

Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования «Сибирский федеральный университет» Министерство науки и высшего образования Российской Федерации



На правах рукописи



Кушнаренко Андрей Викторович

**Разработка модели и алгоритмов расчёта фотофоретического взаимодействия аэрозольных частиц и кластеров в разреженной газовой среде на основе метода Монте-Карло**

Специальность 05.13.18 —

«математическое моделирование, численные методы и комплексы программ»

Диссертация на соискание учёной степени  
кандидата физико-математических наук

Научный руководитель:  
доктор физико-математических наук, профессор  
Черемисин Александр Алексеевич

Красноярск — 2019

## Оглавление

	Стр.
<b>Введение</b> . . . . .	5
<b>Глава 1. Обзор литературы и формулировка физической проблемы</b> . .	13
1.1 Общие сведения о коагуляции аэрозольных частиц . . . . .	13
1.2 Модель с учётом взаимодействия аэрозольных частиц . . . . .	18
1.3 Факторы, оказывающие влияние на коагуляцию аэрозольных частиц	21
1.4 Газокинетические явления и коагуляция аэрозольных частиц . . . . .	22
1.5 Уравнение Больцмана и фотофоретические явления в газовой среде	24
1.6 Формулировка физической проблемы и общие подходы к решению	30
<b>Глава 2. Разработка вероятностной модели и алгоритмов на основе метода Монте-Карло для расчёта фотофоретического взаимодействия аэрозольных частиц</b> . . . . .	35
2.1 Физическая и геометрическая модели задачи расчёта фотофоретической силы . . . . .	35
2.2 Вероятностная модель взаимодействия аэрозольной системы с разреженной газовой средой . . . . .	38
2.3 Алгоритм решения задачи на основе использования специальных матриц переноса . . . . .	43
2.4 Геометрическая модель кластерных систем, состоящих из сферических частиц . . . . .	47
2.5 Поиск пересечений молекулярных траекторий с поверхностями аэрозольной системы . . . . .	51
2.6 Оценка условий применимости аппроксимации свободномолекулярного режима . . . . .	53
2.7 Аппроксимация для поправки к константе коагуляции на основе метода аналогий . . . . .	54
<b>Глава 3. Предметно-ориентированный программно-алгоритмический комплекс «Атмосферный аэрозоль»</b> . . . . .	56

3.1	Реализация предметно-ориентированного программно-алгоритмического комплекса . . . . .	56
3.2	Функциональные особенности предметно-ориентированного программно-алгоритмического комплекса . . . . .	59
3.3	Оценка точности расчётов и подбор числа статистических испытаний	65
3.4	Верификация программного комплекса . . . . .	66
3.4.1	Верификация реализаций алгоритмов для расчёта фотофоретической силы . . . . .	66
3.4.2	Оценка величины фотофоретической силы . . . . .	71
<b>Глава 4.</b>	<b>Результаты вычислительных экспериментов по изучению силы фотофоретического отталкивания между аэрозольными частицами в вакуумных камерах и атмосфере Земли . . . . .</b>	<b>73</b>
4.1	Фотофоретическое взаимодействие аэрозольных частиц в вакуумных камерах . . . . .	73
4.1.1	Исследование зависимости от расстояния между частицами	73
4.1.2	Исследование зависимости силы от размера частиц . . . . .	74
4.1.3	Исследование зависимости от интенсивности падающего излучения . . . . .	76
4.1.4	Исследование зависимости от давления окружающей газовой среды . . . . .	77
4.1.5	Влияние межмолекулярных столкновений на подавление силы фотофоретического отталкивания . . . . .	78
4.1.6	Взаимодействие частиц, различающихся по размерам . . . . .	79
4.1.7	Фотофоретическое взаимодействие частиц с аэрозольным кластером . . . . .	80
4.2	Фотофоретическое взаимодействие аэрозольных частиц в атмосфере Земли . . . . .	82
4.2.1	Исследование зависимости фотофоретического взаимодействия от расстояния между частицами на различных высотах в атмосфере Земли в дневное время . . . . .	82
4.2.2	Исследование зависимости фотофоретического взаимодействия от размера частиц на различных высотах в дневное время . . . . .	83

4.2.3	Особенности фотофоретического взаимодействия в атмосфере Земли в ночное время . . . . .	85
<b>Глава 5. Влияние фотофоретического отталкивания между аэрозольными частицами на их коагуляцию в вакуумных камерах и атмосфере Земли . . . . .</b>		
5.1	Исследование влияния освещения на константу коагуляции . . . . .	87
5.1.1	Лабораторные условия . . . . .	88
5.1.2	Атмосферные условия . . . . .	90
<b>Заключение . . . . .</b>		91
<b>Список литературы . . . . .</b>		94
<b>Приложение А. Свидетельство о государственной регистрации программы для ЭВМ . . . . .</b>		
		103

## Введение

В настоящее время наблюдается повышенный интерес к задачам моделирования коагуляции аэрозольных частиц с учётом влияющих на неё факторов, что связано с широким распространением этого процесса в природе и технике, в частности, в нанотехнологиях и в задачах по борьбе с загрязнением атмосферы.

Теоретическое описание явления коагуляции аэрозольных частиц предложено достаточно давно. Базовые представления о ней имеют начало в работах А. Эйнштейна [1], М. Смолуховского [2], П. Ланжевена [3], С. Чандрасекара [4], Н. А. Фукса [5].

Сегодня одним из эффективных инструментов изучения коагуляции является численное моделирование. Теоретически и экспериментально установлено, что на процесс коагуляции влияет множество факторов, и в реальных условиях он практически никогда не протекает без их участия. К таким факторам относятся: присутствие в газовой среде звуковых волн (акустическая коагуляция [6—8]), турбулентность [9], внешние силы (гравитационная коагуляция, коагуляция в электрическом или магнитном поле), влажность [10], начальный дисперсионный состав [5], градиент температуры газовой среды [11] (термофоретическая коагуляция [12]), наличие между аэрозольными частицами сил взаимодействия [5; 13—17].

*Актуальность задачи* моделирования влияния различных факторов на коагуляцию аэрозолей обусловлена необходимостью управления этими процессами в технологических применениях, а также в природной среде.

Что касается взаимодействия аэрозольных частиц между собой, то тут, главным образом, основное внимание привлечено к разработке моделей и проведению численных расчётов, в которых в явном виде учитываются силы Ван-дер-Ваальса и электростатические силы, когда аэрозольные частицы имеют заряд. Однако, в последнее время появились работы, в которых на основании разработки соответствующих моделей и результатов численных расчётов показано, что к взаимодействию аэрозольных частиц могут приводить газокинетические явления. Так, например, известно взаимодействие аэрозольных частиц, вовлечённых в термофоретическое движение [18; 19].

Исследование влияния света на коагуляцию аэрозольных частиц является одним из сложнейших вопросов физики и химии аэродисперсных систем. Достаточно давно известно, что на одиночные аэрозольные частицы в разреженной газовой сре-

де при освещении их светом могут действовать фотофоретические силы [20—22], меняющие механическое поведение частиц. Имеется большое число работ, посвящённых получению аналитических выражений и построению численных моделей, которые позволяют оценить величину фотофоретических сил для аэрозольных частиц, по крайней мере, простейшей формы.

Из качественных соображений можно понять, что в разреженной газовой среде при освещении аэрозольных частиц должно возникать их взаимодействие между собой – фотофоретическое взаимодействие. Качественная модель этого эффекта приведена далее в предлагаемой диссертации. Встаёт вопрос о количественной оценке величины этих сил. Данная диссертационная *работа и посвящена актуальной задаче разработки численной модели фотофоретического взаимодействия аэрозольных частиц в разреженной газовой среде*, реализации соответствующего математического обеспечения и проведению численных экспериментов по исследованию величины этих сил и их влияния на коагуляцию. Основой для построения численной модели является метод статистического моделирования, теория цепей Маркова и специальные матрицы переноса [23], которые позволяют получить решение газокинетического уравнения Больцмана в приближении свободномолекулярного режима для сложносоставных аэрозолей – аэрозольных кластеров.

**Целью** исследования является разработка математической модели и алгоритмов расчёта фотофоретического взаимодействия аэрозольных частиц и кластеров в разреженной газовой среде на основе метода Монте-Карло, создание комплекса проблемно-ориентированных программ и проведение на этой основе численных экспериментов по изучению сил фотофоретического взаимодействия и их влияния на коагуляцию аэрозольных частиц в условиях вакуумных камер и атмосферы Земли. Для достижения цели исследования были поставлены и решены следующие **задачи**:

1. Разработать вероятностную модель, описывающую фотофоретическое взаимодействие в разреженной газовой среде между поглощающими излучение аэрозольными частицами или кластерами, состоящими из сферических частиц.
2. Разработать алгоритмы решения задачи расчёта сил фотофоретического взаимодействия между аэрозольными кластерами на основе метода Монте-Карло и использования матриц переноса.
3. Реализовать комплекс алгоритмов и проблемно-ориентированных программ (или иначе предметно-ориентированный программно-

алгоритмический комплекс) для проведения вычислительного эксперимента по оценке сил фотофоретического взаимодействия в разреженной газовой среде вакуумных камер и атмосферы Земли.

4. Провести вычислительные эксперименты по исследованию сил фотофоретического взаимодействия, возникающих между аэрозольными частицами и кластерами в разреженной газовой среде вакуумных камер и атмосферы Земли, а также оценке влияния этих сил на коагуляцию аэрозолей.

**Научная новизна** заключается в следующем:

1. Разработана вероятностная модель, описывающая фотофоретическое взаимодействие в разреженной газовой среде между поглощающими изучение аэрозольными частицами и кластерами, состоящими из сферических частиц.
2. Разработан алгоритм решения задачи расчёта сил фотофоретического взаимодействия между аэрозольными кластерами на основе метода Монте-Карло и использования специальных матриц переноса.
3. В результате проведения комплексного вычислительного эксперимента показано, что силы фотофоретического отталкивания между аэрозольными частицами микронного и субмикронного размера могут достигать десятков и даже сотен величин силы тяжести как в вакуумных камерах, так и в атмосфере Земли даже при сравнительно небольших интенсивностях падающего излучения, эквивалентного интенсивности солнечного света. Эти силы убывают обратно пропорционально квадрату расстояния между центрами частиц и, таким образом, являются дальнодействующими. Установлено, что в случае субмикронных частиц, подобно частицам сажи, хорошо поглощающими солнечное излучение видимого диапазона, фотофоретическое взаимодействие снижает константу их коагуляции вплоть до нескольких порядков величины.

**Теоретическая значимость** заключается в том, что показано, что на основе метода Монте-Карло и специальных матриц переноса можно построить эффективные алгоритмы и программное обеспечение для расчёта сил фотофоретического взаимодействия аэрозольных кластеров в разреженной газовой среде. На основе численных экспериментов показано, что эти силы значительны и имеет место существенное влияние этих сил на коагуляцию среднedisперсных и грубодисперсных аэрозольных частиц, поглощающих видимое и тепловое излучения.

**Практическая значимость** работы заключается в том, что реализован предметно-ориентированный программно-алгоритмический комплекс (или комплекс проблемно-ориентированных программ) для проведения вычислительного эксперимента по оценке фотофоретических сил, действующих на аэрозольные кластеры, и фотофоретического взаимодействия аэрозольных кластеров, состоящих их сферических частиц, в условиях разреженной газовой среды вакуумных камер или стратосферы и мезосферы Земли. В частности, комплекс может быть использован в рамках геоинженерных проектов для оценки влияния фотофореза и фотофоретического взаимодействия на время жизни искусственного аэрозоля и аэрозольную стратификацию [24].

**Методы исследования:** методы математического и статистического моделирования (методы Монте-Карло), теории вероятностей и математической статистики, теории молекулярного переноса, численного моделирования, объектно-ориентированного, процедурного и обобщённого программирования.

**Достоверность** полученных результатов обеспечивается последовательным применением методов математического и статистического моделирования, теории переноса в приближении свободномолекулярного режима, современных методов разработки программ на основе объектно-ориентированного и процедурного программирования и подтверждается результатами тестовых расчётов в сопоставлении с аналитическими оценками.

**Основные положения, выносимые на защиту:**

1. Вероятностная модель, описывающая фотофоретическое взаимодействие в разреженной газовой среде между поглощающими изучение аэрозольными частицами и кластерами, состоящими из сферических частиц.
2. Алгоритм решения задачи расчёта сил фотофоретического взаимодействия между аэрозольными кластерами на основе метода Монте-Карло и использования специальных матриц переноса.
3. Комплекс проблемно-ориентированных программ для проведения вычислительного эксперимента по оценке фотофоретического взаимодействия аэрозольных кластеров, состоящих их сферических частиц, в условиях разреженной газовой среды вакуумных камер или стратосферы и мезосферы Земли.
4. Результаты проведения комплексного вычислительного эксперимента, согласно которым силы фотофоретического отталкивания между аэрозольными частицами микронного и субмикронного размера могут достигать

десятков и даже сотен величин силы тяжести как в вакуумных камерах, так и в атмосфере Земли даже при сравнительно небольших интенсивностях падающего излучения, эквивалентного интенсивности солнечного света. Эти силы убывают обратно пропорционально квадрату расстояния между центрами частиц и, таким образом, являются дальнодействующими. В случае субмикронных частиц, подобно частицам сажи хорошо поглощающими солнечное излучение видимого диапазона, фотофоретическое взаимодействие снижает константу их коагуляции вплоть до нескольких порядков величины.

**Апробация работы.** Основные результаты диссертационной работы докладывались и обсуждались на: Рабочей Группе «Аэрозоли Сибири», Томск (XVI, 2009; XIX, 2012); European Aerosol Conference (Манчестер, Великобритания, 2011), Международном симпозиуме «Оптика атмосферы и океана. Физика атмосферы» (XVIII, Томск, 2011; XIX, Томск, 2013; XXI, Томск, 2015); XIII Международной конференции по эвентологической математике и смежным вопросам (Красноярск, 2009); Международной конференции «Естественные и антропогенные аэрозоли» (Санкт-Петербург, 2010); International Conference on High performance computing HPC-UA'2012 (Киев, 2013); Международном симпозиуме «Атмосферная Радиация и Динамика» (МСАРД) Санкт-Петербург, 2011, 2013, 2015; Международной конференции «Марчуковские научные чтения - 2018» (Новосибирск, 2018); семинаре «Методы Монте-Карло в вычислительной математике и математической физике» под руководством член-корреспондента РАН Г. А. Михайлова (Новосибирск, 11 октября 2018, ИВМиМГ СО РАН); объединённом семинаре отделения лазерного зондирования и научно-образовательного центра ИОА СО РАН под руководством д.ф.-м.н. Матвиенко Г. Г. (Томск, 13 февраля 2019, ИОА СО РАН); объединённом семинаре под руководством член-корреспондента РАН С. И. Кабанихина (Новосибирск, 15 февраля 2019, ИВМиМГ СО РАН).

**Личный вклад соискателя** состоит в разработке модели и алгоритмов вычисления сил фотофоретического взаимодействия аэрозольных кластеров и частиц на основе метода Монте-Карло и использования матриц переноса. Алгоритм расчёта матриц переноса в аэрозольных системах на основе метода статистического моделирования, предложенный Черемисиным А. А., дополнен соискателем алгоритмом построения аэрозольных кластеров, состоящих из сферических частиц, алгоритмом построения траекторий между столкновениями в системе, а также алгоритмом отражений для конкретных конфигураций поверхностей системы, а

также алгоритмом построения и решения уравнений теплового баланса в системе. Предметно-ориентированный программно-алгоритмический комплекс, включая части, отвечающие за реализацию алгоритма статистического моделирования части, пользовательский интерфейс и алгоритм многопоточного статистического моделирования, разработаны лично соискателем. Результаты численных экспериментов получены лично соискателем.

**Публикации.** Основные результаты по теме диссертации изложены в 15 печатных изданиях, 3 из которых изданы в журналах, рекомендованных ВАК, 12 — в тезисах докладов.

**Объем и структура работы.** Диссертация состоит из введения, пяти глав, заключения и приложения. Полный объём диссертации составляет 103 страницы, включая 38 рисунков. Список литературы содержит 93 наименования.

Во введении обосновывается актуальность исследований, проводимых в рамках данной диссертационной работы, формулируется цель и задачи, научная новизна, практическая и теоретическая значимость, проведённого исследования, разъяснён личный вклад соискателя, изложены положения, выносимые на защиту, описана структура диссертации.

Первая глава посвящена рассмотрению моделей коагуляции, применяемых при описании этого процесса. Глава начинается с общих сведений о коагуляции аэрозольных частиц и модели этого процесса с учётом наличия сил взаимодействия между ними. Приведён обзор работ, посвящённых изучению влияния газокинетического явления термофореза на коагуляцию. Оказывается, термофорез может приводить как к притяжению частиц друг к другу, так и к их отталкиванию, тем самым оказывая влияние на их коагуляцию. В научной литературе также рассмотрена задача о термофоретической коагуляции при различных градиентах температуры среды. Таким образом, газокинетические явления рассматриваются как фактор, оказывающий влияние на коагуляцию аэрозолей.

Вместе с тем, влияние освещения частиц на коагуляцию в научной литературе не рассмотрено вовсе. Удалось обнаружить одну единственную работу [25], в какой-то мере, косвенно, затрагивающую этот вопрос. Глава заканчивается качественным описанием эффекта фотофоретического отталкивания аэрозольных частиц и формулировкой физической проблемы.

Вторая глава посвящена вероятностной модели, описывающей фотофоретическое взаимодействие в разреженной газовой среде между поглощающими и изучение аэрозольными частицами и кластерами, состоящими из сферических ча-

стиц. Описаны физическая и геометрическая модели задачи, изложен базовый алгоритм Монте-Карло [23], лежащий в основе всех вычислений данной работы. Рассмотрена модификация базового алгоритма, позволяющая простым образом ввести учёт межмолекулярных столкновений и, тем самым, изучить подавление фотофоретической силы расталкивания аэрозольных частиц при числе Кнудсена аэрозольной системы равным и меньше 1. Глава завершается описанием подхода к решению задачи об оценке влияния фотофоретического отталкивания на коагуляцию. Предложено воспользоваться известным решением об учёте любых потенциалов взаимодействия между частицами, рассмотренным Н. А. Фуксом [5] и применённым им для вычисления поправки к константе коагуляции заряженных частиц.

