

Р.Ф. Рахимов

## К ВОПРОСУ О КОАГУЛЯЦИОННОЙ ТРАНСФОРМАЦИИ ОПТИКО-МИКРОФИЗИЧЕСКИХ СВОЙСТВ ДЫМОВЫХ АЭРОЗОЛЕЙ

В работе излагается методика численного моделирования процесса коагуляционной трансформации оптико-микрофизических свойств аэрозолей в замкнутом объеме. В основу подхода положен метод редуцированного описания спектра размеров частиц по интегральным признакам дисперсной структуры. Сравнительный анализ данных лабораторного и численного экспериментов для дымовых аэрозолей подтверждают перспективность предлагаемой методики.

Аэрозольная фаза — одна из основных причин нестабильности оптической ситуации в атмосфере. Сложная геофизическая обусловленность состояния дисперсной компоненты, необходимость учета совместного влияния процессов, заметно отличающихся пространственно-временным масштабом своего развития, составляет едва ли не главное содержание проблемы моделирования ее светорассеивающих свойств.

Важным фактором динамичности оптических свойств атмосферного аэрозоля являются деформации спектра размеров частиц. Структурные особенности дисперсного состава атмосферной дымки формируются, с одной стороны, как результат микропроцессов, протекающих локально в ячейках аэрозольного поля, а с другой — как результат сложных обменных процессов внутри и между стратификациями под воздействием метеоэлементов.

Концепция фракционного моделирования аэрозольной компоненты [1–3], являясь целесообразным модельным компромиссом, опирается на гипотезу об относительной самостоятельности формирования и развития дисперсного состава атмосферной дымки на смежных интервалах шкалы размеров, охватывающих в целом по крайней мере не менее 3–4 порядков величины аэродинамического радиуса частиц, в частности

$$\frac{dN}{dr} = n(r) = Ar^{-3} \sum_{i=1}^l M_i \exp \left\{ -b_i \left[ \ln \frac{r}{r_i} \right]^2 \right\}, \quad (1)$$

где  $l \sim 3, 4$ ;  $dN$  — счетная концентрация аэрозольных частиц в единице объема в диапазоне радиусов частиц от  $r$  до  $r + dr$ ;  $n(r)$  — функция плотности распределения частиц по размерам;  $A, M_i, b_i, r_i$  — параметры модели.

Замена реальной (как правило, достаточно нерегулярной) структуры спектра  $n(r)$  суперпозицией параболических (в двойном логарифмическом масштабе) аппроксимационных зависимостей, как показывают численные оценки [3], вполне приемлема в пределах 15–20% погрешности прогноза параметров аэрозольного светорассеяния.

Фракционный метод определения спектра размеров частиц атмосферной дымки (1) позволяет перейти от традиционных параметров дисперсной структуры,  $A, M_i, r_i, b_i$  к интегральным признакам  $V_i, S_i, N_i$  — суммарным объемам, поверхностям и счетным концентрациям отдельных фракций, используя цепочку соотношений:

$$r_i = (3V_i)^{2/3} / [(4\pi N_i)^{1/6} \cdot S_i^{1/2}]; \quad (2)$$

$$1/b_i = \ln \{ (4\pi N_i)^{2/3} (3V_i)^{4/3} / S_i^2 \}; \quad (3)$$

$$F_i = AM_i = S_i / \sqrt{16\pi^3 / b_i}. \quad (4)$$

Предлагаемый метод описания структуры дымки через интегральные признаки (2)–(4) привлекателен тем, что исходные величины  $V_i, S_i, N_i$  более доступны для прямых измерений и удобны для использования при параметризации некоторых подсеточных микропроцессов и развития редуцированного подхода к моделированию мезомасштабных.

Одним из таких микропроцессов, в частности, является коагуляция аэрозолей, постоянно сопутствующая эволюционному развитию дисперсной системы.

