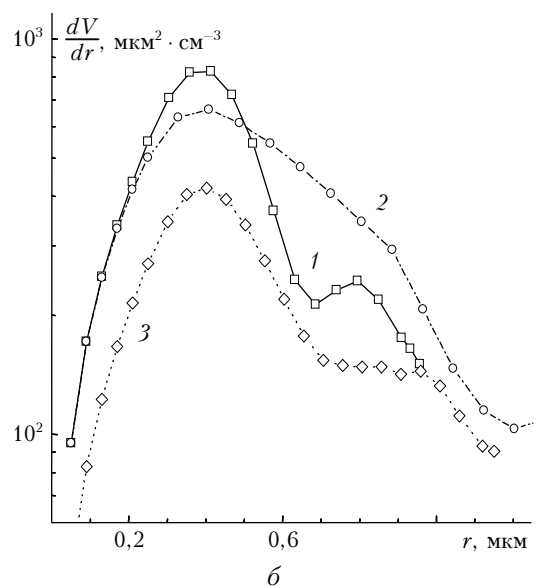
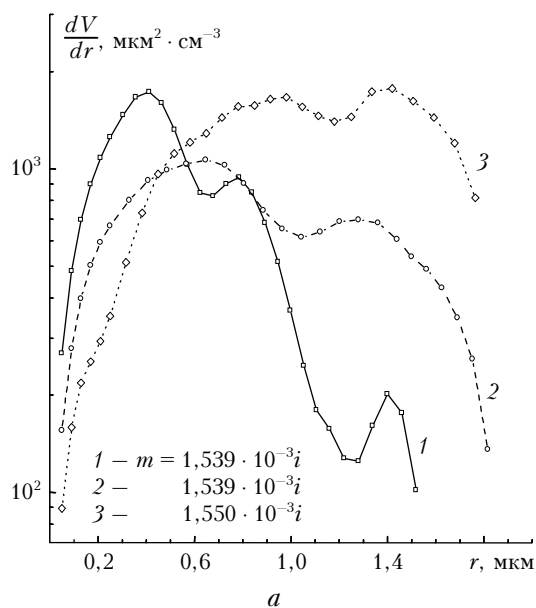


Рис. 1. Распределения объемов частиц по радиусам в дымах пиролиза: *a* — начальные (через  $\sim 25\text{--}30$  мин рассеяния в БАКе), кривая 1 —  $M = 250$ ; 2 — 500; 3 — 750 г; *б* — при тех же исходных массах (согласно нумерации кривых) через 15 (кривая 1); 12 (2) и 20 ч (3) от начала процесса

Видно, что увеличение массы хвойных образцов ведет (на начальном этапе) к расширению спектра размеров дымовых частиц, смещению правой границы спектра размеров частиц радиусом  $r_2$  до значений  $\sim 2$  мкм (рис. 1, *a*). Заметно увеличивается объемное содержание средне- и грубодисперсных частиц. В то же время доля мелких частиц ( $r < 0,15$  мкм) устойчиво снижается.

Такая трансформация распределения частиц по размерам согласуется с полученными ранее модельными оценками [7], из которых следует, что снижение относительного содержания мелких частиц ( $r \sim 0,05\text{--}0,15$  мкм) в составе анализируемых дымов может происходить в результате усиления интенсивности их перехода в среднелдисперсный интервал

размеров вследствие повышения эффективности процесса коагуляции.

С ростом массы древесных образцов внутри камеры термического разложения растет эмиссия аэрозолеобразующих соединений. Как следствие, при достаточно ограниченном объеме КТР повышается концентрация тонкодисперсной составляющей. С ростом концентрации частиц увеличивается эффективность процесса их коагуляции.

Активизация мелких частиц в процессе коагуляции ведет к их укрупнению, понижению относительного содержания аэрозолей в данном диапазоне размеров и возрастанию в смежном (среднедисперсном) диапазоне. В результате при переходе дисперсной смеси из КТР в БАК формируются дымы с пониженным содержанием тонкодисперсной составляющей ( $r < 0,1$  мкм). Сдвиг плотности распределения дымовых частиц по размерам в целом вправо (см. рис. 1, а) можно интерпретировать как следствие ограниченной мощности притока мелких дымовых частиц за счет коагуляции из состава сверхмелких  $r < 0,03 \div 0,05$  мкм.