Третья глава посвящена предметно-ориентированному программно-алгоритмическому комплексу программ для проведения вычислительного эксперимента. Описаны требования, которые предъявлялись к программному обеспечению комплекса. Приведены его функциональные возможности, оценки сложности и точности, обоснован выбор числа статистических испытаний. Глава заканчивается разделом, где описана верификация реализаций алгоритмов путём сравнения расчётов в комплексе с известным аналитическим решением для квазисферической частицы [26; 27].

Четвёртая глава посвящена результатам вычислительных экспериментов по изучению силы фотофоретического отталкивания между аэрозольными частицами в вакуумных камерах и атмосфере Земли. Первым результатом является выявленный характер зависимости силы фотофоретического отталкивания аэрозольных частиц, хорошо поглощающих видимое излучение. Результат представлен для лабораторных условий и заключается в том, что зависимость силы от расстояния между центрами частиц, при заданном давлении, приближённо описывается зависимостью кулоновского типа:  $F_{ph}(r_{12}) \approx C/r_{12}^2$ . Это позволяет отнести эти силы к типу дальнедействующих. Кроме того, при расстоянии между центрами частиц близком к сумме их радиусов, обнаружено, что модуль силы фотофоретического отталкивания может достигать значительных относительных величин: десятки и даже сотни модулей силы тяжести. Отсюда возникает предположение о влиянии на коагуляцию.

Далее приведены результаты исследования силы фотофоретического взаимодействия: зависимость её величины от размера частиц, интенсивности падающего на частицы видимого излучения, давления окружающего газа. Раздел 4.1.5 посвящён

оценке того, насколько сильно влияют межмолекулярные столкновения на величину силы фотофоретического взаимодействия. При больших расстояниях между частицами фотофоретическое отталкивание начинает уменьшаться по экспоненциальному закону с ростом этих расстояний.

Результаты исследования взаимодействия отдельных сферических частиц разного размера изложены в разделе 4.1.6, численный эксперимент с большим аэрозольным кластером описан в 4.1.7. Особенностью здесь является наличие асимметрии величины силы фотофоретического отталкивания при приближении частицы с различных сторон к кластеру.

Фотофоретическому взаимодействию в атмосфере Земли посвящены три последние раздела четвёртой главы. Поскольку условия инфракрасного теплообмена для частиц в вакуумных камерах и в атмосфере отличаются весьма значительно, необходимо изучить фотофоретическое взаимодействие в атмосфере Земли отдельно. Выявлено, что в ночных условиях фотофоретическое отталкивание сменяется притяжением частиц, однако силы этого притяжения не велики.

Пятая глава посвящена оценке влияния фотофоретического взаимодействия на константу коагуляции аэрозольных частиц. Кулоновский характер зависимости фотофоретических сил от расстояния позволяет использовать аналогию с электростатическими взаимодействиями, возникающими между заряженными аэрозольными частицами. Применяя известный подход и заменив электростатический потенциал на работу фотофоретической силы, были произведены расчёты и выявлено, что в случае субмикронных частиц, подобно частицам сажи, хорошо поглощающими солнечное излучение видимого диапазона, фотофоретическое взаимодействие снижает константу их коагуляции вплоть до нескольких порядков величины.

В заключении диссертации изложены итоги выполненного исследования, рекомендации, перспективы дальнейшей разработки темы.

## Глава 1. Обзор литературы и формулировка физической проблемы

### 1.1 Общие сведения о коагуляции аэрозольных частиц

Наряду с большим разнообразием явлений, которые проявляются в аэрозольных системах, коагуляция частиц является одним из наиболее важных процессов. В случае аэрозолей, состоящих из твёрдой дисперсной фазы вещества, под *коагуляцией* (от лат. *coagulatio* – свёртывание, сгущение) понимают явление объединения частиц дисперсной фазы в агрегаты вследствие сцепления (адгезии) этих частиц при их соударениях. Если аэрозоль состоит из жидкой фазы вещества, то тогда говорят о явлении *коалесценции* (от лат. *coalesco* — срастаюсь, соединяюсь) – слиянии частиц.

Базовые представления о коагуляции сформированы достаточно давно и уже прочно вошли в стандартные разделы коллоидной химии и науки об аэрозолях [28]. Эти представления основаны на рассмотрении броуновского движения частиц, расчёте вероятности их столкновения и вычислении среднего числа соударений частиц в единицу времени. При этом принято различать два разных подхода. Первый подход носит название теории *быстрой коагуляции*, при котором предполагается, что каждое соударение аэрозольных частиц приводит к их объединению. Если предполагается, что частицы при соударении соединяются с некоторой вероятностью, то этот подход называют *медленной коагуляцией*. Теория быстрой коагуляции была разработана Марианом Смолуховским (28 мая 1872 - 5 сентября 1917) в 1916 году. Разработанные им теоретические основы и вычислительные методы легли в основу статистической физики. В особенности это касается теории стохастических процессов. Теория Смолуховского многократно подробно изложена почти во всех учебниках коллоидной химии и монографиях о аэродисперсных системах. В этой теории он рассмотрел распределение концентраций в диффундирующем к «поглощающей сфере» аэрозоле (модель «поглощающей сферы»), состоящем из сферических частиц одинакового радиуса. Это означает следующее: предполагается, что одна из частиц неподвижна и необходимо найти средние промежутки времени, через которые с этой частицей будут соприкасаться совершающие броуновское движение другие частицы, при условии, что каждое соприкосновение приводит к их слипанию (коагуляции). Сферические частицы слипаются, когда рас-

стояние между их центрами становится равным сумме их радиусов. Тогда можно заменить неподвижную частицу «поглощающей сферой» с радиусом равным  $2r$ , а все остальные частицы рассматривать как материальные точки (Рисунок 1.1). При

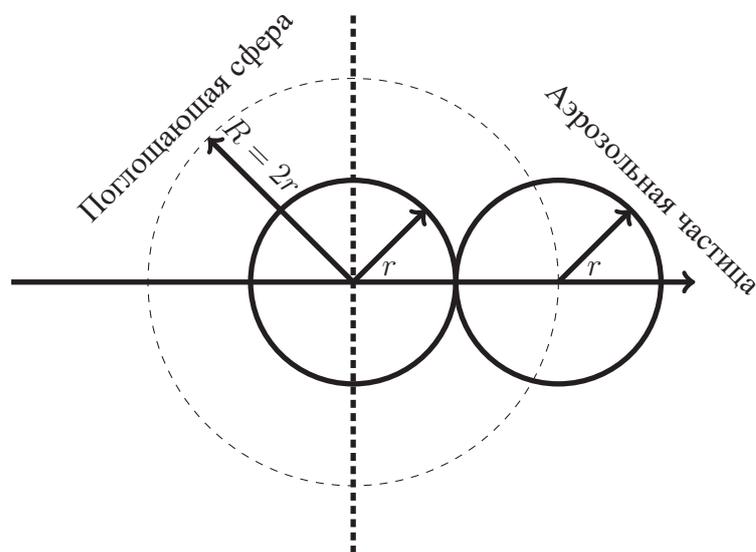


Рисунок 1.1 — Модель «поглощающей сферы»

разработке своей теории М. Смолуховский исходил из следующих предположений:

1. частицы имеют сферическую форму и одинаковый размер
2. скорость коагуляции определяется:
  - коэффициентом диффузии  $D$ ;
  - начальной концентрацией частиц  $n_0$ ;
3. всякое столкновение приводит к слипанию частиц

Смолуховский рассматривал процесс коагуляции как попарное слипание частиц, а событие одновременного столкновения трёх частиц полагал невероятным. Процесс коагуляции предполагался им по следующей схеме: сначала будут образовываться агрегаты частиц, состоящие из двух первичных, затем первичная частица может объединяться с уже образовавшимся агрегатом двух первичных частиц, и возникает новый агрегат их трёх первичных частиц, затем к нему присоединится ещё одна частица, и возникает агрегат из четырёх частиц, и так далее.

Таким образом, при коагуляции последовательно будут сформированы агрегаты из двух, из трёх, из четырёх, из пяти первичных частиц. Соответственно, аэрозольные частицы будут укрупняться, превращаясь в агрегаты, а число частиц в единице объёма будет уменьшаться. Процесс коагуляции принято описывать уравнением, отражающим изменение счётной концентрации аэрозольных частиц с течением времени. В результате разработки своей теории Смолуховский получил

закон, известный сегодня как *основное уравнение коагуляции*:

$$\frac{dn}{dt} = -K_0 n^2 \quad (1.1)$$

Из (1.1) следует, что скорость коагуляции является функцией счётной концентрации аэрозольных частиц  $n$  и интенсивности их броуновского движения, заложенной в *константе коагуляции*  $K_0$ . Для самого простого случая сферического грубодисперсного аэрозоля, состоящего из частиц одного размера, радиус которых равен  $r$ , константа коагуляции выражается формулой  $K_0 = 8\pi r D$ , где  $D$  – коэффициент диффузии аэрозольной частицы. Часто коэффициент диффузии заменяют на  $k_B VT$ , где  $k_B$  – константа Больцмана,  $T$  – температура газовой среды,  $V$  – коэффициент подвижности. Очевидно, что константа коагуляции является определяющей *основную характеристику* процесса коагуляции – его скорость. Поэтому часто в литературе пишут, что *константа коагуляции определяет характер процесса коагуляции*.

Самое первое явное доказательство того, что имеет место коагуляция дымов было получено Толманом и его сотрудниками в 1919 году [29; 30]. В этих экспериментах производилось измерение изменения интенсивности конуса Тиндаля<sup>1</sup> в находящемся в камере дыме. Наблюдалось линейное убывание с течением времени концентрации дыма, а интенсивность конуса Тиндаля убывала быстрее, чем концентрация, при этом нелинейно. По установленной зависимости показаний тиндаллиметра [31] от весовой концентрации и среднего размера частиц дыма, авторы, на основе независимых экспериментов, пришли к выводу, что быстрое падение интенсивности конуса Тиндаля возможно только в результате того, что происходит коагуляция дыма. Однако, по таким экспериментам никак нельзя установить число и размер частиц в каждый момент времени, да ещё для разных видов аэрозолей. Для этого требуются надёжные методы счёта частиц в аэрозолях. Разработку таких методов впервые произвели Уайтлоу-Грей и его сотрудники [32]. Эти методы были применены ими для определения изменения числа частиц с течением времени.

Несмотря на простоту объяснения и базового математического выражения, процесс коагуляции очень сложен в деталях. Константа коагуляции, в общем случае, может представлять собой крайне сложный функционал, зависящий от времени, распределения частиц по размерам, термобарических параметров среды, вида аэрозоля и т.д. Так, например, если аэрозольные частицы просто имеют

<sup>1</sup>Это оптический эффект, проявляющийся в рассеивании света, проходящего через оптически неоднородную среду. Выражен как светящийся конус света – конус Тиндаля. Самый простой пример – визуализация лазерного луча дымом, паром, пылью.

разный размер – радиусы частиц  $r_1$  и  $r_2$ , т.е. в случае полидисперсного аэрозоля, константа коагуляции определяется выражением [5]:

$$K = \int_0^{\infty} \int_0^{\infty} K(r_1, r_2) f(r_1, t) f(r_2, t) dr_1 dr_2$$

где  $f(r, t)$  – функция распределения размеров частиц в момент времени  $t$ ,  $K(r_1, r_2)$  – константа коагуляции частиц с радиусами  $r_1$  и  $r_2$ .

В ряде явлений, сопровождающихся коагуляцией в присутствии внешних источников частиц (в том числе и периодических), образование частиц дисперсной фазы и их стока протекают одновременно. В таком случае в кинетическое уравнение корректируют, добавляя члены, описывающие процессы генерации и стока частиц по некоагуляционному каналу [33]. Возникают уравнения вида:

$$\frac{dn_i}{dt} = I_i + \frac{1}{2} \sum_{j=1}^{i-1} K_{i,j} n_j n_{i-j} - n_i \sum_{j=1}^{i-1} K_{i,j} n_j - J_i \quad (1.2)$$

где  $I_i$  – интенсивность генерации, и  $J_i$  – интенсивность стока образующихся частиц,  $n_i$  – концентрация из  $i$  первичных частиц,  $n_j$  – концентрация из  $j$  первичных частиц,  $K_{i,j}$  – коэффициент столкновения частиц типов  $i$  и  $j$ . Такая система содержит бесконечное число уравнений с бесконечным числом членов в правой части. Для получения численного решения ограничивают число уравнений и применяют методы приближенного описания коагуляции. К таким методам относятся методы, основанные на схеме Розински - Сноу и на схеме, предложенной Сутугиным и Лушниковым [34]. Метод Розински - Сноу базируется на увеличении дискретности спектра масс коагулирующих частиц так, чтобы их массы стали кратны  $2^n$ , где  $n$  – натуральные числа. Такая замена означает объединение частиц с массами в интервале от  $3/4 \cdot 2^n m$  до  $3/2 \cdot 2^n m$  в группы со средней массой  $2^n m$ , где  $m$  – масса первичной частицы. Поскольку сумма  $2^n + 2^p$  не является целой степенью двух, условно полагается, что при столкновении частиц с массами  $2^n$  и  $2^{n-1}$  образуются частицы, масса которых  $2^{n+1}$ , только в количестве  $3/4$  от числа столкновений, а при столкновениях  $2^n + 2^{p-n}$ , где  $p > 1$  растёт не масса частицы, а происходит образование новой частицы, масса которой  $2^n$  в количестве  $2^{p-n}$  от числа столкновений.

Такая схема является комбинацией метода, основанного на использовании уравнений Смолуховского и метода Розински - Сноу. Уравнения коагуляции первичных частиц описываются уравнениями типа (1.2), потом следуют два переходных уравнения, описывающих формирование частиц в группах из первичных, а затем идут уравнения, описывающие коагуляцию частиц, объединённых в группы.

Исследуя научную литературу, посвящённую изучению явления коагуляции аэрозольных частиц и факторов, которые влияют на этот процесс, можно наблюдать интересную картину. До середины прошлого века наука об аэрозолях вообще имела несистемный характер. Очень скудно представлены книги и монографии, имеет место большой разброс соответствующих журнальных статей по периодическим изданиям, относящимся к самым разнообразным отраслям науки и техники, притом с очень узким прикладным характером. Большинство экспериментальных работ по аэрозолям в то время проводилось с очень полидисперсными системами, далёкими от сферических аэрозольных частиц. Распределение размеров частиц, в лучшем случае, определялось грубо, а зачастую вообще не изучалось. Разумеется, такие работы было трудно использовать для проверки теоретических выводов и для нахождения новых закономерностей. В начале 30-х годов прошлого века исследования аэродисперсных систем были в состоянии первоначального задела не только в СССР, но и во всём мире. С появлением упомянутых ранее методов исследования аэрозоля, как раз в начале 1930-х, картина становится иной.

Огромный вклад в мировую и отечественную науку по вопросам коагуляции внёс советский учёный-физикохимик, профессор, доктор химических наук Николай Альбертович Фукс (31 июля 1895 - 10 октября 1982), по праву считающийся основоположником в области исследований аэрозоля вообще. Так, например, хорошо известны его работы по механизмам образования аэрозолей, теории явлений переноса в аэрозолях на основе метода граничной сферы. Многие работы, выполненные совместно с его учениками в 1930-е годы, отнесены к классическим, часть из них была посвящена проблеме образования и кинетики аэрозольных систем. В 1934 году Фукс предложил метод расчёта конденсации и коагуляции при переходном режиме столкновения частиц, что оказалось очень удачным и эффективным. В 1971 году вместе с А. Г. Сутугиным ему удалось усовершенствовать этот метод, и теперь формула Фукса-Сутугина используется учёными всего мира и считается классической. Ряд работ Н. А. Фукса по электрической зарядке частиц, его совместные работы с И. В. Петряновым по хроматографии и А. А. Киршом (теория фильтрации) считаются пионерскими.

Свою известность Н. А. Фукс получил благодаря изданию монографии «Механика аэрозолей» в 1955 году в Советском Союзе [5]. В 1964 году эта монография вышла за рубежом, в издательстве Pergamon Press [35]. Данная монография признана классической и первой, систематизирующей науку об аэрозолях. Очень многие

последующие книги по физике аэрозолей [16; 36] прямо или косвенно заимствуют её методические особенности.

При исследовании современных научных публикаций за последние три года, посвящённых коагуляции аэрозолей, среди прочих, просматривается важная тенденция поиска новых методов математического описания этого процесса [37; 38]. Вместе с тем, существуют и другие подходы. Так, например, успешно применяется метод Монте-Карло для моделирования процесса коагуляции [39; 40]; весовой метод Монте-Карло для приближённого решения нелинейных уравнений коагуляции [41]; осуществляется статистическое моделирование пространственно неоднородной коагуляции с учётом диффузионного переноса частиц [42]. Важно отметить, что при компьютерном моделировании коагуляции успешно применяется распараллеливание алгоритмов для их реализации на GPU [43—45].

## 1.2 Модель с учётом взаимодействия аэрозольных частиц

Одной из особенностей работ Н. А. Фукса является постановка новых вопросов в физике аэрозолей и фундаментальное рассмотрение их решения. Как было упомянуто в начале главы, есть два разных подхода: быстрая и медленная коагуляция. В большинстве случаев рассматривают именно быструю коагуляцию, и существует масса её экспериментальных подтверждений. Объяснение медленной коагуляции основывается на учёте неполной эффективности столкновений вследствие того, что между частицами существует потенциал взаимодействия. Смолуховским была предпринята попытка простого введения доли эффективных соударений в формулы теории быстрой коагуляции, однако такой подход имеет рассогласование с экспериментом. Более совершенную теорию медленной коагуляции предложил и развил Н. А. Фукс [46]. Она учитывает взаимодействие частиц путём введения в кинетическое уравнение члена, характеризующего энергетический барьер, на примере рассмотрения задачи о нахождении константы коагуляции шарообразных частиц одинакового размера с зарядами одноимённого или противоположного знака [5].

Согласно рассмотрению в [47], пусть  $F(r_{12})$  сила, действующая между шарообразными монодисперсными частицами радиуса  $r_0$ , где  $r_{12}$  – расстояние между их центрами. Концентрацию частиц обозначим  $n$ . Необходимо решить задачу о диф-

фузии частиц к поглощающей сфере, при этом учесть, что на броуновское движение накладывается упорядоченная радиальная скорость  $v = BF$ .  $B$  – коэффициент подвижности, связанный с коэффициентом диффузии уравнением  $D = k_B BT$ . Процесс диффузии положим стационарным и для него справедливо следующее:

$$D\Delta n = \operatorname{div}(vn) = B \operatorname{div}(Fn)$$

Запишем это уравнение в полярных координатах, поскольку имеет место сферическая симметрия задачи:

$$\frac{d}{dr_{12}} \left( Dr_{12}^2 \frac{dn}{dr_{12}} - Br_{12}^2 Fn \right) = 0$$

Отсюда следует, что

$$4\pi \left( Dr_{12}^2 \frac{dn}{dr_{12}} - Br_{12}^2 Fn \right) = \operatorname{const} = M \quad (1.3)$$

В выражении (1.3) первый член в скобках по смыслу есть число частиц, проходящих в единицу времени через любую концентрическую к поглощающей сфере сферическую поверхность вследствие обычной броуновской диффузии, а за число частиц, проходящих через ту же поверхность за счёт направленного движения из-за действия силы между частицами, отвечает второй член. Суммарно они определяют результирующую скорость оседания аэрозольных частиц на поглощающей сфере.