Кинетика коагуляционного развития спектра размеров частиц атмосферной дымки обычно описывается исходя из интегродифференциального уравнения Смолуховского, дополненного членами, регламентирующими действие стока и источника генерации новых частиц [4]:

$$\frac{dn(x, t)}{dt} = \frac{1}{2} \int_0^x K(x, x-x') n(x-x', t) n(x', t) dx' + \gamma n_j(x) - n(x, t) \int_0^\infty K(x, x') n(x', t) dx' - \beta n(x, t), \quad (5)$$

где  $K(x, x')$  – коэффициент коагуляции частиц с размерами  $x$  и  $x'$ ;  $n(x, t)$  – трансформируемый спектр размеров частиц;  $n_j(x)$  – спектр размеров частиц, генерируемых источником;  $\beta$  – эффективная скорость стока частиц;  $\gamma$  – скорость генерации новых аэрозолей.

Для сложных спектров  $n(x, 0)$  непосредственное решение уравнения (5) возможно лишь в рамках численных методов [4–5], причем сопряжено со значительным временем счета порядка нескольких часов на современных ЭВМ.

Вопрос параметризации процесса рассмотрим на примере отдельной фракции, это позволяет перейти к эффективному (для полидисперсного ансамбля) значению коэффициента броуновской коагуляции [6]:

$$K = \frac{4kT}{3\mu} \left[ 1 + \exp\left(\frac{1}{2b_i}\right) + \frac{\Lambda C}{r_i} \left\{ \exp\left(\frac{1}{4b_i}\right) + \exp\left(\frac{5}{4b_i}\right) \right\} \right], \quad (6)$$

где  $k$  – постоянная Больцмана;  $T$  – температура;  $\mu$  – вязкость воздуха;  $\Lambda$  – длина свободного пробега молекул;  $C$  – поправка Каннингема.

Интегрируя уравнение (5) от 0 до  $\infty$ , используя при этом эффективное значение константы коагуляции (6), нетрудно перейти к дифференциальному уравнению прогноза динамики изменения интегральной счетной концентрации частиц:

$$\frac{dN_i}{dt} = -\frac{K}{2} N_i^2 - \beta N_i + \gamma N_j. \quad (7)$$

Аналогичные уравнения для первого  $L_i$  и второго  $W_i$  моментов спектра  $n_i(x)$  можно получить из (5), предварительно умножив его на  $x$  и  $x^2$  и проинтегрировав в указанных пределах:

$$\frac{dL_i}{dt} = -\beta L_i + \gamma L_j; \quad (8)$$

$$\frac{dW_i}{dt} = \frac{K}{\pi} L_i^2 - \beta W_i + \gamma W_j, \quad (9)$$

где  $N_j, L_j, W_j$  – соответствующие моменты спектра размеров аэрозолей, генерируемых источником.

Решение системы (7)–(9) относительно моментов позволяет, опираясь на соотношения (2)–(4), прогнозировать структурные изменения спектра размеров как следствие совокупного действия процесса коагуляции, источника и стока частиц. В частности, из уравнения (7) следует, что поведение  $N_i(t)$  можно описать соотношением:

$$N_i(t) = \frac{B - \xi + D(\xi + B) \cdot \exp(2Bt)}{\alpha [1 - D \cdot \exp(2Bt)]}, \quad (10)$$

$$\text{где } \alpha = -\frac{K}{2}; \xi = -\frac{\beta}{2}; B = \sqrt{\xi^2 - \alpha\gamma N_j}; D = \frac{(\alpha N_{i0} + \xi - B)}{(\alpha N_{i0} + \xi + B)}.$$

Аналогично из (8) и (9) следует:

$$L_i(t) = \left\{ L_{i0} + \frac{\gamma L_j}{2\xi} \right\} \exp(2\xi t) - \frac{\gamma L_j}{2\xi}; \quad (11)$$

$$W_i(t) = \left\{ W_{i0} + \frac{\gamma W_j}{2\xi} \right\} \exp(2\xi t) - \frac{\gamma W_j}{2\xi}, \quad (12)$$

где

$$W_{i0}^t = \left\{ W_{i0} + \frac{K}{\pi} \left[ \left[ L_{i0} + \frac{\gamma L_j}{2\xi} \right]^2 \cdot \frac{1}{2\xi} [\exp(2\xi t) - 1] - \right. \right. \\ \left. \left. - \frac{2\gamma L_j}{2\xi} \left[ L_{i0} + \frac{\gamma L_j}{2\xi} \right] t - \frac{(\gamma L_j)^2}{(2\xi)^3} [\exp(-2\xi t) - 1] \right\},$$

$N_{i0}$ ,  $L_{i0}$ ,  $W_{i0}$  — соответствующие моменты исходного спектра в момент времени  $t = 0$ .