Восстановленная по результатам обращения нефелометрических данных качественная картина трансформации спектра размеров дымовых частиц приводит к выводу, что пиролизный режим разложения древесины имеет недостаточную (для самосохранения формы спектра) эффективность генерации частиц нанометрового диапазона размеров ( $r \sim 0,005 \div 0,05$  мкм). В целом, рост массы образцов ведет к повышению концентрации дымовой смеси внутри КТР и способствует эффективному образованию более крупных частиц  $r \sim 0,4 \div 1,2$  мкм для  $M \sim 500$  г и  $\sim 1,2 \div 2,2$  мкм для  $M \sim 800$  г и более.

Из лабораторных экспериментов с дымами пиролиза следует также, что распределение дымовых частиц по размерам существенно зависит как от концентрации аэрозольно-газовой смеси, так и от продолжительности пребывания ее в концентрированном виде в локальном объеме КТР.

На последующих этапах выстаивания дымов (рис. 1, б), несмотря на достаточно существенные различия исходных спектров, более эффективное оседание наиболее крупных дымовых частиц на стенки камеры и в магистралях движения АГС ведет к сближению формы спектров. Остаточная фракция дымовых частиц для образцов разной массы во временной динамике все более локализуется в области размеров частиц  $0,2-0,6$  мкм, что видно из сравнения кривых 2 (12 ч) и 3 (20 ч) на рис. 1, б.

Временная динамика микроструктуры дыма в процессе пиролиза детально представлена на рис. 2 в изменениях распределений суммарного геометрического сечения частиц по радиусам, восстановленных по данным спектронефелометрических измерений.

В качестве примера в данном случае приведены результаты для термического разложения образца сосны большой массы ( $\sim 750$  г), что позволяет увидеть трансформацию микроструктуры дымового аэрозоля в широком интервале спектра размеров. В начальный период заполнения дымовой камеры в распределении  $dS/dr$  (кривая 1) виден дефицит

содержания мелких частиц, который восполняется в течение следующего часа (кривая 2). На последующих этапах выстаивания дыма в БАК (кривые 3, 4) спектр размеров в результате эффективного стока наиболее крупных частиц постепенно сужается. Частицы средне- и грубодисперсной фракций достаточно длительное время ( $\sim 20$  ч) прослеживаются по восстановленным спектрам, однако основной вклад в величину коэффициентов аэрозольного ослабления и рассеяния дают частицы  $r \sim 0,2-0,5$  мкм.

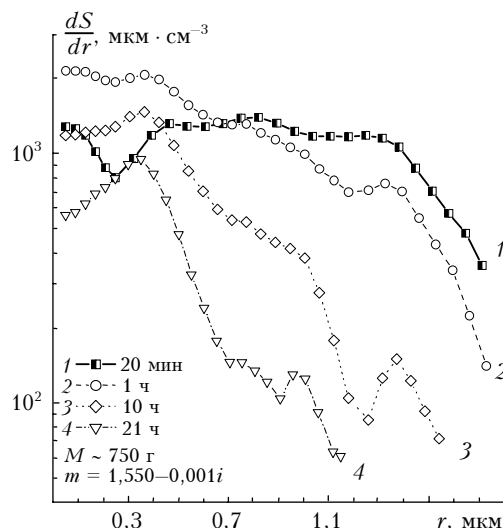


Рис. 2. Изменение плотности распределения суммарного сечения дымовых частиц  $dS/dr$  в течение первых 22 ч после пиролизного разложения хвойного образца древесины массой  $M = 750$  г

Несмотря на заметные различия условий обсуждаемых экспериментов по массе образцов (250, 500 и 750 г), продолжительности пребывания АГС внутри КТР, по начальным спектрам, оцениваемые значения комплексного показателя преломления (КПП)  $m$  дымовых частиц менялись незначительно. Величины реальной части показателя преломления в основном находились в интервале значений  $n \sim 1,54 \div 1,56$ . Оценки мнимой части КПП  $\chi$ , полученные для всех стадий развития дымов, практически совпали и составили  $\sim 0,001$ .