Необходимые граничные условия для концентрации частиц  $n(r_{12})$ : первое  $n = n_0$ ;  $r_{12} \rightarrow \infty$  и второе  $n = 0$ ;  $r_{12} = R = 2r_0$ , где  $R$  – радиус поглощающей сферы. Интегрирование уравнения (1.3) с соблюдением первого условия даёт:

$$n(r_{12}) = \exp \left( \frac{B}{D} \int_{\infty}^{r_{12}} F(r_{12}) dr_{12} \right) \left[ n_0 + \frac{M}{4\pi D} \int_{\infty}^{r_{12}^2} \frac{1}{r_{12}^2} \exp \left( -\frac{B}{D} \int_{\infty}^{r_{12}} F(r_{12}) dr_{12} \right) dr_{12} \right]$$

Второе условие даёт:

$$n_0 = \frac{M}{4\pi D} \int_{2r_0}^{\infty} \frac{1}{r_{12}^2} \exp \left[ -\frac{B}{D} \int_{\infty}^{r_{12}} F(r_{12}) dr_{12} \right] dr_{12} \quad (1.4)$$

Произведём замену  $B/D$  на  $1/k_B T$  и  $\int_{\infty}^{r_{12}} F(r_{12}) dr_{12}$  на потенциал силы  $U(r_{12})$ .

Из (1.4) получим

$$M = \frac{4\pi D n_0}{\int_{2r_0}^{\infty} \frac{1}{r_{12}^2} \exp \frac{U(r_{12})}{k_B T} dr_{12}} \quad (1.5)$$

Здесь удобно произвести замену  $x = r_{12}/2r_0$ . Тогда (1.5) принимает вид:

$$M = \frac{8\pi D n_0 r_0}{\int_1^{\infty} \frac{1}{x^2} \exp \frac{U(x)}{k_B T} dx}$$

Если нет никакой силы взаимодействия между частицами, то имеем:

$$M_0 = 8\pi D n_0 r_0$$

Следовательно, поправочный коэффициент  $\beta$ , такой, что  $M = \beta M_0$  имеет вид:

$$\beta = \frac{1}{\int_1^{\infty} \frac{1}{x^2} \exp \frac{U(x)}{k_B T} dx}$$

Коэффициент  $\beta$  есть не что иное как поправочный коэффициент, на который нужно умножить обычную константу коагуляции, без учёта взаимодействий, чтобы получить константу коагуляции для тех же аэрозольных частиц, но с наличием потенциала взаимодействия.

Фукс рассматривал эту задачу на примере нахождения константы коагуляции шарообразных частиц одинакового размера с зарядами  $q_1$  и  $q_2$  одинакового или противоположного знака. Он получил следующие простые выражения для поправки к константе коагуляции

$$\beta = \frac{\lambda_{12}}{e^{\lambda_{12}} - 1}$$

для отталкивания (заряды одинакового знака), соответственно для притяжения (заряды противоположного знака)

$$\beta = \frac{\lambda_{12}}{1 - e^{-\lambda_{12}}}.$$

Здесь

$$\lambda_{12} = \frac{q_1 q_2}{2r_0 k_B T}.$$

Обобщённый подход к решению этой задачи позволил сформулировать метод расчёта константы коагуляции и в дальнейшем проводить *оценку влияния любых других сил дальнего действия между частицами* иной природы, которые могут возникать в аэрозольных системах. Так, например, этот метод был применён М. Тихомировым, Н. Туницким, и И. Петряновым для выяснения вопроса о влиянии молекулярных сил на скорость коагуляции аэрозолей [5, §51].

### 1.3 Факторы, оказывающие влияние на коагуляцию аэрозольных частиц

На характер процесса коагуляции влияют и внешние силы, действующие на аэрозоли. К таким силам, например, относится сила тяжести. Это направление исследований получило название гравитационной коагуляции [5; 48; 49]. В вязкой среде, под действием силы тяжести, аэрозольные частицы разных размеров оседают с разной скоростью, тем самым увеличивается вероятность их столкновения. Гравитационная коагуляция водяных капель в облаках играет существенную роль [5; 13].

Макроскопические параметры среды также рассматриваются как факторы, влияющие на коагуляцию. К таким факторам относится, например, наличие в среде звуковых волн, и тогда имеет место акустическая коагуляция [6]. А в случае проявления турбулентности имеет место коагуляция в турбулентном потоке [9].

Очень важно отметить, что фундаментальные результаты по коагуляции аэрозолей, полученные в прошлом столетии, на сегодняшний день многократно уточнены, сформулирован более совершенный математический аппарат. Главным образом, уточнения заключаются, с одной стороны, в более точных измерениях, поскольку стали доступны более совершенные технические средства проведения экспериментов, а с другой стороны, сами эксперименты усложнились и обрели особую специфику. В качестве примера можно указать, без сомнения, интерес к процессам коагуляции аэрозоля в ядерных реакторах и радиоактивного аэрозоля вообще [50].

Также необходимо отметить такие экспериментальные работы как [51] по изучению броуновской коагуляции в особых условиях, в данном случае, в условиях наличия гамма-излучения. В этом исследовании в аэрозольной испытательной установке объём камеры подвергался панорамному гамма-излучению. По рассеянию света проводились натурные изменения концентрации, объёма и распределения по размеру аэрозоля в зависимости от времени. Из этих данных следует, что коэффициент коагуляции в присутствии гамма-поля почти на порядок больше, чем без него, поскольку аэрозоль под воздействием гамма-излучения начинает приобретать биполярную зарядку. Данный результат имеет прикладное значение в области безопасности ядерных реакторов на быстрых нейтронах, где в замкнутой среде благодаря гравитационному оседанию ускоряется коагуляция.

## 1.4 Газокинетические явления и коагуляция аэрозольных частиц

Как следует из вышеизложенного, любой фактор, который может привести к изменению частоты или эффективности столкновений между частицами аэрозоля может, оказывать влияние и на скорость коагуляции. К таким факторам можно отнести и газокинетические явления, возникающие в аэродисперсных системах.

Хорошо известно, что существует ряд газокинетических эффектов, которые способны привести аэрозольные частицы в направленное движение. Так, например, это *термофорез* – направленное движение аэрозольных частиц, возникающее при наличии градиентов температурных полей в газовой среде [11]. Аэрозольные частицы испытывают движение в направлении снижения температуры среды. Как показывают расчёты, проделанные в работе [18], между аэрозольными частицами, вовлечёнными в термофоретическое движение, возникает взаимодействие. В работе [52] показано, что оно, в среднем, достаточно слабое и падает с расстоянием между частицами как  $1/r_{12}^3$ , где  $r_{12}$  – расстояние между центрами частиц. Более существенное взаимодействие возникает при их седиментации за счёт распространения вязких возмущений в среде. Его величина, в какой-то степени, сопоставима с величиной силы тяжести, действующей на частицы. Эти результаты были получены на основе решения уравнений газовой динамики со специальными граничными условиями [22; 53], с помощью которых учитывают проскальзывание газовых молекул в Кнудсеновском слое при малых значениях числа Кнудсена. В работе [19] представлено аналитическое исследование термофоретического движения двух сферических аэрозольных частиц при постоянной их температуре и малых числах Кнудсена. Особенностью работы является то, что в ней рассмотрены различные варианты возможных ситуаций:  $T_1 = T_2 > T_0$ ;  $T_1 = T_2 < T_0$ ;  $T_1 > T_0$   $T_2 < T_0$ , где  $T_1$  – температура одной частицы,  $T_2$  – температура другой частицы,  $T_0$  – температура окружающей среды. Автор этой работы заключает следующее: эффект термофоретического взаимодействия частиц будет приводить пару частиц к коагуляции друг с другом, если  $T_1 < T_0$  и  $T_2 < T_0$ , а когда температура частиц выше окружающей температуры, термофоретическая сила порождает отталкивающий эффект между частицами. Кроме того, две идентичные частицы будут двигаться в одном направлении, если  $T_1 < T_0$  и  $T_2 > T_0$ .

Оказывается, возникает термофоретическая коагуляция, рассмотренная в работе [12]. Основной вывод этой работы заключается в том, что большие градиенты

температуры газовой среды способствуют коагуляции, благодаря увеличению частоты столкновения частиц друг с другом.

В результате экспериментального исследования [25] было выявлено, что может проявляться существенное влияние света на константу коагуляции аэрозольных частиц. Аэрозольные частицы различного размера и состава могут левитировать в световом пучке. Это происходит благодаря газокинетическому явлению фотофореза аэрозольных частиц. Согласно заключению авторов этого исследования, на скорость коагуляции частиц *NaCl* можно влиять, подвергая частицы облучению от источника света. При интенсивности примерно  $10 \text{ Вт/см}^2$  и продолжительности пребывания в 80 секунд отмечается увеличение скорости коагуляции на два порядка, по сравнению с обычной броуновской коагуляцией. Средний геометрический диаметр аэрозоля удваивается. Авторы находят объяснение эксперимента предполагая наличие влияние термофореза на коагуляцию, т.е. появления градиентов температуры в экспериментальной установке, возникших за счёт нагрева поверхностей её стенок. Частицы мигрировали от горячих стенок камеры агломерации к её центру, что и привело к увеличению вероятности столкновения частиц и, следовательно, к ускорению коагуляции.

Следует отметить, что работа [25] единственная, которую удалось обнаружить при поиске работ, посвящённых исследованиям влияния света на коагуляцию аэрозольных частиц. Но даже в ней тот вопрос рассмотрен косвенно. Исходя из постановки эксперимента, она не была направлена на исследование именно этого влияния, а эксперимент имел целью изучение термофоретического и фотофоретического движения аэрозольных частиц. Как указано авторами во введении, в данной работе они описывают исследование изменений интенсивности света, необходимых для левитации частиц различного состава и размера, высказывая предположение о возможности использования фотофоретической силы для увеличения константы коагуляции.

Учитывая это, а также сложность эксперимента, по нему нельзя однозначно судить о влиянии света на коагуляцию аэрозолей. В конце введения авторами отмечено, что им неизвестны какие-либо литературные описания, относящиеся к воздействию света на скорость коагуляции аэрозолей.

В то же время, работы, посвящённые влиянию аэрозоля на распространение света и направленных пучков излучений, представлены в литературе, что связано, помимо прочего, с совершенствованием дистанционных методов зондирования атмосферы Земли и Океана [54].

## 1.5 Уравнение Больцмана и фотофоретические явления в газовой среде

Первые задокументированные упоминания о явлении фотофореза аэрозольных частиц сделаны французским исследователем М. Тором [55]. Но открытие фотофореза принадлежит Феликсу Эренхафту (24 апреля 1879 - 4 марта 1952) [56], поскольку именно он, проведя серию экспериментов, впервые системно описал это явление, дав ему название. В экспериментах Эренхафт наблюдал, что под воздействием света от мощной лампы аэрозольные частицы испытывают направленное движение: некоторые частицы двигались от источника света, а другие к нему. Движение к источнику света никак не могло быть объяснено световым давлением. Он определил движение частиц от источника света как *положительный фотофорез*, а движение к источнику как *отрицательный фотофорез*. Вопрос о природе сил, вызывающих фотофорез занимал физиков до середины XX века.

Сегодня достоверно установлено, что фотофорез аэрозолей – это явление, относящееся к классу газокинетических явлений, обусловленное радиометрическим эффектом [20; 57]. Фотофоретическая сила возникает при нарушении равномерности аккомодации импульса и энергии молекул газа, соударяющихся с поверхностью частицы. Классическое объяснение фотофореза заключается в следующем. В результате поглощения аэрозольной частицей видимого солнечного и теплового излучений поверхность частицы неравномерно разогревается. Молекулы газа после соударения с частицей покидают её поверхность с большей скоростью там, где она разогрета сильнее, что приводит к нарушению баланса импульса, передаваемого частице молекулами газа.

Фотофорез рассматривают для трёх видов условий внешней газовой среды, характеризующихся числом Кнудсена:

$$Kn = \frac{l_{av}}{L},$$

где  $l_{av}$  – средняя длина свободного пробега молекул газа, а  $L$  характерный масштаб аэрозольной системы. Для отдельной аэрозольной частицы в качестве характерного масштаба обычно выбирают её размер. Для сферической аэрозольной частицы принято рассматривать её радиус, как характерный масштаб. Для частиц с формой существенно отличной от сферической в качестве характерного масштаба обычно выбирают максимальный размер. Отсюда возникают три режима, которые используют при описании фотофореза.

Первый режим называют непрерывным режимом (continuous regime), который соответствует числам Кнудсена  $Kn < 1$ . Часто можно встретить в литературе его название как «режим малых чисел Кнудсена» или «режим высоких давлений». В этом случае необходимо учитывать эффект проскальзывания молекул в пограничном слое Кнудсена или, иначе говоря, эффект теплового скольжения (thermal creep). Тогда задачу о нахождении фотофоретической силы обычно рассматривают с точки зрения уравнений газогидродинамики [53]. Сама задача о расчёте скорости теплового скольжения имеет тесную взаимосвязь с уравнением Больцмана [58].

Второй режим носит название переходного режима (transitive regime), и он соответствует условию  $Kn \sim 1$ . В этом режиме на фотофоретическую силу сказывается подавление её межмолекулярными столкновениями.

Третий режим называют свободномолекулярным режимом (free molecular regime), соответствующим условию  $Kn \gg 1$ . В этом режиме можно пренебречь межмолекулярными столкновениями и считать, что аэрозольная частица не вносит возмущений в газовую среду, а значит упростить расчёты. В свободномолекулярном режиме хорошо применим газокинетический подход для описания явления фотофореза. Особенностью этого режима является то, что в нём фотофоретическая сила имеет максимальную величину и оказывает существенное влияние на движение аэрозольной частицы. Он применим для условий верхней и средней атмосферы Земли.

На сегодняшний день в научной литературе есть описания двух типов фотофоретической силы, поскольку известно о двух причинах возникновения неравномерности аккомодации энергии и импульса газовых молекул по поверхности частицы. Первый тип относится к классическому фотофорезу и носит название  $\Delta T$ -фотофореза, который объясняет возникновение фотофоретической силы, как сказано ранее, из неравномерности разогрева поверхности частицы. Однако, хорошо известно, что обмен энергией при соударении молекул газа с поверхностью твёрдого тела зависит от условий, которые определяются коэффициентом аккомодации. *Коэффициент аккомодации*, часто обозначаемый в литературе  $\alpha$ , интерпретируется в соответствии с зеркально-диффузионной схемой отражения молекул, сформулированной Максвеллом:  $\alpha$  есть вероятность идеального диффузного отражения молекулы с распределением по скоростям, которое соответствует температуре поверхности в точке отражения. Соответственно,  $(1 - \alpha)$  есть вероятность зеркального отражения с сохранением модуля импульса. Нарушение равномерности распределения коэффициента аккомодации по поверхности частицы

также приводит к возникновению фотофоретической силы. Эту фотофоретическую силу относят ко второму типу,  $\Delta\alpha$ -фотофорезу [26; 59]. В отличие от классического фотофореза, возникающая при  $\Delta\alpha$ -фотофорезе сила имеет направление в зависимости от распределения неоднородностей на поверхности аэрозольной частицы и жёстко связана с её телом, в то время как сила  $\Delta T$ -фотофореза зависит от направления поглощаемого излучения.

Австрийский физик Ганс Рохачек (Hans Rohatschek) отмечает, что классическое представление о происхождении фотофоретической силы в результате возникновения градиента температуры на поверхности аэрозольной частицы сталкивается с противоречиями в экспериментальных наблюдениях [60]. В частности, наблюдается отрицательный фотофорез больших частиц, и величина фотофоретической силы до  $10^4$  раз больше, чем даёт расчёт. В эксперименте частицы размером от 10 до 100 микрон помещались в горизонтальный пучок света. Частицы были разделены по вертикальному их отклонению фотофоретической силой, а затем исследованы под электронным микроскопом. Было выявлено, что преобладал тип иной фотофоретической силы, возникающий благодаря наличию на поверхности частиц разницы в коэффициенте аккомодации  $\alpha$ , то есть  $\Delta\alpha$ -фотофорез. Рохачек указывает, что  $\Delta T$ -фотофорез в этом эксперименте играет существенную роль, а именно, является направляющим, так как крутящий момент силы  $\Delta\alpha$ -фотофореза может выровнять частицы, на которые действует сила  $\Delta T$ -фотофореза, по отношению к направлению света. Таким образом, движение больших, сильно поглощающих частиц к источнику света может быть объяснено. Величина силы  $\Delta\alpha$ -фотофореза до  $10^4$  раз больше, чем силы  $\Delta T$ -фотофореза объясняется разностью коэффициентов аккомодации на поверхности частицы около 0,1. Эта разность образуется из-за особенностей строения поверхности частиц, поскольку на фотографиях, полученных с помощью электронного микроскопа, видны гладкие и рваные части поверхности частиц, углубления, образуемые слоистой структурой материала.

В работе [26] изложены результаты построения полуэмпирической модели фотофоретических сил для однородной сферической частицы в предположении, что на её поверхности имеет место и разница температур и разница в коэффициенте аккомодации, причём распределение этих величин обладают осевой симметрией. Приведены выражения для расчёта сил и  $\Delta T$  и  $\Delta\alpha$ -типа во всех режимах числа Кнудсена.