Предельный переход в (10)–(12) при  $\beta \rightarrow 0$  и  $\gamma \rightarrow 0$  дает решение, описывающее сугубо коагуляционное развитие дисперсной системы:

$$N_i(t) = N_{i0} \left/ \left( 1 + \frac{K}{2} N_{i0} t \right) \right.; \quad (13)$$

$$L_i(t) = L_{i0}; \quad (14)$$

$$W_i(t) = W_{i0} + \frac{K}{\pi} L_{i0}^2 t. \quad (15)$$

Для анализа процесса релаксации дисперсной системы в отсутствие источника могут быть полезны соотношения, которые являются следствиями из (10)–(12) при  $\gamma = 0$ :

$$N_i(t) = \frac{2\beta N_{i0}}{[(KN_{i0} + 2\beta) \exp(\beta t) - KN_{i0}]}; \quad (16)$$

$$L_i(t) = L_{i0} \exp(-\beta t); \quad (17)$$

$$W_i(t) = \left\{ W_{i0} - \frac{K}{\pi} L_{i0}^2 [\exp(-\beta t) - 1] \right\} \exp(-\beta t). \quad (18)$$

В то же время асимптотическое поведение решения (16)–(18) при  $t \gg 1/\beta$  можно аппроксимировать экспоненциальными зависимостями с эффективными начальными значениями для моментов

$$N_i(t) = \frac{N_{i0}}{\left( \frac{K}{2\beta} N_{i0} + 1 \right)} \exp(-\beta t); \quad (19)$$

$$L_i(t) = L_{i0} \exp(-\beta t), \quad (20)$$

$$W_i(t) = \left( W_{i0} + \frac{K}{\pi} L_{i0}^2 \right) \exp(-\beta t). \quad (21)$$

И наконец, в отсутствие источника процесс коагуляции ведет к сокращению счетной концентрации частиц до уровня, когда эффективная скорость стока частиц  $\beta$  будет преобладать над величинами  $\frac{K}{2} N_{i0}$  и  $\frac{K}{\pi} \frac{L_{i0}^2}{W_{i0}}$ . В этом случае поведение системы будет описываться соотношениями:

$$N_i(t) = N_{it_k} \exp(-\beta t); \quad (22)$$

$$L_i(t) = L_{it_k} \exp(-\beta t); \quad (23)$$

$$W_i(t) = W_{it_k} \exp(-\beta t), \quad (24)$$

что адекватно процессу деградации фракции без существенных изменений спектра; при этом из соотношений (2)–(3) нетрудно видеть, что спектр размеров аэрозольных частиц не претерпевает качественных изменений, т. к.  $r_i(t > t_k) = r_{it_k} = \text{const}$  и  $b_i(t > t_k) = b_{it_k} = \text{const}$ .

Вопрос о реальном механизме коагуляционного объединения аэрозольных частиц в одну дискуссионен, в связи с чем возможна и неоднозначная трактовка полученных решений (10)–(24). В частности, если в формальной записи уравнения (5) под  $x$  подразумевать радиус частиц, то инвариантом

коагуляционной трансформации спектра в этом случае будет интегральный линейный размер, что нетрудно видеть из соотношения (14).