Результаты прямого численного моделирования всех параметров аэрозольного светорассеяния на основе восстановленных параметров микроструктуры дымовых аэрозолей показали, в частности, что для пиролизных дымов альbedo однократного рассеяния  $\Lambda$  близко к единице и находится в интервале значений  $\sim 0,94 \div 0,95$ . Таким образом, частицы пиролизного дыма, генерируемые при небольших температурах разложения хвойных образцов древесины  $T \sim 350$  °C, являются аэрозолями, слабо поглощающими видимое излучение.

На основе восстановленной совокупности данных о дисперсной структуре пиролизных дымов были получены оценки о временной изменчивости интегральных параметров: счетной концентрации  $N(t)$ , суммарного сечения  $S(t)$  и объема  $V(t)$  частиц, по которым было оценено изменение среднеэффективного

размера дымовых частиц  $r_{эф}(t) = 0,75V(t)/S(t)$  (рис. 3).

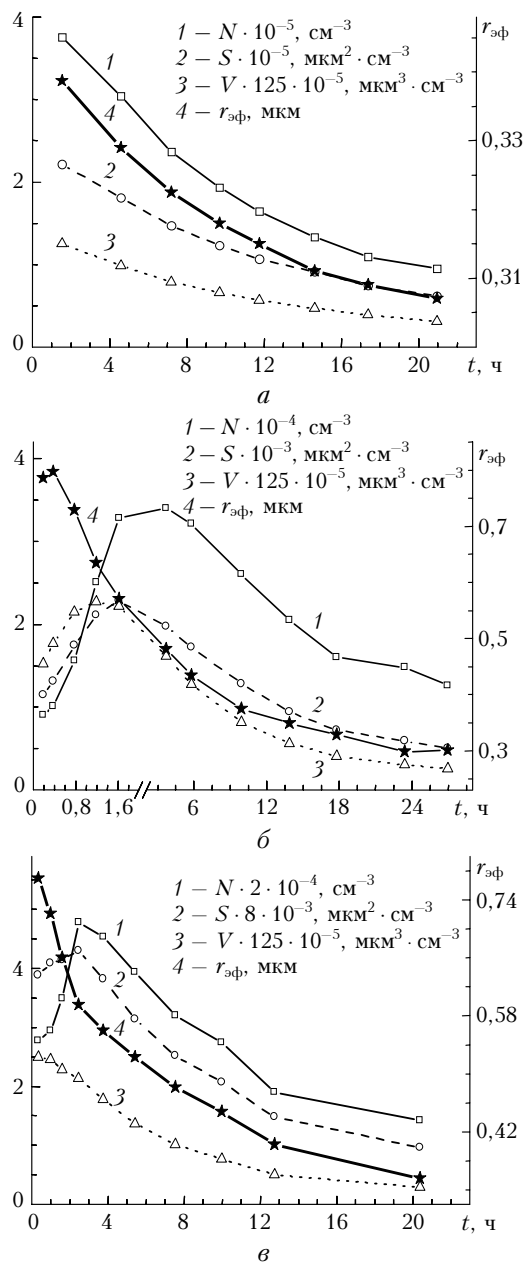


Рис. 3. Временная динамика интегрального объема  $V$ , сечения  $S$ , счетной  $N$  концентрации и эффективного размера  $r_{эф}$  дымовых частиц, рассчитанная по результатам нефелометрических измерений:  $a$  – для  $M = 250$ ;  $b$  –  $500$ ;  $v$  –  $750$  г

Из рис. 3 видно, что средний размер дымовых частиц в полидисперсном ансамбле изменяется со временем в интервале от 0,3 до 0,7 мкм.

В типичных атмосферных дымках – это промежуточный интервал размеров между тонкодисперсной и грубодисперсной фракциями. Приведенные на рис. 3 оценки подтверждают вывод о постепенном сближении спектров (см. рис. 1, б) на конечных стадиях развития дымов. С увеличением массы образцов увеличивается продолжительность времени релакса-

ции спектров, значение  $r_{эф} \sim 0,3$  мкм достигается через нарастающие (по мере увеличения массы) промежутки времени развития спектров.

Как показывают полученные оценки, высокая концентрация дымовых частиц среднелдисперсной фракции в воздушной массе может обеспечивать достаточно эффективный сток на их поверхность частиц  $r < 0,1$  мкм.