Любая математическая модель описания газокинетических явлений соотносится с физическими системами, основанными на фундаментальных соотношениях баланса, хорошо известных как законы сохранения. Соответственно, она очень тесно связана с вопросами корректности задач для систем нелинейных дифференциальных и интегродифференциальных уравнений Больцмана (1.6)[61, §3]

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \frac{\partial f}{\partial \mathbf{x}} \cdot \frac{\mathbf{p}}{m} + \frac{\partial f}{\partial \mathbf{p}} \cdot \mathbf{F} = \left. \frac{df}{dt} \right|_{\text{coll}}. \quad (1.6)$$

Уравнение Больцмана описывает, в общем случае, эволюцию физических систем, состоящих из статистически большого количества элементов, сталкивающихся в процессе движения. Здесь функция  $f(x, t)$ , которую необходимо найти, описывает состояния физической системы в каждый момент времени  $t \geq 0$  в точках с пространственными координатами  $\mathbf{x} = (x_1, x_2, \dots, x_n)$ ,  $\mathbf{p}$  – импульс, соответственно,  $\mathbf{v} = \mathbf{p}/m$  – скорость движения элементов физической системы между столкновениями, т. е. скорость свободного переноса,  $\mathbf{F}(\mathbf{x}, t)$  – поле сил, действующее на элементы. Правая часть уравнения носит название оператора столкновений, который отражает наличие взаимодействия между элементами.

Взаимосвязь между описанием фотофоретических явлений и уравнением Больцмана заключается в том, что, в конечном итоге, необходимо определить потоки импульса, возникающие в системе газ-частица, учесть взаимное столкновение невозмущенной газовой среды молекул и молекул, которые уже провзаимодействовали с поверхностью частицы. Также следует учесть, что аэрозольные частицы, которые имеют место в реальности, весьма разнообразны и по форме, и по составу, а зачастую существенно отличны от простой формы. Речь идёт о сложных агломератах, таких как аэрозольные кластеры. Этот тип аэрозольных частиц широко представлен как в атмосфере, по результатам заборов проб на фильтры, так и в лабораторных условиях. На Рисунке 1.2 представлена фотография сажевых аэрозольных частиц, полученная на электронном микроскопе [62]. Белая полоса вверху каждой части рисунка – это масштабная линия, соответствующая 500 нанометрам. Соответственно, на Рисунке 1.2 представлены четыре разные категории частиц. Можно видеть, что это сложные по форме частицы, порядка 0,5 микрона (Рисунок 1.2a), представляющие собой единое тело; составные частицы, размером около 2,5 – 3 микрона, из тел сложной формы – аэрозольные агрегаты (Рисунок 1.2b); аэрозольные кластеры размером 3 – 5 микрон, состоящие из сотен сферических и квазисферических частиц (Рисунок 1.2c), размер каждой из которых около 10 –

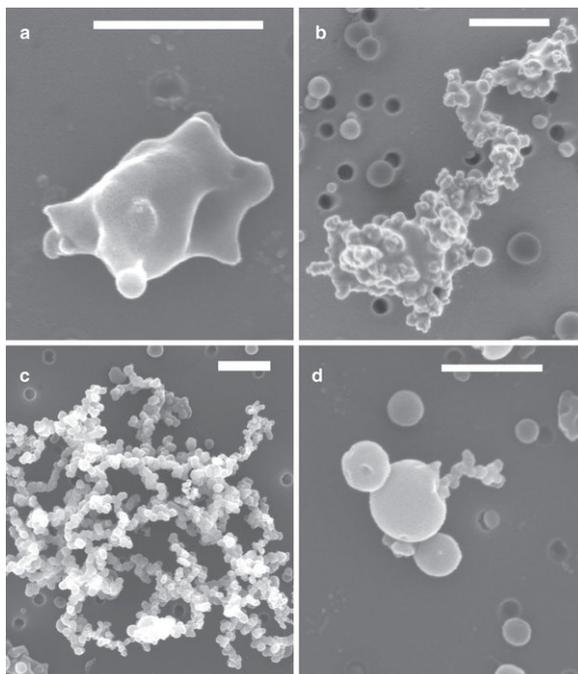


Рисунок 1.2 — Пример сложных сажевых аэрозольных частиц.

30 нанометров [63]; аэрозольные кластеры размером около 1 – 2 микрон, состоящие из нескольких сферических частиц размером 0,1 – 0,5 микрона (Рисунок 1.2d). Для таких частиц необходимо учесть то, что молекула может испытать целую цепь столкновений с различными частями агрегата, прежде чем вернётся в газовую среду, а значит, передать импульс и энергию частице неоднократно.

Для того чтобы рассчитать фотофоретическую силу, действующую на выпуклую аэрозольную частицу, необходимо решить две подзадачи: 1) электродинамическую – рассчитать пространственно-временные характеристики поглощённого частицей электромагнитного излучения и 2) газокинетическую – рассчитать передаваемый молекулами газа импульс. Если аэрозольная частица имеет сферическую форму, то поглощение ею электромагнитного излучения может быть описано теорией Ми для произвольных параметров дифракции  $\rho = \pi D/\lambda$  [64]. Расчёты фотофоретической силы для несферических частиц посвящены работы [65–67].

Для расчёта газокинетической части сделаем сначала предположение, что частица покоится относительно окружающего газа. Сделаем также допущение о том, что выполняются условия свободно молекулярного приближения [68; 69]. Пусть окружающий газ имеет давление  $p$  и температуру  $T$ . Пусть все потоки энергии и импульса через поверхность частицы стационарны, т.е. соблюдается стационарный режим. Тогда для каждой элементарной площадки поверхности частицы должно выполняться условие материального баланса по числу падающих и отражённых молекул. Поток падающих молекул определяется параметрами окружающего газа.

Это можно записать следующим образом:

$$\mathbf{v}_+ = \mathbf{v}_-, \mathbf{v}_+ = \frac{p}{4k_B T} v_T, v_T = \sqrt{\frac{8k_B T}{\pi m}}. \quad (1.7)$$

Здесь  $\mathbf{v}_+$  и  $\mathbf{v}_-$  – плотности потока числа падающих и отражённых от поверхности молекул,  $v_T$  – средняя тепловая скорость молекул,  $k_B$  – константа Больцмана,  $m$  – средняя масса молекул. Плотность потока импульса на поверхности аэрозольной частицы при этом равна

$$p_S = \frac{\pi}{4} \mathbf{v}_+ \cdot m [(1 - \alpha)v_T(T) + \alpha v_T(T_S)] \approx p + \frac{p}{4T} \cdot \alpha_S \Delta T_S \quad (1.8)$$

где  $\alpha$  – коэффициент аккомодации. Выражение 1.8 сформулировано для случая малости отличия температуры элемента поверхности частицы  $T_S$  от температуры газа  $T$ , т.е. для случая, когда выполняется условие:  $\Delta T_S/T = (T - T_S)/T \ll 1$ .

Для аэрозольной частицы выпуклой формы суммарная величина действующей на неё фотофоретической силы  $\vec{F}_{ph}^*$  определяется интегралом:

$$\vec{F}_{ph}^* = \int_S p_S \cdot d\vec{S} = \frac{p}{4T} \int_S \alpha_S \Delta T_S \cdot d\vec{S}, \quad (1.9)$$

где интегрирование ведётся по всей поверхности частицы, а вектор элементарной площадки  $d\vec{S}$  направлен по внутренней нормали к поверхности.

Если предположить, что температура поверхности частицы одинакова во всех точках и равна  $T_a$ , т.е.  $\Delta T_S \approx \Delta T_a - T$ , для фотофоретической силы  $\Delta\alpha$ -типа получим известное [70] выражение:

$$\vec{F}_{ph\alpha}^* = \frac{p \cdot \Delta T}{4T} \int_S \alpha_S d\vec{S} = \frac{p \cdot S \cdot \Delta T}{4T} \Delta\alpha \cdot \vec{e}_\alpha, \quad (1.10)$$

где  $\vec{e}_\alpha$  – единичный вектор по направлению силы,  $S$  – площадь частицы,

$$\Delta\alpha = \frac{1}{S} \left| \int_S \alpha_S d\vec{S} \right| \quad (1.11)$$

В общем случае, выражения с 1.9 по 1.11 годятся не только для определения величины фотофоретической силы, действующей на аэрозольную частицу в условиях свободномолекулярного режима ( $Kn \gg 1$ ), но и являются неплохой аппроксимацией в области переходного режима ( $Kn \sim 1$ ). В условиях атмосферы Земли для частиц микронного размера область с  $Kn < 1$  лежит ниже высот 17-19 километров.

В стационарных условиях, кроме условия материального баланса, должно выполняться условие теплового баланса

$$H + A_V I + \Phi_{abs} - \Phi_{emi} = 0 \quad (1.12)$$

где  $A_V I$  – поток солнечной энергии, поглощаемый частицей,  $A_V$  – эффективное сечение поглощения в видимом диапазоне,  $I$  – плотность потока солнечной энергии,  $\Phi_{abs}$  – поток ИК излучения Земли,  $\Phi_{emi}$  – поток ИК излучения, эмитируемого частицей. Плотность молекулярного потока энергии в свободно молекулярном режиме

$$dH/dS = -\alpha_S \cdot c_{v,ef} \cdot \Delta T_S \cdot v_+ = -\alpha_S \cdot c_{v,ef} \cdot \frac{p}{4k_B T} \cdot v_T \cdot \Delta T_S$$

Суммарный поток тепла, переносимый молекулами при  $\Delta T_S = \Delta T$ ,

$$H = -\bar{\alpha} \cdot c_{v,ef} \cdot v_T \cdot \frac{p}{4k_B T} \cdot S \cdot \Delta T,$$

где  $\bar{\alpha} = \frac{1}{S} \int_S \alpha_S dS$  – среднее значение коэффициента термической аккомодации,  $c_{v,ef} = c_v + \frac{1}{2}k_B$  есть эффективная теплоёмкость молекул. Для двухатомных молекул атмосферного газа  $c_{v,ef} \approx 4k_B$ . Уравнение 1.12 определяет температуру частицы и, следовательно, величину силы.

Таким образом, определение величины фотофоретической силы, действующей на аэрозольную частицу в газовой среде, при известном распределении температуры, сводится к некоторому интегралу по поверхности (1.9). Распределение температур по ней и в объёме частицы определяется балансом между выделением энергии внутри неё при поглощении электромагнитного потока солнечного и/или ИК излучения и её стоком в окружающее пространство за счёт теплового излучения и молекулярного теплообмена с газовой средой. Реально существующие в атмосфере Земли условия ограничивают диапазон возможных ситуаций, в которых могут варьироваться термодинамические характеристики взаимодействующей системы аэрозольные частицы + газовая среда в присутствии солнечного и ИК излучения.

## 1.6 Формулировка физической проблемы и общие подходы к решению

Представим себе следующую ситуацию. Пусть в атмосфере находится частица, достаточно хорошо поглощающая солнечное излучение. Пусть коэффициент

аккомодации одинаков во всех точках поверхности частицы, и, кроме того, будем считать, что её поверхность разогрета равномерно. В этом случае никакой фотофоретической силы, действующей на эту одиночную частицу, не возникает. Теперь предположим, что неподалёку от такой частицы расположена другая частица. Для упрощения рассуждений будем считать, что частицы имеют выпуклую форму. В достаточно разреженном газе, когда справедливо приближение свободномолекулярного режима, на участки поверхностей частиц, которые обращены в противоположные стороны друг относительно друга, в основном падают только молекулы из окружающей аэрозольные частицы газовой среды, имеющие максвелловское распределение по скоростям с температурой, равной температуре этой газовой среды. После соударения молекулы возвращаются в газовую среду, где происходит их термализация.

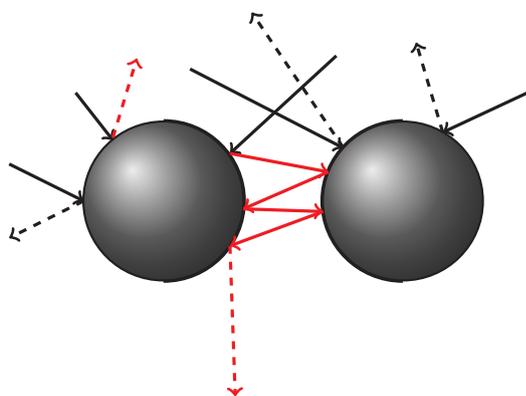


Рисунок 1.3 — Молекулярные траектории, возникающие в аэрозольной системе из двух частиц.

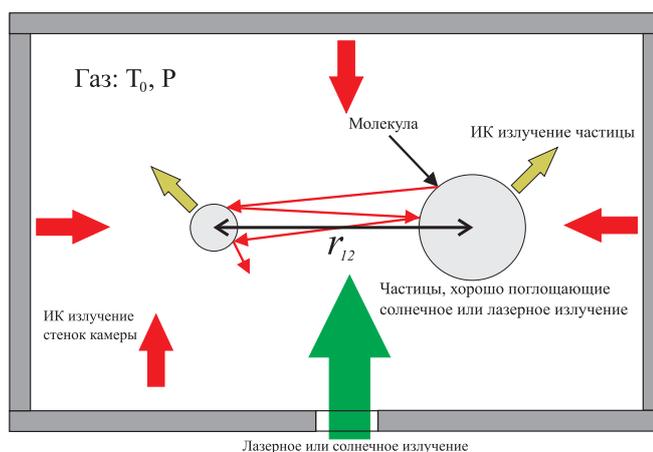


Рисунок 1.4 — Схематическое представление радиационных потоков в условиях вакуумной аэрозольной камеры.

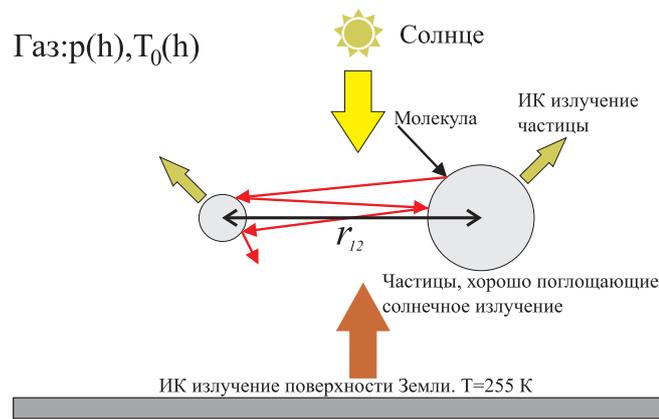


Рисунок 1.5 — Схематическое представление радиационных потоков для атмосферных условий.

В это же время на части поверхностей частиц, обращённых друг к другу, могут падать как молекулы из невозмущённой газовой среды, так и молекулы, которые претерпели соударение с другой аэрозольной частицей. Если температура поверхностей аэрозольных частиц выше температуры окружающего газа, тогда молекулы после столкновения с такими поверхностями в среднем имеют большую энергию и импульс, чем молекулы окружающего газа (Рисунок 1.3). В результате столкновения молекул, несущих избыточный импульс и энергию, с теми частями поверхностей частиц, которые обращены друг к другу, возникает сила, отталкивающая аэрозольные частицы друг от друга. Если температура поверхностей частиц меньше температуры окружающего газа, то возникает обратный эффект, и частицы испытывают притяжение друг к другу. Такую силу можно назвать силой фотофоретического взаимодействия. *Общей чертой, объединяющей предполагаемый эффект фотофоретического взаимодействия с другими фотофоретическими явлениями, является то, что под влиянием света нарушается равномерность аккомодации молекулярной энергии и импульса по поверхности частицы в целом. В данном случае эта неравномерность возникает из-за влияния других частиц, находящихся в газовой среде.*

Необходимо провести исследование предполагаемого эффекта фотофоретического взаимодействия. Следует отметить, что проведение натурального эксперимента для выявления свойств такого рода эффектов является трудоёмким и дорогостоящим. Поэтому, прежде чем приступать к проведению натуральных экспериментов, необходимо дать предварительные оценки самого эффекта и его влияния на аэрозоли, определить его место в общей системе знаний об аэрозолях. Для этого изберём метод компьютерного моделирования, позволяющий на основе численных

расчётов, оценить эффект фотофоретического взаимодействия и его влияния на аэрозоли с разных сторон.

Будем рассматривать только сферические аэрозольные частицы, поскольку только для них существует строгая теория Ми поглощения ими электромагнитного излучения и хорошо проработанная схема расчёта температур поверхностей из решения уравнений теплового баланса [71]. Будем считать, что коэффициент аккомодации одинаков во всех точках поверхности аэрозольной частицы.

Таким образом, предстоит найти ответы на следующие вопросы:

1. Какова величина силы фотофоретического отталкивания для сферических аэрозольных частиц, хорошо поглощающих видимое излучение? Целесообразнее всего соотнести силу фотофоретического отталкивания с силой тяжести, действующей на частицу в поле тяготения Земли.
2. От каких параметров существенно зависит величина силы фотофоретического отталкивания?
3. Каков характер зависимости силы фотофоретического отталкивания от расстояния между центрами частиц.
4. Каков характер зависимости силы фотофоретического отталкивания от размера частиц?
5. Оказывает ли фотофоретическое отталкивание влияние на коагуляцию аэрозольных частиц?

Итак, расчёт фотофоретической силы, действующей на аэрозольную частицу выпуклой формы, сводится к нахождению интеграла (1.9) от плотности потока импульса на поверхности частицы. Аналитическое вычисление этого интеграла не представляет трудностей для отдельных сферических частиц.

Но, как уже отмечалось ранее, реальные частицы существенно отличаются от простой формы, хорошо поддающейся аналитическому описанию. В них возникают процессы молекулярного теплообмена и переноса импульса молекулами между различными частями аэрозольного агрегата и газовой средой, поскольку в общем случае молекула может испытать целую цепь столкновений с разными участками поверхности одного агрегата, прежде чем вернётся в газовую среду, а значит передать импульс и энергию частице неоднократно. Характер явления переноса импульса и энергии молекулами газовой среды, становится существенно сложнее, и им нельзя пренебречь. В то время как для частицы сферической или цилиндрической формы, молекула газовой среды после первого же столкновения с поверхностью частицы всегда возвращается в газовую среду, покидая пределы

аэрозольной системы. Для аэрозольных частиц, при взаимодействии с которыми молекулы газа могут многократно сталкиваться с её поверхностями, аналитическое вычисление фотофоретической силы, естественно, становится невозможным.

Для явления фотофоретического взаимодействия аэрозольных частиц многократное столкновение молекул газовой среды с их поверхностями играет определяющую роль. Поэтому в данной работе поставлена задача разработки вероятностной модели, описывающей фотофоретическое взаимодействие в разреженной газовой среде между поглощающими излучение аэрозольными частицами и кластерами, состоящими из сферических частиц. Необходимо разработать обобщённую вероятностную модель, на основе которой стало бы возможно построить эффективные алгоритмы расчёта переноса импульса в сложных многоэлементных аэрозольных системах, включающих в себя и системы пары сферических частиц.