В свою очередь соотношение (12) будет описывать динамику изменения суммарной поверхности частиц. Для оценки поведения  $V_i(t)$  можно использовать взаимосвязь моментов модели (1), а именно:

$$V_i(t) = \pi N_i(t) \cdot S_i^2(t) / [6 \cdot L_i^3(t)]. \quad (25)$$

Данная версия решения, на первый взгляд, может показаться маловероятной, т.к. для процесса в этом случае характерен рост  $S_i$  и  $V_i$ . Но если принять во внимание, что содержание паров воды в атмосфере по массе на несколько порядков превосходит содержание дисперсной компоненты, то вполне реалистична гипотеза [7], согласно которой образование микрокапилляров при взаимном сцеплении коагулирующих частиц может стимулировать процесс гетерогенной микропорной конденсации влаги, обеспечивая тем самым увеличение объема аэрозольной компоненты.

Альтернативной рассмотренному механизму объединения двух коагулянтов является гипотеза полного слияния столкнувшихся частиц в одну сферическую с объемом, равным сумме первых до взаимодействия. Очевидно, инвариантом процесса в отсутствие источника и стока частиц будет суммарный объем аэрозольных частиц, что эквивалентно формальной замене переменной  $x$  в уравнении (5) на  $v = 4\pi r^3/3$ .

При данном механизме соотношение (11) будет описывать поведение  $V_i(t)$  с соответствующей заменой граничных условий. Для определения временной зависимости  $S_i(t)$  можно, по аналогии с первой версией, воспользоваться взаимосвязью моментов спектра (1):

$$S_i(t) = \left\{ \frac{4\pi}{9W_i(t)} [3V_i(t)]^s [4\pi N_i(t)]^2 \right\}^{1/9}, \quad (26)$$

где  $W_i(t)$  в данном случае описывает изменение во времени шестого момента спектра  $n_i(r)$  или второго  $n_i(v)$ .

Промежуточный механизм неполного, частичного слияния коагулирующих частиц (в сферическую) может быть рассмотрен, если в (5) в качестве  $x$  подразумевать площадь поверхности сферической частицы  $s = 4\pi r^2$ . В этом случае соотношение (11) будет описывать поведение  $S_i(t)$ , а для оценки  $V_i(t)$  можно использовать соотношение

$$V_i(t) = \frac{1}{3} \{ W_i^3(t) \cdot S_i^6(t) / [(4\pi)^2 N_i(t)] \}^{1/8}, \quad (27)$$

где  $W_i(t)$  — описывает с точностью до множителя изменение во времени четвертого момента спектра  $n_i(r)$  или второго  $n_i(s)$ .

Вероятность парного столкновения пропорциональна произведению счетных концентраций взаимодействующих частиц. Спектр размеров частиц атмосферной дымки в среднем следует закону распределения Парето  $\sim r^{-\nu}$ , где  $\nu = 3, 4$ , поэтому эффективность коагуляционной трансформации дисперсной структуры существенно зависит от уровня содержания тонкодисперсной фракции. Продукты термической возгонки различных веществ, или так называемые дымовые аэрозоли играют важную роль в формировании аэрозольной компоненты атмосферы, особенно ее тонкодисперсной составляющей. По оценкам [8] при среднем степном пожаре с одного гектара в атмосферу поступает около  $10^{22} - 10^{23}$  мелких частиц. Слабая выраженность обменных процессов между приземным слоем и свободной атмосферой, которая иногда возникает в ряде синоптических ситуаций, может способствовать их аномальному накоплению.

Развиваемый в работе подход использован для анализа коагуляционной трансформации оптико-микрофизических свойств дымовых аэрозолей. Достаточно информативными для анализа микропроцессов в дисперсных системах зарекомендовали себя нефелометрические методы регистрации угловых функций светорассеяния [9], чрезвычайно чувствительные к малейшим изменениям микроструктуры аэрозольной фазы.

На рис. 1–5 представлены результаты численного моделирования в сопоставлении с осредненными данными лабораторного эксперимента [9]. Угловые функции аэрозольного светорассеяния (матрица рассеяния) рассчитывались для полидисперсного ансамбля по теории Ми на основе алгоритма, изложенного в [1–2].