## Заключение

Эксперименты в большой аэрозольной камере показывают, что вследствие высокой концентрации продуктов термического разложения распределение дымовых частиц по размерам существенно зависит как от концентрации аэрозольно-газовой смеси, так и от продолжительности пребывания ее в концентрированном виде в локальном объеме КТР.

Рост относительного содержания частиц средне- и грубодисперсной фракций с увеличением массы сжигаемых образцов увеличивает «коагуляционные» потери мелких ( $r < 0,2$  мкм) частиц. Их относительное содержание в спектре размеров дымовых частиц имеет тенденцию к заметному снижению.

Частицы пиролизного дыма, генерируемые при небольших температурах разложения хвойных образцов древесины  $T \sim 350$  °С, представляют собой преимущественно слабо поглощающие видимое излучение аэрозоли. Оценки показывают, что для реальной части показателя преломления значения изменяются в интервале  $n \sim 1,52 \div 1,58$ . Полученные оценки мнимой части КПП для всех стадий развития дымов практически совпали и составили  $\sim 0,001$ .

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант № 06-05-64842).

1. Макиенко Э.В., Кабанов Д.М., Рахимов Р.Ф., Сакерин С.М. Изменения микроструктуры аэрозоля под воздействием дымов по результатам обращения данных спектральных оптических измерений // Оптика атмосф. и океана. 2007. Т. 20. № 4. С. 321–327.
2. Исаков А.А. Оптические и микрофизические характеристики дымов лесных пожаров в Подмоскowie в июле – сентябре 2002 г. // Оптика атмосф. и океана. 2003. Т. 16. № 10. С. 886–892.
3. Горчаков Г.И., Аникин П.П., Волох А.А., Емиленко А.С., Исаков А.А., Копейкин В.М., Пономарева Т.Я., Семутникова Е.Г., Свириденков М.А., Шукуров К.А. Исследование состава задымленной атмосферы Москвы во время пожаров торфяников летом осенью 2002 г. // Изв. РАН. Физ. атмосф. и океана. 2004. Т. 40. № 3. С. 366–380.
4. Козлов В.С., Панченко М.В., Польшин В.В., Пхалагов Ю.А., Ужегов В.Н., Щелканов Н.Н., Яшуева Е.П. Исследование особенностей динамики оптических и микрофизических характеристик аэрозоля в дымовой мгле // Оптика атмосф. и океана. 1999. Т. 12. № 5. С. 406–410.
5. Козлов В.С., Панченко М.В. Исследования оптических свойств и дисперсного состава древесных дымовых аэрозолей // Физ. горения и взрыва. 1996. Т. 32. № 5. С. 122–133.
6. Рахимов Р.Ф., Козлов В.С., Макиенко Э.В., Панченко М.В., Шмаргунов В.В. Методика и некоторые ре-

зультаты исследования дымов в большой аэрозольной камере // Оптика атмосф. и океана 2007. Т. 20. № 7. С. 614–621.

7. Рахимов Р.Ф. К вопросу о коагуляционной трансформации оптико-микрофизических свойств дымовых аэрозолей // Оптика атмосф. 1989. Т. 2. № 3. С. 259–266.

*R.F. Rakhimov, V.S. Kozlov, E.V. Makienko.* **Some peculiarities of formation of smoke aerosol dispersion structure at thermal decomposition of needle wood. 1. Variations of the mass of burned samples.**

A series of smoke experiments in the large aerosol chamber (TANK) was carried out, in which dynamics of changes of the polarizing characteristics of smoke aerosols was studied, and their microphysical changes in the process relaxation and disintegration were estimated. It is shown, that the specificity of formation of fine-disperse component of smokes depends not only on the weight of coniferous samples of wood, but also on duration of stay of aerosols-gas mix inside the thermal decomposition chamber (TDC) (muffle furnace). With increase of samples weight on exit from TDC, the relative content of particles moderate and coarse particles' fractions grow. Also «coagulation» losses of fine particles ( $r < 0.2 \mu\text{m}$ ) increase. The active moderate-dispersed fraction formation promotes more effective environment air cleaning from fine-dispersed aerosols, including nanometric range. Pyrolysis smoke particles generated at small temperatures of coniferous samples of wood decomposition  $300^\circ$  represent mostly aerosols that poorly absorb visible radiation. The estimations show, that the values of a real part of a refractive index vary between  $n \sim 1.52 \div 1.58$ .