## Глава 2. Разработка вероятностной модели и алгоритмов на основе метода Монте-Карло для расчёта фотофоретического взаимодействия аэрозольных частиц

### 2.1 Физическая и геометрическая модели задачи расчёта фотофоретической силы

Рассмотрим некоторую аэрозольную систему, состоящую из сферических аэрозольных частиц, хорошо поглощающих солнечное излучение, погружённых в разреженную неподвижную однородную газовую среду с параметрами:  $T_0$  – температура,  $p$  – давление,  $m$  – средняя масса молекул. Такая аэрозольная система, в общем случае, представляет собой как разрозненные сферические частицы, так и аэрозольный кластер, где частицы имеют точки соприкосновения. Сами аэрозольные частицы представлены сферическими аэрозольными поверхностями, расположение центров которых и радиус известны априори. Например, система двух аэрозольных частиц представлена на Рисунке 2.1 справа, а слева геометрическая модель аэрозольного агломерата.

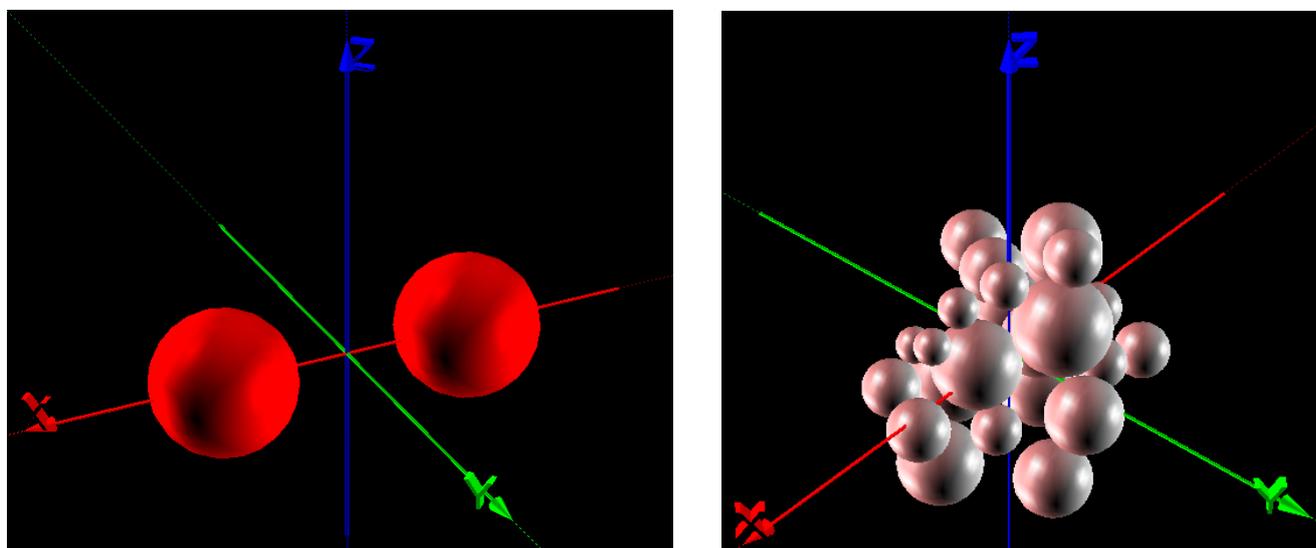


Рисунок 2.1 — Иллюстрация к модели аэрозольной системы двух сферических частиц (слева) и аэрозольного агломерата (справа)

Число частиц в аэрозольной системе обозначим  $N$ . Соответственно, пронумеруем аэрозольные поверхности целочисленным неотрицательным индексом  $i = 1 \dots N$ . Множество точек, принадлежащих аэрозольной поверхности с индексом  $i$ , обозначим  $S_i$ , а отдельные точки поверхности будем обозначать символом  $s$ ,

указывая, при необходимости, индекс принадлежности к поверхности, например,  $s_i$ . Температура поверхности аэрозольной частицы с индексом  $i$  предполагается постоянной и равной  $T_i$ . Аэрозольные частицы считаются неподвижными относительно газовой среды.

Скорости молекул газовой среды подчиняются Максвелловскому распределению по скоростям:

$$f_M(v|T) = \frac{4}{\sqrt{\pi}} \left( \frac{m}{2k_B T} \right)^{\frac{3}{2}} v^2 \exp \left( -\frac{mv^2}{2k_B T} \right), \quad (2.1)$$

где  $k_B$  – константа Больцмана, а  $T$  – температура. Молекулы газовой среды соударяются с аэрозольными поверхностями, сообщая частицам импульс. В общем случае молекула может испытать целую цепь столкновений с аэрозольными поверхностями. Попав сначала на одну из них, она имеет шанс достичь другой аэрозольной поверхности, затем третьей и так далее. Число таких последовательных столкновений конечно, и, рано или поздно, молекула возвращается в газовую среду.

Для расчёта фотофоретической силы необходимо сначала определить поступающий на поверхности частиц поток молекул. В связи с этим очень удобно построить вокруг аэрозольной системы виртуальную сферу – опорную поверхность (опорную сферу) радиусом  $R_0$  (Рисунок 2.2). Опорная сфера ограничивает

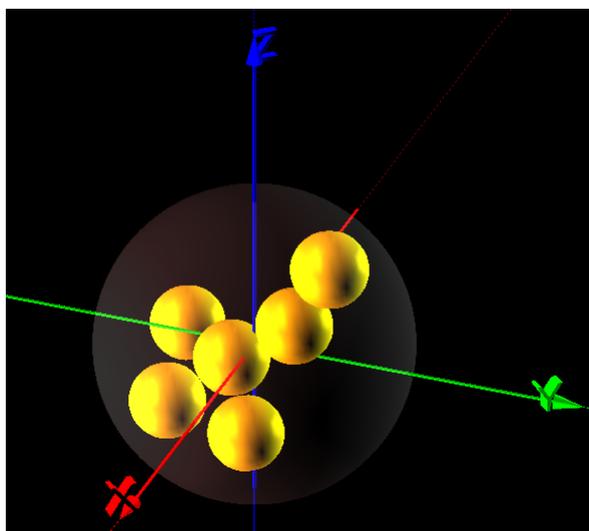


Рисунок 2.2 — Иллюстрация к модели аэрозольной системы и опорной сферы

пространство, занимаемое аэрозольной системой в газовой среде. Радиус опорной сферы выбирается таким, чтобы это была максимально облегающая сфера, т.е. сфера с минимально возможным радиусом, которую можно описать вокруг аэрозольной системы, чтобы ни одна точка поверхности  $s_i$  не выходила за её пределы.

Очевидно, что для системы двух частиц радиусами  $r_1$  и  $r_2$   $R_0 = (r_1 + r_2 + r_{12})/2$ , где  $r_{12}$  – расстояние между центрами частиц. Опорной сфере присвоен индекс  $i = 0$ .

По размеру получающейся опорной сферы можно провести разграничение молекулярных режимов. Под разреженной газовой средой будем понимать такую среду, для которой число Кнудсена  $Kn = l_{av}/R_0 \gg 1$ , где  $l_{av}$  – средняя длина свободного пробега молекул газа.

Также для каждой поверхности (кроме опорной) определён коэффициент аккомодации  $\alpha$ , трактуемый, в соответствии с зеркально-диффузионной схемой Максвелла, как вероятность идеального диффузного отражения молекулы с распределением по скоростям, соответствующим температуре поверхности в точке соударения, а  $(1 - \alpha)$  – вероятность зеркального отражения [72] (Рисунок 2.3). В

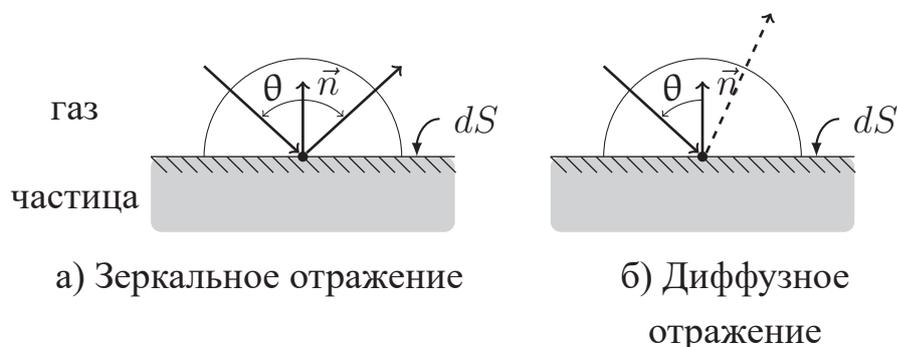


Рисунок 2.3 — Зеркально-диффузионная схема взаимодействия молекул с элементом поверхности аэрозольной частицы

данной работе допущено, что коэффициент аккомодации  $\alpha = 0,5$  для всех частиц. Такой выбор основан на результатах исследования литературы и практики. Так, например, есть сообщения о значениях коэффициентов аккомодации от  $\alpha = 0,1$  до  $\alpha = 0,8$  [73—77] для различных газов, видов поверхностей и их структурных особенностей. Поэтому было выбрано некоторое срединное значение.

Итак, невозмущённая молекула газа попадает внутрь пространства, ограниченного опорной сферой. Необходимо описать молекулярный теплообмен, происходящий в системе, и рассчитать потоки импульса, проходящие через все аэрозольные поверхности. Молекулы поступают в аэрозольную систему с различными скоростями, согласно максвелловскому распределению по скоростям (2.1) с  $T = T_0$ . Задача усложняется тем фактом, что молекулы изменяют свою скорость, когда взаимодействуют с поверхностями аэрозольной системы, температуры которых отличны от температуры окружающего газа.

Величина газокINETической силы, действующей на частицу с индексом  $i$  со стороны молекул из максвелловского распределения с температурой  $T_k$  может быть представлена в виде интеграла:

$$\vec{F}_{ph}^i = \int_S \left[ \left( \frac{m}{2\pi k_B T_k} \right)^{3/2} m \int_0^\infty \left( \int_{\Omega^+(S)} N_{T_k}^+ \frac{\vec{v}_+}{|\vec{v}_+|} d\Omega - \int_{\Omega^-(S)} N_{T_k}^- \frac{\vec{v}_-}{|\vec{v}_-|} d\Omega \right) v^4 e^{-\frac{mv^2}{2k_B T_k}} dv \right] dS \quad (2.2)$$

где  $\Omega^+(S)$  и  $\Omega^-(S)$  угловые пространства их прихода и ухода молекул,  $N_{T_k}^+$  и  $N_{T_k}^-$  - плотности соответствующих молекулярных потоков.

Следует отметить, что для всех молекул, которые начали свой путь по аэрозольной системе из одной и той же точки на поверхности опорной сферы и в одном и том же направлении, справедливо утверждение, что они будут перемещаться по набору траекторий, который *не зависит ни от величины скорости, ни от исходной энергии молекул*. Это позволяет сильно упростить расчётную схему переноса энергии и силового воздействия со стороны газа на аэрозольную систему, прибегнув к применению метода Монте-Карло [78—81]. Можно перейти от рассмотрения физической модели пространственных траекторий реальных молекул к вероятностно эквивалентной ей модели – вероятностной модели. В результате, задача сводится к воспроизведению равномерно-случайного распределения начальных точек молекулярных траекторий (иначе говоря, начального состояния) на опорной сфере и выбору плотности распределения по углам вылета пропорционально косинусу угла наклона исходящей траектории по отношению к внутренней нормали сферы.

## 2.2 Вероятностная модель взаимодействия аэрозольной системы с разреженной газовой средой

Процесс, при котором молекула попадает в пространство аэрозольной системы, испытывает серию столкновений и, в конечном итоге, покидает её, может рассматриваться как однородная обрывающаяся цепь Маркова столкновений молекул с поверхностями аэрозольной системы, а рассматриваемая вероятностная модель может рассматриваться как базис алгоритма моделирования пространственных траекторий молекул, возникающих в аэрозольной системе.

Начальное состояние цепи соответствует старту молекулярной траектории с опорной сферы внутрь её, а обрыв цепи происходит, когда молекула вновь пересекает опорную сферу.

Моделируемую молекулу можно охарактеризовать состоянием  $x^+, x^- = (s, \Omega, v)^\pm$ , состоящим из направления элемента телесного угла  $\Omega$ , в котором движется молекула, точки  $s$ , откуда приходит или куда приходит молекула, и её скорости, определяемой температурой. Здесь и далее индекс «+» означает рассмотрение параметров падающих на поверхность молекул, а индекс «-» рассмотрение параметров молекул её покидающих. Соответственно, при индексе «+» рассматриваются параметры молекулы до соударения с поверхностью, а при индексе «-» параметры молекулы, испытавшей соударение.

Определим плотность потока молекул, поступающих в аэрозольную систему через опорную поверхность. Если поверхность неподвижна относительно газа, средний физический элементарный поток числа молекул через элемент площади  $dS$ , в направлении  $\vec{e}_\Omega$ , в пределах элемента телесного угла  $d\Omega = \sin \theta \cdot d\theta \cdot d\varphi$ , в интервале скоростей от  $v$  до  $v + dv$ , определяется выражением:

$$d^3 J = nv f_M(v|T) \frac{\cos \theta}{4\pi} dS d\Omega dv, \quad (2.3)$$

где  $f_M(v|T)$  – распределение Максвелла (2.1),  $n$  – объёмная концентрация частиц газа,  $v$  – модуль скорости молекул,  $\theta$  – угол между единичной нормалью  $\vec{e}_s$  к площадке  $dS$  и направлением движения молекул в пучке  $\vec{e}_\Omega$ ,  $\vec{e}_\Omega = \frac{\vec{v}}{v}$ ,  $\cos \theta = (\vec{e}_s, \vec{e}_\Omega)$ . Введём следующие обозначения. Полусферическая плотность потока числа молекул для газа с температурой  $T$  и давлением  $p$  (1.7):

$$j(T) = \frac{nv(T)}{4} = \frac{p}{4k_B T} v(T) \quad (2.4)$$

Средняя тепловая скорость молекул при температуре  $T$ :

$$v(T) = \sqrt{\frac{8k_B T}{\pi m}}$$

Плотность распределения потока молекул  $g_0$ :

$$g_0(s, \Omega, v) = G_{S\Omega}(s, \Omega) \cdot g_M(v|T) \quad (2.5)$$

Распределение по скоростям в потоке молекул с температурой  $T$ :

$$g_M(v|T) = \frac{v f_M(v|T)}{v(T)} \quad (2.6)$$

Пространственно–угловое распределение потока молекул  $G_{S\Omega}$ :

$$G_{S\Omega}(s, \Omega) = g_s(s) g_\Omega(\Omega|s), \quad (2.7)$$

где  $g_s(s) = 1/S_0$  – плотность распределения по площади опорной поверхности,  $g_\Omega(\vec{\Omega}|s) = \frac{(\vec{e}_s, \vec{e}_\Omega)}{\pi}$  – полусферическая индикатриса или плотность распределения по телесному углу в локальной системе координат (Рисунок 2.4) в точке поверхности  $s$ .  $\vec{e}_s$  – внутренняя нормаль к опорной поверхности,  $S_0 = 4\pi R_0^2$  – площадь опорной поверхности. Используя эти обозначения, для всей опорной поверхности можно

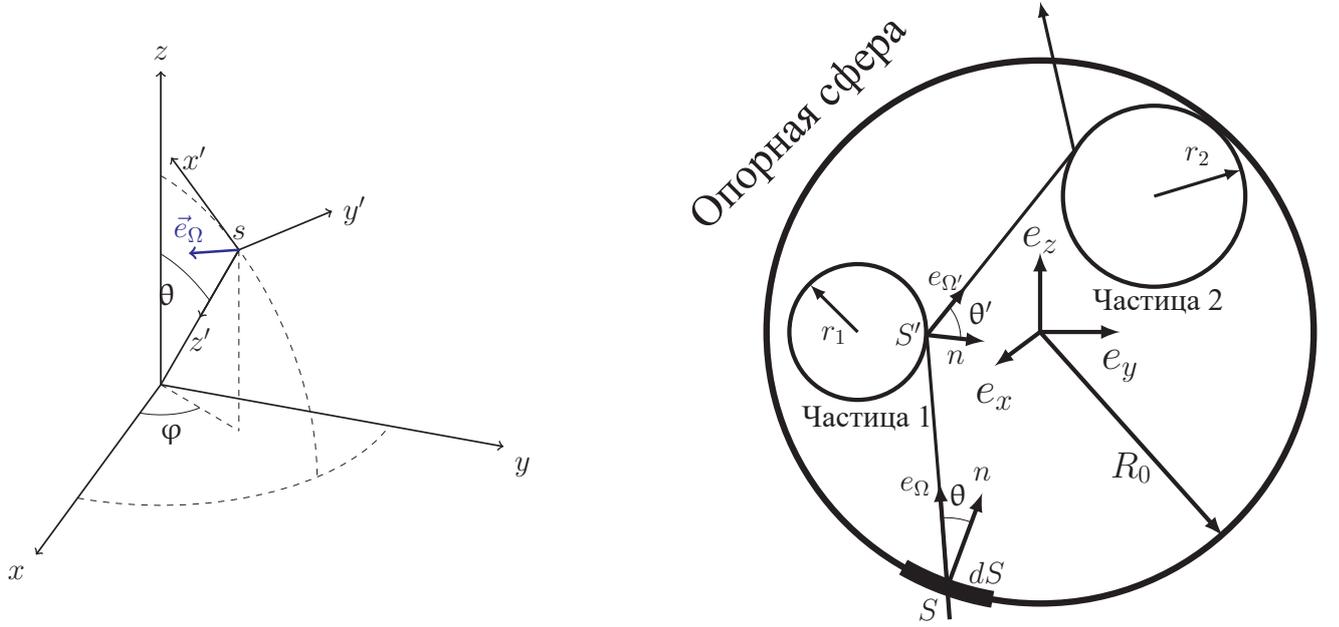


Рисунок 2.4 — Локальная система координат

записать поток молекул:

$$d^3J = j_0 \cdot S_0 \cdot g_0(s, \vec{\Omega}, v) \cdot ds \cdot d\Omega \cdot dv \quad (2.8)$$

Для распределений  $g_s, g_M, g_\Omega, G_{S\Omega}, g_0$  устанавливаются следующие условия нормировки:

$$\begin{aligned} \int_{S_0} g_s(s) ds &= 1, \\ \int_0^\infty g_M(v|T) dv &= 1, \\ \int_{\Omega^-} g_\Omega(\Omega|s) d\Omega &= 1, \\ \int_{S_0} \int_{\Omega^+(s)} G_{S\Omega}(s, \Omega) ds d\Omega &= 1, \\ \int_{S_0} \int_{\Omega^+(s)} \int_V g_0(s, \Omega, v) ds d\Omega dv &= 1 \end{aligned}$$

Здесь  $\Omega^-$  и  $\Omega^+$  означает полусферическую область углов.