При сопоставлении результатов модельных оценок на основе выводов (10)–(24) с данными лабораторных исследований [9] использованы следующие параметры; коэффициент асимметрии  $K_A$  индикатрисы рассеяния  $g(\Theta)$  равный отношению световых потоков рассеяния в переднюю и заднюю полусферы; степень поляризации рассеянного излучения под углами  $\Theta = 110$  и  $165^\circ$ , обозначенные соответственно  $P_1$  и  $P_2$ ; а также величина отношения  $As = g(15^\circ)/g(110^\circ)$ , характеризующего степень вытянутости индикатрисы рассеяния вперед.

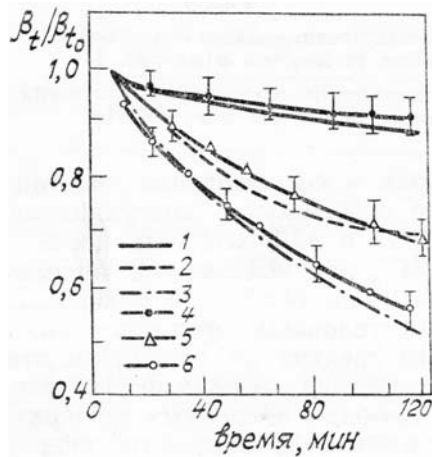


Рис. 1. Динамика коагуляционной деградации приведенного коэффициента ослабления  $\beta_t/\beta_{t_0}$  в замкнутом объеме для длины волны  $\lambda = 0,63$  мкм. Кривые 1, 2, 3 — расчетные данные, соответственно, для  $\beta_{t_0} = 0,007 \text{ м}^{-1}$ ;  $0,03 \text{ м}^{-1}$ ;  $0,22 \text{ м}^{-1}$ ; 4, 5, 6 — данные лабораторного эксперимента [9]

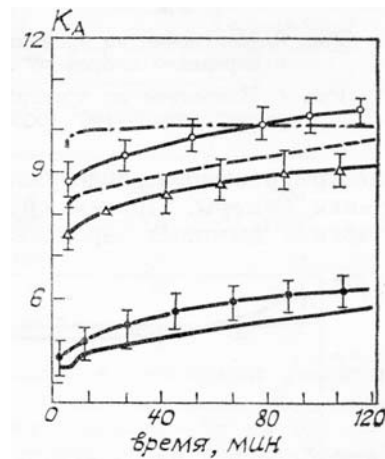


Рис. 2. Динамика изменения во времени коэффициента асимметрии индикатрисы рассеяния  $K_A$  (обозначения кривых те же, что и на рис. 1)

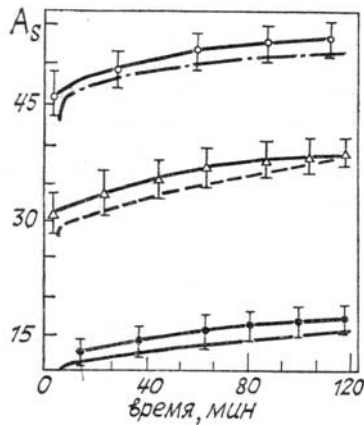


Рис. 3. Изменение во времени фактора вытянутости индикатрисы рассеяния в переднюю полусферу  $A_s$  (обозначения те же, что и на рис. 1)

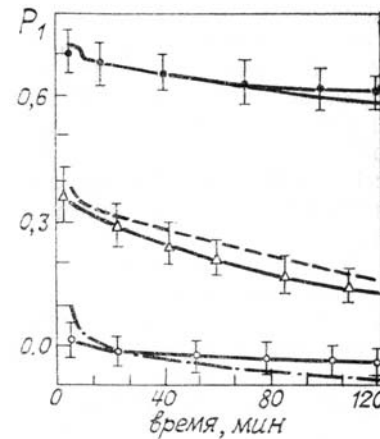


Рис. 4. Изменение во времени степени поляризации рассеянного излучения под углом  $\Theta = 100^\circ$  (обозначения кривых те же, что и на рис. 1)

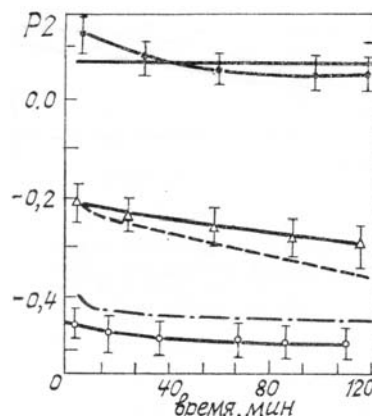


Рис. 5. Сопоставление рассчитанных значений степени поляризации рассеянного под углом  $\Theta = 160^\circ$  излучения с экспериментальными данными [9] (обозначения те же, что и на рис. 1)

Результаты модельного эксперимента показали, что динамика изменения оптических свойств в дымовых аэрозолях в лабораторных исследованиях является следствием коагуляционной трансформации спектра размеров, диффузионного стока и седиментации частиц на стенки камеры. Причем специфические особенности коагуляционного старения дымовых аэрозолей, выявленные в лаборатор-

ных исследованиях [9], как показывают модельные оценки, определены в значительной степени условием формирования исходного спектра на начальном этапе, длительностью 5–8 мин. На основе серии пробных численных экспериментов с вариацией мощности генерации источника дымовых аэрозолей удалось воспроизвести расчетным путем наиболее приемлемые варианты модельного процесса, исходя из 3-го механизма коагуляционного объединения двух частиц.

В таблице 1 приведены значения параметров источника генерации дымовых аэрозолей, которые в своем сочетании дают наиболее близкую к физическому эксперименту аналогию в изменении угловых функций светорассеяния.

Расчетные данные, представленные на рисунках в виде кривых 1, получены на основании гипотезы о том, что источник дымовых аэрозолей с параметрами, указанными в 1-й строке табл. 1, способствовал (одновременно с процессом их коагуляционного укрупнения и стока на стенки камеры) формированию исходного спектра, при котором достигаются исходные значения оптических характеристик  $K_A$ ,  $P_1$ ,  $P_2$ ,  $A_s$  и, в частности, коэффициента ослабления  $\beta_t = 0,007 \text{ м}^{-1}$ , указанного также в первой колонке табл. 1. Аналогичный смысл имеют величины, представленные соответственно во 2-й и 3-й строках табл. 1.

Таблица 1

$\beta_t$	$N_{\text{ист}}$	$S_{\text{ист}}$	$V_{\text{ист}}$	$r_{\text{ист}}$	$b_{\text{ист}}$
[ $\text{м}^{-1}$ ]	[ $\text{см}^{-3} \text{ с}^{-1}$ ]	[ $\text{мкм}^2 \text{ см}^{-3} \text{ с}^{-1}$ ]	[ $\text{мкм}^3 \text{ см}^3 \text{ с}$ ]	[ $\text{мкм}$ ]	—
0,007	$6,04 \cdot 10^3$	$4,46 \cdot 10^1$	$1,15 \cdot 10^0$	0,0525	0,646
0,030	$3,9 \cdot 10^5$	$1,13 \cdot 10^3$	$2,77 \cdot 10^1$	0,0435	0,476
0,220	$2,34 \cdot 10^5$	$2,53 \cdot 10^3$	$1,77 \cdot 10^2$	0,1089	0,381

Погрешность в оценке значений  $K_A$  нефелометрическими методами обусловлена в основном проблемой регистрации  $g(\Theta)$  в области ореола и направлений вблизи  $\Theta = 180^\circ$ . Возможно, этим обстоятельством и, в частности, отсутствием измеренных данных  $g(\Theta)$  для углов  $\Theta = 0^\circ$  и  $\Theta = 180^\circ$  могут быть объяснены заметные расхождения теоретических и экспериментальных данных на рис. 2.