Плотность начального состояния связана с физической плотностью потока молекул через опорную поверхность как равная нормированной на единицу плотности  $g_0(s, \Omega, v)$ :

$$f_0(x) = g_0^-(x) = g_0(s, \Omega, v),$$

где  $x = x_0^- = (s, \Omega, v)$ ,  $s \in S_0$ , а  $v = v(T) = v(T_0)$ .

Теперь можно рассмотреть переходы состояний моделируемых молекул. Рассмотрим произвольный переход. Пусть молекула приходит в некоторую точку  $s$  поверхности  $S_j$ . До этого она испытала соударение с поверхностью  $S_{j-1}$  и покинула её в точке  $s' \in S_{j-1}$ :

$$x' = x_{j-1}^- \rightarrow x_j^+ = x$$

Между точками  $s'$  и  $s$  молекула движется равномерно и прямолинейно. Молекула достигла точки  $s$  и тогда имеет место переход:

$$x' = x_j^+ \rightarrow x_j^- = x,$$

осуществляемый согласно Максвелловской зеркально-диффузионной схеме отражений с вероятностью  $\alpha(s)$  диффузно, с вероятностью  $(1 - \alpha(s))$  зеркально.

Потоки физических величин, через поверхность  $S_i$  определяются следующим выражением:

$$J_h = \gamma_h \left[ \int_{S_i} \int_{\Omega^+(s)} \int_V h(x) g^+(x) ds d\Omega dv - \int_{S_i} \int_{\Omega^-(s)} \int_V h(x) g^-(x) ds d\Omega dv \right] \quad (2.9)$$

Выражение (2.9) отражает разность между входящим (первый член правой части) и исходящим (второй член правой части) потоком физической величины, тем самым определяя результирующий поток. Общий множитель  $\gamma_h = j_0 S_0$ . То, какая именно физическая величина рассматривается, определяется функцией  $h(s, \Omega, v)$ . Для потоков числа молекул  $h = 1$ . Для расчёта потоков импульса, собственно и определяющих фотофоретическую силу,  $h = m\vec{v}$ . Можно разложить  $h = m\vec{v} = m\vec{e}_\Omega v$ . Для потоков молекулярной энергии  $h = mv^2/2 + \varepsilon_{int}$ , где  $\varepsilon_{int}$  – внутренняя энергия молекул.

Итак, по сути, имеет место следующая ситуация. Для каждой аэрозольной поверхности с индексом  $i$  имеет место входящий поток молекул и исходящий. Во входящем потоке могут быть молекулы как из невозмущённой газовой среды, с температурой  $T_0$ , так и те, которые испытали диффузное отражение с другими поверхностями, имеющими температуру  $T_j$ . В исходящем потоке та же ситуация. Плотности потоков для каждого температурного индекса зависят от геометрии аэрозольной системы.

$$P_{ij} = \int_0^{\infty} F_M(v|T_j) \cdot mv \cdot \left( \int_{\Omega_i^+(S)} N_{T_j}^+ \vec{e}_{\Omega} d\Omega - \int_{\Omega_i^-(S)} N_{T_j}^- \vec{e}_{\Omega} d\Omega \right) dv$$

В работе [23] показано, что можно провести редукцию и перейти от рассмотрения непрерывного максвелловского распределения по скоростям к дискретному набору температур и понизить порядок задачи за счёт специального разложения рядов Неймана по разделяющимся переменным скоростям и пространственным координатам молекул. Фактически, реализация некоторой траектории молекулы соответствует случайной реализации пучка молекул с максвелловским распределением по скоростям с температурой, изменяющейся от одной части траектории к другой.

При таком подходе очень удобно охарактеризовать моделируемый процесс специальными индикаторами. Индикатор  $\chi_T$  служит для отслеживания изменяющихся температур молекулярных пучков из-за аккомодации импульса, когда молекулы сталкиваются с поверхностями аэрозольной системы. Его значения определяются числом температур в системе:  $\chi_T = 0, \dots, N$ . Индикатор  $\chi_S$  предназначен для отслеживания индекса поверхности, с которой сталкивается молекула.

Статистические расчёты удобно проводить для системы геометрически эквивалентной оригиналу, но отмасштабированной таким образом, чтобы радиус опорной сферы был равен 1 (обезразмеривание). Следует обратить внимание на то, что при выборе размера опорной сферы, в практической реализации, устанавливать её размер в точности равным размерам аэрозольной системы не имеет практического смысла, поскольку возникают области на опорной сфере очень близкие к поверхностям аэрозольных частиц, а в двух точках она вообще совпадает с ними. Это приводит к излишним сложностям в реализации алгоритма статистического моделирования. Но достаточно выбрать опорную сферу чуть больше, чем минимально возможная, и эти сложности исчезают. В практической реализации принято выбирать размер опорной сферы на 0,015% большим, чем минимальный.

### 2.3 Алгоритм решения задачи на основе использования специальных матриц переноса

Алгоритм заключается в следующей последовательности действий.

1. На поверхности опорной сферы реализуется начальная точка  $s \in S_0$  молекулярной траектории с состоянием  $(s, \vec{e}_\Omega)$ :

- а) Опорная сфера имеет радиус равный 1. Вероятность того, что начальная точка находится в элементе  $dS$ , составляет  $dP = d\Omega/4\pi$ , где  $d\Omega$  – телесный угол, исходящий из центра опорной сферы, и задача сводится к моделированию случайного изотропного вектора. Для определения точки на опорной сфере генерируются два независимых стандартных случайных числа  $\psi_1$  и  $\psi_2$ . Компоненты радиус-вектора  $\vec{R}$ , направленного из центра в точку сферы, рассчитываются по следующим формулам:

$$R_z = 1 - 2\psi_1, R_y = \sqrt{1 - R_z^2} \sin 2\pi\psi_2, R_x = \sqrt{1 - R_z^2} \cos 2\pi\psi_2$$

- б) Определяется направляющий вектор траектории  $\vec{e}_\Omega$ . В точке  $s$  поверхности строится локальная система координат и рассчитывается матрица преобразования компонент векторов их локальной системы в исходную. В локальной системе координат осуществляется моделирование случайного единичного вектора, направленного в полупространство с плотностью вероятности  $\cos \theta/\pi$ , где  $\theta$  угол между направлением движения и нормалью к поверхности. Генерируются два независимых стандартных случайных числа  $\psi_1$  и  $\psi_2$ . Компоненты вектора  $\vec{e}_\Omega$  рассчитываются по формулам:  $e_z = \sqrt{\psi_1}$ ,  $e_y = \sqrt{1 - \psi_1} \sin 2\pi\psi_2$ ,  $e_x = \sqrt{1 - \psi_1} \cos 2\pi\psi_2$ . Затем компоненты этого вектора пересчитываются в исходную систему координат. Значения индикаторов  $\chi_T$  и  $\chi_S$  устанавливаются равными нулю.

2. Ищется следующая точка пересечения молекулярной траектории с какой-либо аэрозольной поверхностью. Индикатору  $\chi_S$  присваивается значение, соответствующее индексу поверхности. Если траектория вновь пересекает опорную поверхность, то траектория обрывается.

3. С вероятностью  $\alpha$  реализуется диффузное отражение. Соответственно, с вероятностью  $(1 - \alpha)$  реализуется зеркальное отражение.

а) В случае зеркального отражения индикатор  $\chi_T$  не меняет своего значения, а направляющий вектор  $\vec{e}_\Omega$  рассчитывается по простой формуле  $\vec{e}'_\Omega = \vec{e}_\Omega - 2(\vec{e}_\Omega, \vec{e}'_s)\vec{e}'_s$ , где  $\vec{e}'_s$  – вектор нормали к поверхности в точке  $s$ , а  $\vec{e}_\Omega$  – направляющий вектор траектории до столкновения. Если происходит диффузное отражение, то в точке  $s$  пересечения молекулярной траектории с поверхностью строится локальная система координат и рассчитывается матрица преобразования компонент вектора из локальной системы координат в исходную. Новое направление траектории выбирается в соответствии с полупространственной индикатрисой  $\cos \theta/\pi$ , а затем компоненты направляющего вектора пересчитываются в исходную систему координат. Индикатору  $\chi_T$  присваивается значение равное индексу температуры поверхности, с которой столкнулась траектория.

4. Цепь столкновений продолжается в результате повторения шагов 2 и 3 алгоритма.

Матрицы переноса могут быть получены в результате оценки веса в статистическом моделировании как математическое ожидание случайных величин:

$$\zeta_{i,k,c}^F = \sum_{j=0}^N [e_{\Omega c}(s_j, \Omega_j^+) - e_{\Omega c}(s_j, \Omega_j^-)] \delta_{i,\chi_s} \delta_{k,\chi_T}, P_{i,k,c}^F = E\zeta_{i,k,c}^F, c = x, y, z$$

Здесь суммирование производится по столкновениям. Индекс  $j$  означает номер столкновения, а  $N$  полное число столкновений. Статистическое усреднение значений  $\zeta_{i,k,c}^F$  производится по числу реализаций пространственных траекторий, смоделированных по алгоритму, описанному выше. Знак плюс соответствует параметрам до столкновения в точке  $s_j$ , а знак минус относится к параметрам после столкновения. Символ  $\delta_{ij}$  – символ Кронекера, равный 1, когда значения индексов равны, а в противном случае его значение равно нулю.

Фотофоретическая сила, действующая на систему частиц или на отдельную её частицу, определяется потоком импульса через поверхность аэрозольных тел частиц или тела, соответственно. Для определённости будем рассматривать аэрозольную частицу с индексом 1. Для остальных частиц выражения для силы такое же. Используя матрицы переноса, выражение для расчёта фотофоретической силы

имеет следующий вид:

$$F_{1,c}^{ph} = 3\pi R_0^2 (p/\sqrt{T_0}) \sum_{k=1}^n P_{1,k,c}^F (\sqrt{T_k} - \sqrt{T_0}), \quad c = x, y, z \quad (2.10)$$

Здесь  $P_{i,k,c}^F$  означает элементы матрицы переноса импульса. Первый индекс соответствует индексу частиц в системе, второй – индексу температуры молекулы, соударяющейся с частицей, определённой набором  $T = T_1, T_2, \dots, T_n$ . Суммирование производится по всем температурам в системе. Элементы матрицы переноса не зависят от давления и температуры газа. Множитель  $R_0^2$  возникает из-за того, что статистические расчёты проделаны в обезразмеренной системе.

Температуры поверхностей частиц определяются из решения системы нелинейных уравнений теплового баланса. В данной работе использована упрощённая модель теплового баланса, применённая ранее для в работе [71]. Эта модель предполагает, что, во-первых, температура поверхности каждой конкретной частицы, формирующей систему, считается примерно постоянной и равной  $T_i$ ; во-вторых, каждая из частиц поглощает и испускает энергию независимо друг от друга; в-третьих, аэрозольная система достигла стационарного состояния тепловых потоков. В этом приближении уравнение теплового баланса для каждой частицы имеет вид:

$$\frac{dQ_i}{dt} = \sum_{k=0}^n \lambda_{ik} (T_k - T_i) + \Phi_{abs,i}^V + \Phi_{abs,i}^{IR} - \Phi_{emi,i}^{IR} = 0, \quad i = 1, \dots, n \quad (2.11)$$

Первое слагаемое описывает молекулярный транспорт тепла как между самими частицами, так и между частицами и газовой средой.  $\Phi_{abs,i}^{IR}$  и  $\Phi_{abs,i}^V$  потоки ИК радиации и видимого излучения, поглощаемого частицей.  $\Phi_{emi,i}^{IR}$  - поток излучаемой частицей ИК радиации. Коэффициенты молекулярного переноса получаются из матрицы молекулярного переноса в результате статистического моделирования. Для лабораторных условий были приняты следующие выражения радиационных потоков:

$$\begin{aligned} \Phi_{abs}^V &= \pi r^2 I \epsilon_{abs}^V, \\ \Phi_{abs}^{IR} &= 4\pi r^2 \sigma T_W^4 \epsilon_{abs}^{IR}, \\ \Phi_{emi}^{IR} &= 4\pi r^2 \sigma T_S^4 \epsilon_{abs}^{IR}, \end{aligned} \quad (2.12)$$

Здесь  $r$  – радиус частицы,  $I$  – плотность потока падающего внешнего излучения лазера или других источников видимого излучения,  $\sigma$  – константа Стефана-Больцмана,  $T_W$  – температура стенок аэрозольной камеры, и  $T_S$  – температура

поверхности частицы. Инфракрасное излучение, поглощаемое частицами, исходит со всех стенок камеры, имеющих свойства абсолютно чёрного тела, при той же температуре, что и газ, равной комнатной температуре:  $T_W = T_0 = 293,15 \text{ K}$ . Основные расчёты данной работы были проделаны, исходя из интенсивности и спектрального состава внешнего видимого излучения соответствующего солнечному излучению вне атмосферы, при температуре излучения  $6000 \text{ K}$ ,  $\lambda_{max} = 0,5 \text{ мкм}$  и  $I = 1368 \text{ Вт/м}^2$ .

Для атмосферных условий радиационные условия были приняты несколько иными. Принято, что поток поглощаемой ИК радиации в два раза меньше, чем для лабораторных условий:

$$\Phi_{abs}^{IR} = 2\pi r^2 \sigma T_B^4 \varepsilon_{abs}^{IR} \quad (2.13)$$

Тепловое излучение, исходящее от поверхности Земли и поглощаемое частицами, представлено как излучение от абсолютно чёрной плоскости с температурой  $T_B = 255 \text{ K}$ . Данные о давлении и температуре атмосферы в зависимости от высоты были взяты из стандартной модели атмосферы США для тропиков. Солнечная константа была принята равной  $I = 1368 \text{ Вт/м}^2$ .

В этой модели также учтено, что частицы поглощают и излучают лучистую энергию не как абсолютно чёрные тела. Для этого были введены радиационные коэффициенты  $\varepsilon_{abs}^V$ ,  $\varepsilon_{abs}^{IR}$ , и  $\varepsilon_{emi}^{IR}$ , учитывающие оптические свойства частиц. Радиационные коэффициенты заданы выражением:

$$\varepsilon = \frac{\int J(\lambda) u_\lambda d\lambda}{\int u_\lambda d\lambda},$$

где  $u_\lambda$  - это распределение Планка для соответствующей температуры,  $\lambda$  - длина волны,  $J(\lambda) = A(\lambda)/\pi r^2$  - относительное сечение поглощения, а  $A(\lambda)$  - сечение поглощения.

Частицы относятся к классу хорошо поглощающих видимое и инфракрасное излучения, что соответствует частицам сажи. Оптические свойства таких частиц определяются комплексным показателем преломления, значение которого счи-тается независимым от длины волны и равным  $1,95 - 0,66i$  [27]. Сечение поглощения было вычислено согласно теории Ми [64]. Плотность материала частиц была принята равной  $1000 \text{ кг/м}^3$ .

## 2.4 Геометрическая модель кластерных систем, состоящих из сферических частиц

Для выявления особенностей фотофоретического взаимодействия сферических частиц с большим аэрозольным кластером, состоящим также из сферических частиц, был разработан алгоритм их генерации. Сегодняшние представления о морфологии аэрозольных кластеров основаны на многочисленных экспериментальных исследованиях [63; 82; 83]. Аэрозольный кластер представляет собой агломерат сферических частиц, образуя при этом фрактальную структуру [84—87]. Построение геометрических моделей аэрозольных кластеров и сложных аэрозольных частиц само по себе является отдельной сложной задачей, где основной интерес исследователей сосредоточен на получении моделей, хорошо воспроизводящих морфологию реальных кластеров с целью проведения исследований поглощения и рассеяния ими электромагнитного излучения [88]. Однако для проведения оценки взаимодействия одиночной частицы с большим кластером нет необходимости точного воспроизведения геометрии реальных кластеров. Достаточно воспроизвести основную морфологическую характеристику, используемую сегодня для описания их структуры – *фрактальную размерность*. Для моделей трёхмерных кластеров принято вводить фрактальную размерность  $D_f$  через соотношение, связывающее размер кластера и число частиц в нём следующим образом [16; 86; 89]:

$$N_p \sim R^{D_f} \quad (2.14)$$

Здесь  $N_p$  – число частиц в кластере;  $R$  – радиус минимальной сферы, которую можно описать вокруг кластера. Согласно [86, с. 40], фрактальная размерность кластера является количественной характеристикой того, как кластер заполняет занимаемое им пространство.

Реальные аэрозольные кластера содержат сферические частицы различного размера. Например, согласно исследованию [63], аэрозольные кластера, полученные авторами в эксперименте путём сжигания пропана в пламени, состоят из сферических частиц размером 10 – 30 нанометров, а кластера, полученные путём пиролиза бензола в проточном реакторе, – из сферических частиц размером 40 – 200 нанометров. При этом фрактальная размерность кластеров  $D_f = 1,8$ . В литературе

также даётся определение фрактальной размерности исходя из соотношения:

$$N_p = A \left( \frac{R}{a} \right)^{D_f}$$

Для параметра  $A$  используются термины «рефактор», «структурный фактор» и «лакуарность» [90]. Чаще всего его значение принимают равным 1 и существенного значения на определение фрактальной размерности он не оказывает. Параметр  $a$  называют размером основных (первичных) частиц (в иностранной литературе primary particles size). Чаще всего под этим подразумевают средний размер частиц. Отсюда формула для расчёта фрактальной размерности:

$$D_f = \frac{\ln(N_p/A)}{\ln(R/a)} \quad (2.15)$$

Согласно [10] значение фрактальной размерности для дымовых агрегатов в среднем равно 1,78 и возрастает под воздействием повышенной влажности. Размеры первичных частиц в зависимости от источника дыма (температуры горения и т.п.) составляют 0,01–0,05 микрометров, а размеры кластеров могут иметь размеры от нескольких десятых до примерно десяти микрометров.