Таблица 2

$t$	$R_t$	$b_t$	$N_t \cdot 10^{-6}$	$S_t \cdot 10^{-4}$	$V_t \cdot 10^{-3}$
[мин]	[ $\text{мкм}^2$ ]	—	[ $\text{см}^{-3}$ ]	[ $\text{мкм}^2 \text{ см}^{-3}$ ]	[ $\text{мкм}^3 \text{ см}^{-3}$ ]
5	0,044	0,476	107,0	32,3	8,03
20	0,070	0,579	15,80	17,6	6,35
50	0,093	0,664	4,490	10,9	4,92
80	0,113	0,742	1,880	7,89	4,18
120	0,142	0,852	0,757	5,91	3,74

Следует также отметить нерегулярность в изменении расчетных оптических характеристик на начальной стадии процесса, не обнаруженная по экспериментальным данным ввиду осреднения их по времени. Время измерения характеристик для одной точки экспериментальной кривой составляет интервал не менее 3–4 мин.

Таблица 3

$t$	$R_t$	$b_t$	$N_t \cdot 10^{-6}$	$S_t \cdot 10^{-4}$	$V_t \cdot 10^{-3}$
5	0,111	0,405	56,60	79,9	50,4
20	0,202	0,504	5,820	40,9	45,2
50	0,250	0,552	2,300	29,6	38,9
80	0,279	0,579	1,370	23,7	34,0
120	0,305	0,604	0,846	78,9	29,1

Результаты численного эксперимента показывают, что данные лабораторных исследований не удается объяснить сугубо коагуляционным старением дымовых аэрозолей, без учета стока частиц на стенки камеры, а также и одним стоком. В этом нетрудно убедиться, если обратиться к данным (табл. 1, 2), которые иллюстрируют сопутствующие изменения микрофизических параметров дымо-

вых аэрозолей соответственно при исходных значениях  $\beta_t = 0,03 \text{ м}^{-1}$  и  $0,22 \text{ м}^{-1}$ . Из которых, в частности, следует, что счетная концентрация дымовых аэрозолей вследствие их интенсивной коагуляции довольно быстро сокращается: за два часа более чем на два порядка величины  $N_t$ .

Не менее эффективным должен быть сток частиц на стенки: суммарный объем  $V_t$  уменьшается почти вдвое. О результирующем эффекте обоих процессов можно судить по изменению модального радиуса  $R_t$  (рост более чем в три раза). Одновременно происходит заметное сужение спектра, что подтверждается изменением параметра  $b_t$ , обратная величина которого пропорциональна ширине спектра (1).

В заключение автор выражает благодарность В.С. Козлову за любезно предоставленные материалы эксперимента [9], полезные замечания при обсуждении полученных результатов работы.

1. Креков Г.М., Рахимов Р.Ф. Оптические модели атмосферного аэрозоля. Томск: ТФ СО АН СССР, 1986. 295 с.
2. Креков Г.М., Рахимов Р.Ф. Оптико-локационная модель континентального аэрозоля. Новосибирск: Наука, 1982. 138 с.
3. Креков Г.М., Рахимов Р.Ф. //Изв. АН СССР. ФАО. 1984. Т. 20. № 12. С. 1215.
4. Ниды Г.М., Вгоок J. R. //J. Colloid Sci. 1965. V. 20. P. 477.
5. Волощук В.М. Кинетическая теория коагуляции. Л.: Гидрометеиздат. 1984. 284 с.
6. Райст П. Аэрозоли. М.: Мир, 1987. 280 с.
7. Ивлев Л.С. //Химический состав и структура атмосферных аэрозолей. Л.: Изд-во ЛГУ, 1982. 366 с.
8. Химия нижней атмосферы /Под ред. С. Расула. М.: Мир, 1976. 408 с.
9. Козлов В.С. Экспериментальные исследования оптико-микрофизических свойств дымовых аэрозолей. Автореф. дис. ... канд. физ.-мат. наук. Томск: ИОА СО АН СССР. 1985.

Институт оптики атмосферы  
СО АН СССР, Томск

Поступила в редакцию  
29 декабря 1988 г.

#### R.F. Rakhimov. On Coagulative Transformation of Smoke Aerosol Optical and Microphysical Properties.

A numerical simulation procedure for the coagulative transformation of aerosol optical and microphysical properties in a closed volume is reported. The proposed approach relies on a reduced description of the particle size distribution in terms of integrated features of polydispersions. A comparative analysis of data obtained from a laboratory experiment and a numerical simulation on smoke aerosols corroborates the utility of the present procedure.