Таким образом, необходимо, чтобы алгоритм выполнял построение кластера, присоединяя частицы к нему по одной, стремясь выполнять формулу (2.15). Алгоритм основан на методе Монте-Карло когда новые частицы генерируются и присоединяются к кластеру случайным образом по следующей последовательности шагов:

1. Создаётся первоначальный затравочный кластер, состоящий из двух частиц.
  - а) Первая частица генерируется в центре системы координат. Центр этой частицы совпадает с центром координат. Частица имеет некоторый случайный радиус  $r_1$ , генерируемый в заданном диапазоне по равномерному распределению.
  - б) Генерируется вторая частица со случайным радиусом  $r_2$ . Производится её присоединение к первой частице случайным образом по следующей схеме. Компоненты радиус-вектора  $\vec{R}_p$ , направленного из центра системы координат в точку соприкосновения частиц рассчитываются по следующим формулам:  $R_{pz} = r_1 (1 - 2 \cdot \psi_1)$ ,  $R_{py} = r_1 \sqrt{1 - R_{pz}^2} \cdot \sin 2\pi\psi_2$ ,  $R_{px} = r_1 \sqrt{1 - R_{pz}^2} \cdot \cos 2\pi\psi_2$ , где  $\psi_1$  и  $\psi_2$  два независимых стандартных случайных

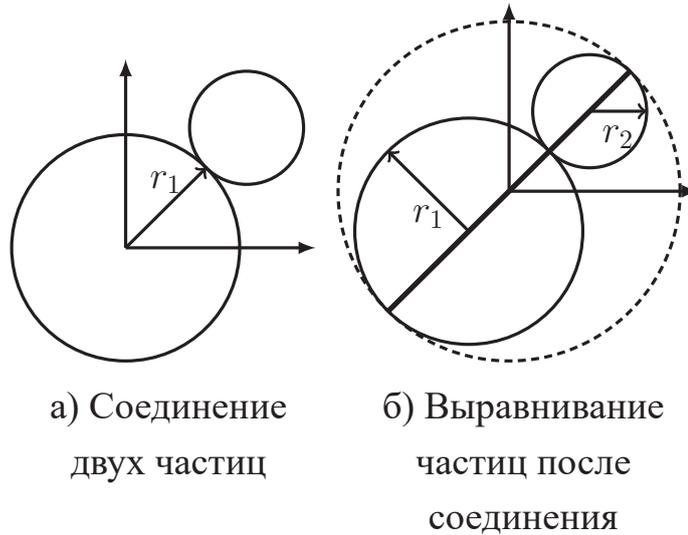


Рисунок 2.5 — Иллюстрация к алгоритму построения аэрозольных кластеров

числа,  $r_1$  - радиус первой аэрозольной частицы. Возможный результат такого присоединения представлен на Рисунке 2.5а.

- в) Частицы смещаются таким образом, чтобы центр линии, проходящей через центры частиц и длина которой равна сумме диаметров частиц, находился в начале системы координат (Рисунок 2.5б). Вокруг получившейся системы двух частиц строится виртуальная сфера, назовём её сфера кластера, с центром в начале координат и радиусом равным сумме радиусов частиц:  $R = r_1 + r_2$ . На Рисунке 2.5б она обозначена пунктиром.

Сфера кластера имеет тот же смысл, что и в выражениях (2.14) и (2.15). Она увеличивается по мере роста кластера, и её радиус определяет размер кластера. Это всегда минимальная сфера, которую можно описать вокруг кластера.

2. Третья и последующие частицы присоединяются к кластеру следующим образом:
  - а) Генерируется новая частица со случайным радиусом  $r_n$ .
  - б) На сфере кластера ищется точка по формулам:

$$R_{pz} = R (1 - 2 \cdot \psi_1)$$

$$R_{py} = R \sqrt{1 - R_{pz}^2} \cdot \sin 2\pi\psi_2$$

$$R_{px} = R \sqrt{1 - R_{pz}^2} \cdot \cos 2\pi\psi_2$$

Разыгрывается направление, по которому очередная частица приближается к кластеру из данной, только что найденной на

кластерной сфере точки. Для этого разыгрывается случайный единичный вектор:  $e_z = \sqrt{\psi_1}$ ,  $e_y = \sqrt{1 - \psi_1} \cdot \sin 2\pi\psi_2$ ,  $e_x = \sqrt{1 - \psi_1} \cdot \cos 2\pi\psi_2$

в) Производится поиск места присоединения частицы к кластеру. Это точка контакта присоединяемой частицы и одной из частиц, уже имеющейся в кластере.

1) Если точка контакта не обнаружена, т.е. частица проходит мимо кластера, то алгоритм направляется на выполнение с пункта 2б. Параметры частицы остаются неизменными. По сути, производится попытка присоединить частицу в другое место.

2) Если точка контакта обнаружена, то выполняется контроль фрактальной размерности, с учётом присоединённой частицы. Для этого вычисляется новый радиус сферы кластера, описывающей кластер, если это необходимо (случай, когда присоединённая новая частица выходит за границы имеющейся сферы кластера). В случае, если фрактальная размерность приблизилась к желаемому значению по сравнению с предыдущим значением, частица остаётся на месте, в противном случае выполняется попытка встроить частицу в другое место, выполняя шаги с пункта 2б. Контроль фрактальной размерности осуществляется в заданной окрестности желаемого значения и начиная с 10 частиц в кластере.

3) Если число неудачных попыток пристроить частицу превысило задаваемое значение, то алгоритм направляется на выполнение с пункта 2а.

3. Алгоритм завершает работу, если достигнуто желаемое число частиц в кластере.

По результатам тестирования этого алгоритма было выявлено, что он хорошо справляется с построением кластеров фрактальной размерности от 1,2 до 2,4. Наиболее быстро он осуществляет построение кластеров фрактальной размерности от 1,6 до 2, что соответствует типичной фрактальной размерности сажевых кластеров, что отражено в многочисленных литературных источниках.

## 2.5 Поиск пересечений молекулярных траекторий с поверхностями аэрозольной системы

При реализации алгоритма статистического моделирования пространственных траекторий молекул и алгоритма построения геометрических моделей аэрозольных кластеров возникает подзадача нахождения точки пересечения прямой со сферой. Прямой представляются участки траектории молекулы или частицы. Сами же аэрозольные частицы, рассматриваемые в данной работе, имеют сферическую форму.

Обобщённый подход поиска точек пересечения прямой со сферой заключается в следующем. Пусть траектория имеет начало в точке  $P_s(x_s; y_s; z_s)$ . Единичный вектор  $\vec{e}$  задаёт её направление, т.е. является направляющим вектором. Необходимо найти конечную точку участка траектории или же определить, что такой точки нет.

Уравнение, описывающее сферу радиуса  $r$  с центром в точке  $C(x_0; y_0; z_0)$ , известно:

$$(x - x_0)^2 + (y - y_0)^2 + (z - z_0)^2 = r^2 \quad (2.16)$$

Параметрическое уравнение прямой, проходящей через точку  $P_s$  и определяемой направляющим единичным вектором  $\vec{e}$ , выглядит следующим образом:

$$\begin{cases} x = x_s + e_x t \\ y = y_s + e_y t \\ z = z_s + e_z t \end{cases} \quad (2.17)$$

Подставив (2.17) в (2.16) и раскрыв квадраты, получим следующее квадратное уравнение относительно  $t$ :

$$\begin{aligned} & (e_x^2 + e_y^2 + e_z^2) t^2 + \\ & 2t(e_x(x_s - x_0) + e_y(y_s - y_0) + e_z(z_s - z_0)) + \\ & (x_s - x_0)^2 + (y_s - y_0)^2 + (z_s - z_0)^2 - r^2 = 0 \end{aligned} \quad (2.18)$$

Следует заметить, что  $e_x^2 + e_y^2 + e_z^2 = 1$ , поскольку  $\vec{e}$  - единичный вектор. Таким образом, уравнение (2.18) является приведённым квадратным уравнением вида  $t^2 + bt + c = 0$ , где

$$\begin{aligned} b &= 2(e_x(x_s - x_0) + e_y(y_s - y_0) + e_z(z_s - z_0)) \\ c &= (x_s - x_0)^2 + (y_s - y_0)^2 + (z_s - z_0)^2 - r^2 \end{aligned}$$

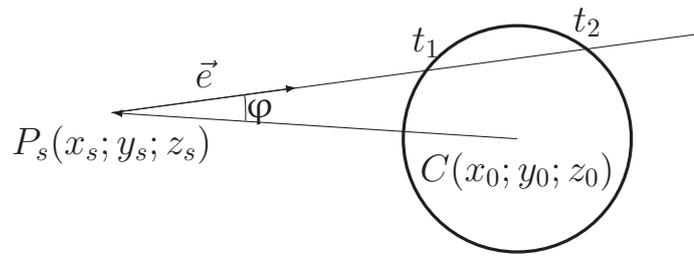


Рисунок 2.6 — Пересечение сферы траекторией

Рассмотрим второй коэффициент квадратного уравнения. Он представляет собой удвоенное скалярное произведение направляющего вектора  $\vec{e}$  и вектора  $C\vec{P}_s$  - вектора из центра сферы в точку начала участка траектории. Очевидно, что знак  $b$  определяется косинусом угла между этими векторами:  $b = |\vec{e}| |C\vec{P}_s| \cos \varphi$  (Рисунок 2.6). Если  $\varphi \geq \pi/2$ , то  $b \leq 0$ , а значит, никакого пересечения траектории со сферой нет. Таким образом, ещё до решения квадратного уравнения можно сразу определить, есть ли точки пересечения траектории со сферой. Если  $b > 0$ , то необходимо сначала вычислить дискриминант. Если он получается отрицательным, то квадратное уравнение не имеет действительных корней, а значит нет никаких точек пересечения со сферой. Это соответствует случаю, когда траектория пролегает мимо сферы, но угол между направляющим вектором и вектором из точки начала траектории в центр сферы меньше  $\pi/2$  (Рисунок 2.7). При поло-

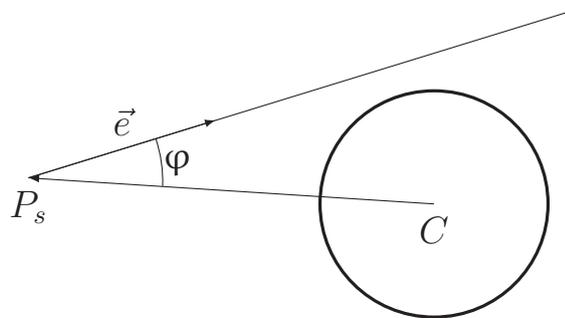


Рисунок 2.7 — Пролегание траектории мимо сферы

жительном дискриминанте и коэффициенте  $b$  квадратное уравнение (2.18) имеет один или два действительных корня. Один корень соответствует случаю прохождения участком траектории сферы по касательной. Два корня означает пересечение сферы в двух точках – первая точка входная, вторая выходная. Оба этих случая следует определить по знаку корней. Отрицательный корень означает, что точка пересечения со сферой находится за точкой начала траектории, т.е. молекула не приближается, а удаляется от точки пересечения. Один положительный корень, а другой отрицательный означает, что начало траектории расположено внутри сферы

– это невозможная (ошибочная) ситуация. Таким образом, рассматриваются только положительные корни. Из них выбирается наименьший, поскольку именно он соответствует ближайшей точке от точки начала участка траектории, то есть соответствует конечной точке данного участка траектории.

В программной реализации алгоритма по выше описанному общему подходу учтено, что его следует применять для каждой сферы в модели аэрозольной системы, исключая ту сферу, с которой начинается участок траектории. Если аэрозольная система состоит из большого числа частиц, то будет найдено много конечных точек участка траектории, принадлежащих разным сферам. Из них выбирается ближайшая, с минимальным значением  $t$  из всех получившихся по всем сферам, которые пересекает траектория. Подставив получившееся значение  $t$  в (2.17), получим координаты точки конца участка траектории.

## 2.6 Оценка условий применимости аппроксимации свободномолекулярного режима

В общем случае молекулярный перенос описывается интегро-дифференциальными уравнениями Больцмана с учётом межмолекулярных столкновений. Для грубой оценки влияния молекулярных столкновений на величину сил фотофоретического взаимодействия рассмотрим приближённую схему столкновений. Пусть газовая молекула, столкнувшись с поверхностью одной из аэрозольных частиц в точке  $s'$ , начинает двигаться вдоль прямолинейной траектории, которая заканчивается в точке  $s$ , где траектория пересекается с поверхностью какой-либо другой аэрозольной частицы. В приближении свободномолекулярного режима молекула, начав двигаться вдоль этой траектории, с вероятностью 1 достигнет точки  $s$ , где она столкнётся с новой поверхностью. При учёте столкновений молекул вероятность того, что молекула достигнет точки  $s$ , не испытав столкновение с другими газовыми молекулами,  $\delta = \exp(-l/l_{av})$ , где  $l$  – расстояние между точками  $s'$  и  $s$ ,  $l_{av}$  – средняя длина свободного пробега молекул. С вероятностью  $(1 - \delta)$  молекула не достигнет точки  $s$ , но вместо неё, в результате взаимных столкновений молекул, в эту точку может попасть другая молекула, двигающаяся в том же направлении, что и исходная.

В соответствии с этой схемой, исходный алгоритм [23], базирующийся на приближении свободномолекулярного режима и методе Монте-Карло, был модифицирован следующим образом. Было предположено, что имеет место перенос той же самой молекулы вдоль точно той же траектории от точки  $s$ , где она сталкивается с поверхностью в точке  $s'$ . Скорости молекулы, падающей на поверхность в точке  $s'$ , с вероятностью  $\delta = \exp(-l/l_{av})$  присваивалось то же значение, которое она имела после столкновения с поверхностью в точке  $s'$ , а в противоположном случае, с вероятностью  $(1 - \delta)$  – значение случайной величины, соответствующей максвелловскому распределению по скоростям в пучке молекул, окружающем систему невозмущённой газовой среды.

Применение такой схемы расчёта может заметно завышать эффект уменьшения величины силы фотофоретического взаимодействия за счёт взаимных столкновений молекул. В частности, взаимные столкновения молекул, каждая из которых несёт избыточный импульс и энергию, которые они получили от нагретых поверхностей аэрозольной системы, не должны с вероятностью равной 1 уменьшать величину фотофоретических сил, тогда как согласно схеме, любые столкновения приводят к выравниванию температур в газовых пучках с температурой газовой среды.

Тем не менее, если радиусы аэрозольных частиц достаточно малы, а расстояние между частицами велико,  $r_0 \ll l_{av}$ , а  $r_{12} \gg l_{av}$ , используя эту схему, можно получить достаточно точную оценку величины фотофоретической силы с учётом молекулярных столкновений при больших расстояниях между частицами. Результаты моделирования с учётом межмолекулярных столкновений по вышеописанной схеме представлены в разделе 4.1.5 «Влияние межмолекулярных столкновений на подавление силы фотофоретического отталкивания» настоящей работы.

## 2.7 Аппроксимация для поправки к константе коагуляции на основе метода аналогий

Как уже изложено в разделе 1.2, существует общий подход к решению задачи нахождения поправки к константе коагуляции при наличии взаимодействия между частицами, когда взаимодействие частиц учитывается через введение энергетического барьера [5, §51]. Например, для электростатического взаимодействия

поправка может быть найдена следующим образом:

$$K = \beta K_0, \quad \beta = \frac{\lambda_{12}}{e^{\lambda_{12}} - 1} \quad (2.19)$$

где  $K_0$  – константа коагуляции для незаряженных частиц,  $\beta$  – поправочный коэффициент,  $\lambda_{12} = U/k_B T$ ,  $U = q_1 q_2 / 2r_0$  есть энергия электростатического взаимодействия частиц радиуса  $r_0$  при их контакте друг с другом,  $q_1$  и  $q_2$  – заряды частиц.

Для проведения оценки влияния фотофоретического взаимодействия на константу коагуляции можно воспользоваться методом аналогий и реализовать следующую схему расчёта поправочного коэффициента. Заменяем электростатическую энергию  $U$  на работу фотофоретической силы  $U_{ph}$  при сближении частиц:

$$\lambda_{12} = \frac{U_{ph}}{k_B T}, \quad U_{ph} = \int_{2r}^{\infty} F_{ph} ds \quad (2.20)$$

При заданном давлении, оценку отношения констант коагуляции имеет смысл проводить для ограниченного диапазона размеров частиц, верхняя граница которого приближённо определяется из условий, что при сближении частиц число Кнудсена системы должно быть, по крайней мере, больше 1, а величина силы фотофоретического взаимодействия существенно превышать силу тяжести, т.к. если величина этих сил становится сопоставимой, то существенную роль начинают играть силы вязкого взаимодействия, возникающие при седиментации частиц.

### Глава 3. Предметно-ориентированный программно-алгоритмический комплекс «Атмосферный аэрозоль»

Описанные в Главе 2 модели и алгоритмы реализованы в предметно ориентированном программно-алгоритмическом комплексе (далее просто программном комплексе) с условным названием «Атмосферный аэрозоль». Данный комплекс разрабатывался автором диссертации не только для решения рассмотренной в этой работе задачи, но и для проведения большого круга исследований в области фотофоретического и гравитофотофоретического движения сложных аэрозольных частиц и агрегатов, исследования фотофореза аэрозолей. В основе этого комплекса лежит программная реализация базового алгоритма решения задачи тепломассопереноса для аэрозольных кластеров в разреженной газовой среде методом Монте-Карло, разработанного профессором, доктором физико-математических наук Черемисиным Александром Алексеевичем [23].

#### 3.1 Реализация предметно-ориентированного программно-алгоритмического комплекса

Программный комплекс «Атмосферный аэрозоль» реализован на языке программирования Delphi<sup>1</sup> с применением объектно-ориентированного подхода и элементами обобщённого программирования и обладает следующими основными функциями:

- генерация геометрических моделей аэрозольных агломератов, состоящих из сферических частиц и обладающих заданной фрактальной размерностью;
- статистическое моделирование методом Монте-Карло, расчёт матриц переноса;
- решение системы нелинейных уравнений теплового баланса, расчёт температур элементов(частиц) аэрозольного агломерата;

---

<sup>1</sup>Первоначально он назывался Object Pascal, но начиная с Delphi 7, в официальных документах фирма Borland стала использовать название Delphi для обозначения используемого языка.

- расчёт фотофоретической силы и её момента, действующих на тело аэрозольного агломерата;
- моделирование движения аэрозольного агломерата под действием фотофоретической силы, её момента, сил вязкого трения и их моментов, внешних сил и их моментов путём интегрирования уравнений движения;
- расчёт силы фотофоретического взаимодействия между сферическими частицами заданных параметров в зависимости от расстояния между их центрами;
- расчёт константы коагуляции с учётом взаимодействия между частицами

При его реализации необходимо было учесть ряд факторов, серьёзно повлиявших на подход к разработке. К первому фактору относится проектирование структур данных таким образом, чтобы это не снижало производительности при проведении статистических расчётов. С другой стороны, необходимо обеспечить полноту информации и удобство при визуализации аэрозольных агрегатов в интерфейсе пользователя, а это важно, поскольку одной из функций комплекса является построение моделей аэрозольных кластеров. Например, при визуализации удобно сопоставить цвет величине коэффициента аккомодации или температуре, или типу частицы в кластере, что совершенно не нужно при статистических расчётах. Если для интерфейса пользователя производительность структур данных и время доступа к их элементам не столь критична, то во время проведения статистических расчётов трата времени на доступ к элементу данных может существенно замедлить расчёты. Компромисс был достигнут путём реализации аэрозольной системы, кластера, частицы кластера, типа частицы в виде взаимосвязанной системы классов и динамических контейнеров, а для проведения статистических расчётов проводится быстрая переподготовка данных в одномерный динамический массив. Матрицы переноса хранятся в отдельной общей структуре и после моделирования могут быть легко интегрированы в класс.

Второй фактор – это приемлемая производительность реализации алгоритма статистического моделирования в расчёте на применение обычного домашнего настольного компьютера. Как ясно из алгоритма, верхняя оценка его сложности зависит от количества частиц в аэрозольной системе, с которой производится статистическое моделирование. Поиск пересечения молекулярной траектории с частицами аэрозольной системы производится простым перебором. Для каждой частицы запускается алгоритм поиска точек пересечения, и, если они находятся, то выбирается самая ближайшая точка из всех найденных. По принадлежности

точки частице выясняется и сама частица, с которой происходит следующее соударение молекулы. Предположим, что время поиска пересечения между траекторией движения молекулы и сферической частицей кластера постоянно и равно  $\tau$ . Тогда время поиска точки соударения:

$$T_C = \tau N_P,$$

где  $N_P$  - число частиц в аэрозольной системе. Максимальное число соударений молекулы с частицами аэрозольной системы  $- T_{MAX}$  определяется алгоритмом, а в его реализации определяется значением соответствующей переменной или константы. Время проведения одного эксперимента  $T_E$  можно оценить следующим образом:

$$T_E \sim T_C C_{MAX} + T_{SYS},$$

где  $T_{SYS}$  - штрафное время, зависящее от аппаратных особенностей платформы, на которой запускается программа, реализующая алгоритм, главным образом определяемое временем операций с памятью. Таким образом, если полное число экспериментов равно  $N$ , то время, затрачиваемое на расчёт статистических матриц, составляет  $T = T_E N$ .

Временная сложность алгоритма в худшем случае выражается как  $O(N_P N C_{MAX})$ . Как можно видеть, при проведении статистического моделирования для кластеров с большим количеством частиц можно столкнуться с ощутимым падением производительности вычислений. Выходом из этой ситуации является реализация распараллеливания алгоритма статистического моделирования пространственных траекторий молекул. Алгоритм позволяет это сделать, поскольку каждое испытание производится независимо и можно применить схему распараллеливания по отдельным экспериментам. В комплексе реализована простая модель распараллеливания на основе разделения статистического моделирования на несколько параллельных потоков. Оптимальное число потоков определено в два потока на каждое доступное процессорное ядро и может быть изменено по желанию до запуска процесса статистического моделирования.

Третий фактор заключается в том, что программный код необходимо было построить таким образом, чтобы в последствии можно было разделить его на несколько отдельных программ на общей кодовой базе. Это необходимо для того, чтобы, например, без особых усилий можно было сделать консольную версию комплекса, просто исключив из проекта файлы, отвечающие за реализацию графического интерфейса пользователя. Основываясь на этих факторах, была

проработана структура программного кода, которая разделена на несколько блоков, между которыми можно установить желаемую взаимосвязь, получив набор программ с различными функциональными особенностями. Архитектура программного комплекса представлена на Рисунке 3.1.

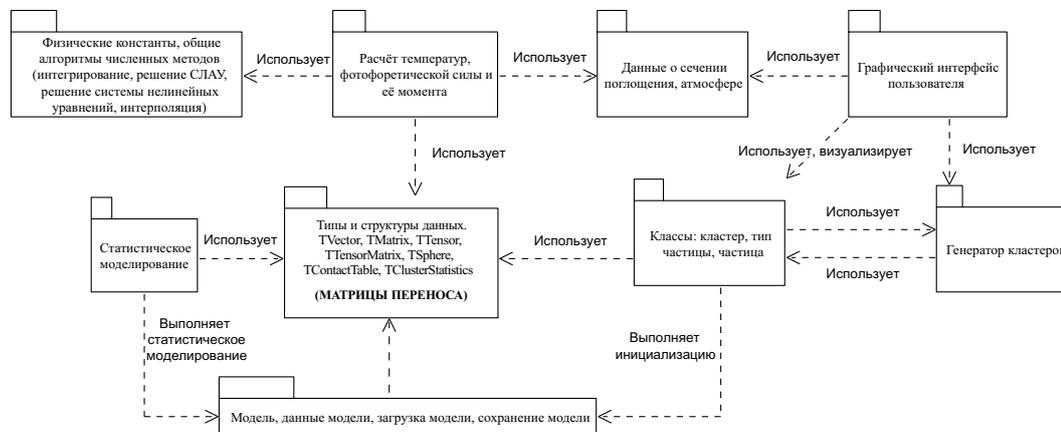


Рисунок 3.1 — Архитектура предметно-ориентированного программно-алгоритмического комплекса «Атмосферный аэрозоль»

### 3.2 Функциональные особенности предметно-ориентированного программно-алгоритмического комплекса

Фактически оказалось удобным разделить на общей кодовой базе приложение для генерации аэрозольных кластеров и систем и приложение для моделирования их движения. Функции, которые использовались в данной работе, реализованы в первом приложении. На Рисунке 3.2 представлен снимок главного окна приложения «Атмосферный аэрозоль». В нижней части окна расположена таблица с текущими, открытыми или сгенерированными, аэрозольными кластерами или системами. Таким образом, можно переключаться от одного кластера к другому. Область с чёрным фоном – компонент визуализации кластера. Можно видеть, что снимок сделан с кластером, состоящим из сферических частиц разного сорта/типа (условное название). Условно типы частиц обозначены красным и жёлтым цветом. Справа расположена панель элементов доступа к функциям программы (Рисунок 3.3). Панель имеет две вкладки: «Кластер» и «Статистика». Во вкладке «Кластер» предоставлен доступ к функциям построения аэрозольных кластеров.

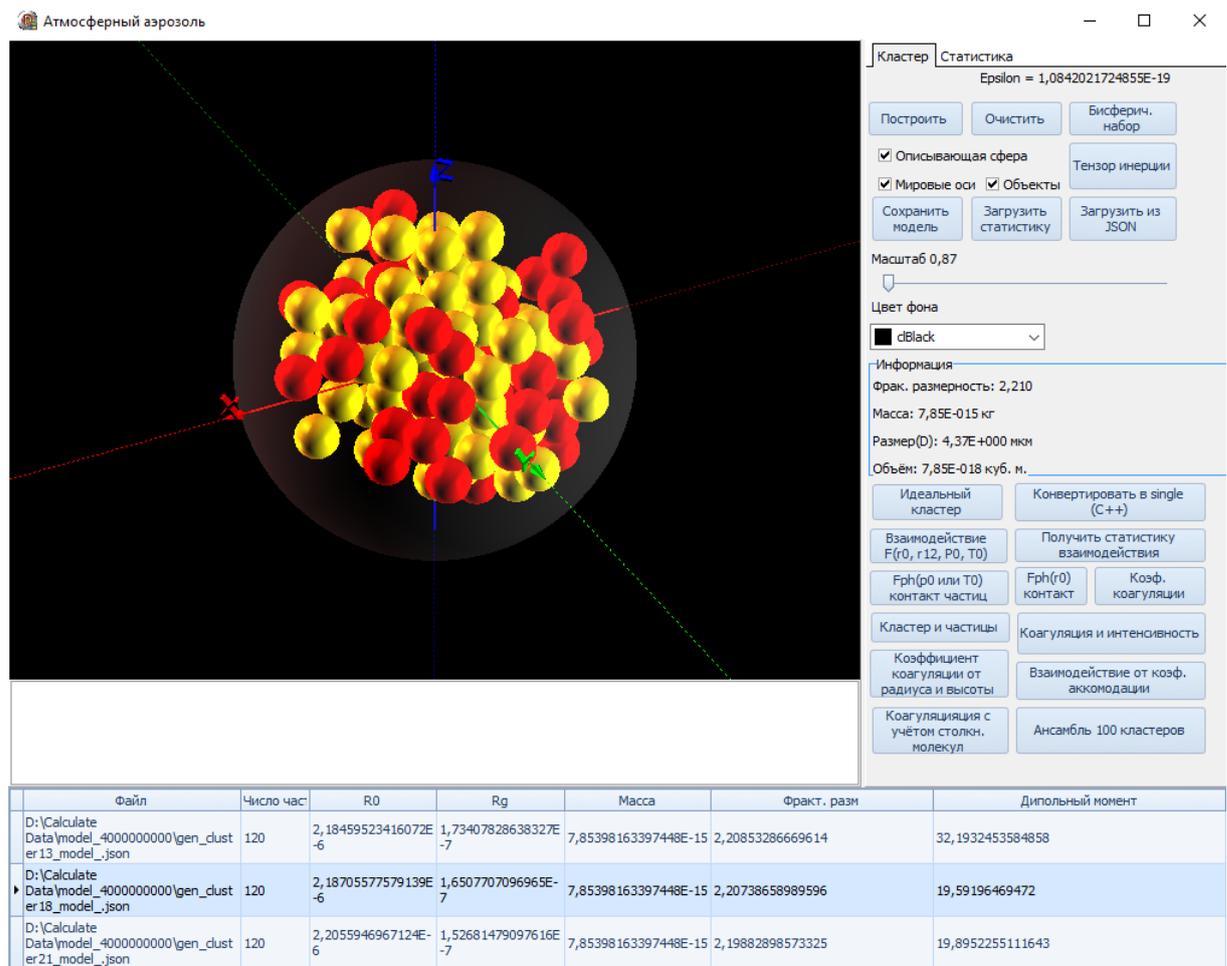


Рисунок 3.2 — Общий вид окна кластер, состоящий из двух типов частиц, обозначенных условно жёлтым и красным цветом. Справа находится панель доступа к функциям приложения «Атмосферный аэрозоль». В чёрной области — компонент визуализации.

Вкладка «Статистика» содержит элементы управления для доступа к функциям запуска статистического моделирования и расчёта фотофоретической силы. Можно видеть, что функции, непосредственно связанные с исследованием фотофоретического взаимодействия, расположены во вкладке «Кластер». Так, например, кнопка «Получить статистику взаимодействия» запускает процедуру формирования аэрозольной системы двух одинаковых сферических частиц, а затем процесс статистического моделирования. Поскольку статистическое моделирование можно провести один раз, а затем масштабировать систему на любой желаемый размер аэрозольных частиц, то эта процедура производится один раз для последовательного набора аэрозольных систем с шагом по расстоянию между центрами частиц. Далее по нажатию кнопки «Взаимодействие» осуществляется расчёт силы фотофоретического взаимодействия.

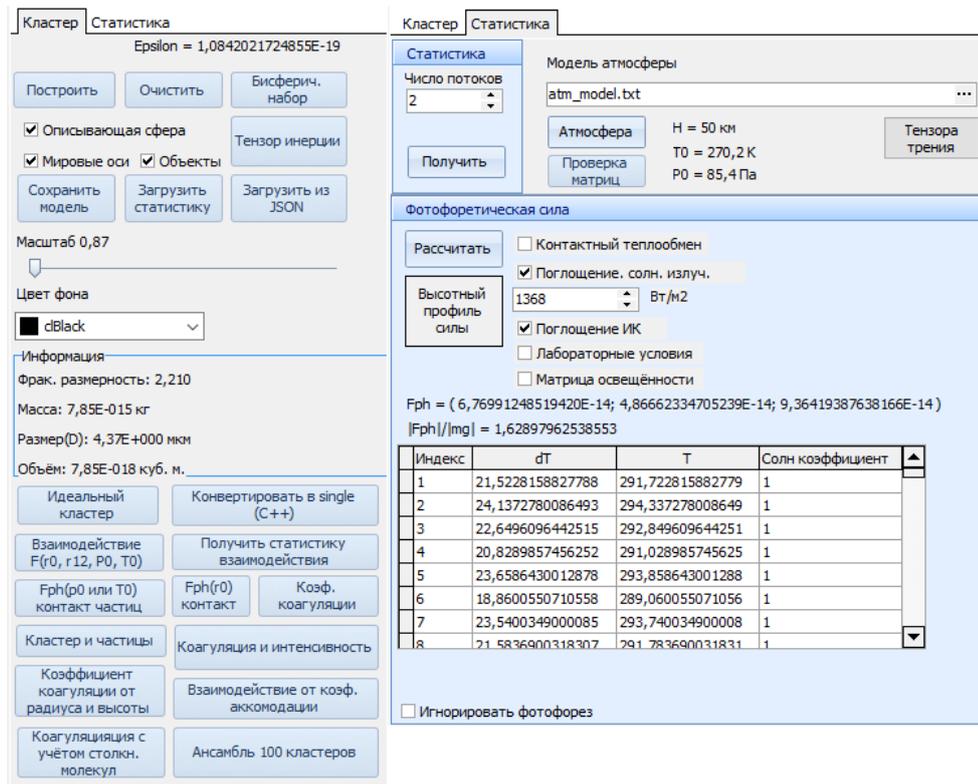


Рисунок 3.3 — Панель инструментов и доступ к функциям кластера.

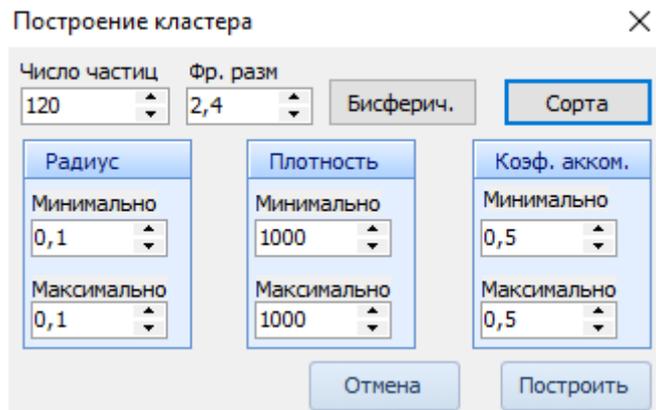


Рисунок 3.4 — Диалог настройки начальных параметров алгоритма построения аэрозольного кластера.

Во вкладке «Статистика» расположены, главным образом, элементы управления, отвечающие за запуск статистического моделирования и расчёта фотофоретической силы для аэрозольных кластеров. Чтобы построить аэрозольный кластер необходимо вызвать диалог начальных параметров (Рисунок 3.4) нажатием кнопки «Построение» во вкладке «Кластер». Начальные параметры определяют число частиц в кластере, фрактальную размерность, максимальные и минимальные значения параметров частиц: плотность, размер, коэффициент аккомодации. Диапазон значений параметров частиц определяется двумя способами. Через задание пря-

Типы частиц

Общее			Радиус [нм]		Кэфф. акком.		Плотность [кг./куб.м.]		Показатель преломления			
№	Вкл.	Цвет	Макс.	Мин.	Макс.	Мин.	Макс.	Мин.	Re		Im	
									Макс.	Мин.	Макс.	Мин.
1	<input checked="" type="checkbox"/>	 dRed	0,25	0,25	0,74	0,74	1000	1000	10	0	1	0
2	<input checked="" type="checkbox"/>	 dYellow	0,25	0,25	0,86	0,86	1000	1000	10	0	1	0

Добавить    Удалить    Отмена    Применить

Рисунок 3.5 — Диалоговое окно для создания сортов/типов частиц. Каждому сорту/типу частиц присваиваются максимальные и минимальные значения параметров частиц: радиус, коэффициент аккомодации, плотность. Это учитывается при генерации частиц.

мо в диалоге «Построение кластера» в соответствующих элементах управления групп «Радиус», «Плотность», «Коэффициент аккомодации» или через задание сортов/типов частиц. Первый способ подразумевает, что в кластере есть частицы только одного сорта. Задание сортов частиц имеет целью смоделировать ситуацию сложных аэрозольных агрегатов, которые часто состоят из разнородных частиц даже различного химического состава. Но особый интерес представляет собой возможность, используя подход разделения частиц на сорта, формировать кластера с различным распределением коэффициента аккомодации.

На Рисунке 3.5 показан снимок окна диалога «Типы частиц», которые можно задать до запуска алгоритма генерации кластера. По умолчанию, при вызове данного диалога задано, два сорта частиц с красным и жёлтым цветом. Сорта можно отредактировать, добавить, удалить. Добавление нового сорта частиц производится путём простого нажатия на кнопку «Добавить». Новый сорт, с параметрами по умолчанию и случайно подобранным цветом, размещается в конец таблицы. Каждый сорт характеризуется следующими параметрами: радиус частиц, коэффициент аккомодации, плотность, действительная часть комплексного показателя преломления, мнимая часть комплексного показателя преломления. Соответственно каждому из этих параметров можно задать его максимальное и минимальное значение, которое будет использоваться при генерации частицы данного сорта слу-

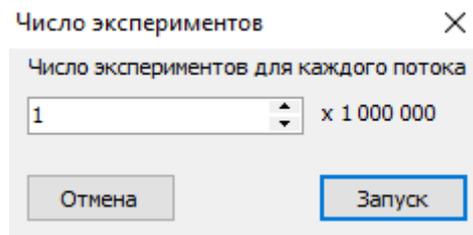


Рисунок 3.6 — Диалоговое окно задания числа экспериментов на поток.

чайным образом. При генерации значения параметра используется прямоугольное распределение плотности вероятности.

После того, как геометрия кластера определена и определены модельные физические параметры каждой из его частиц, можно запустить процесс статистического моделирования для получения матриц переноса. Как было ранее отмечено, реализация алгоритма расчёта матриц переноса имеет простую схему распараллеливания на несколько потоков. Данный подход позволяет несколько ускорить статистическое моделирование. При запуске программы производится считывание числа доступных процессорных ядер, и это число предлагается по умолчанию как оптимальное количество потоков для статистического моделирования. Его можно изменить в соответствующем элементе управления во вкладке «Статистика» панели инструментов (Рисунок 3.3). Следует отметить, что под управлением операционной системы Windows, начиная с XP, предельно оптимальным количеством потоков является два потока на ядро. Если превысить это число, то происходит трата времени на переключение контекста выполнения процессора между потоками и результирующая эффективность от распараллеливания падает, и даже может произойти падение производительности ниже однопоточного случая.

На Рисунке 3.6 изображено диалоговое окно, вызываемое после нажатия кнопки «Получить» во вкладке «Статистика». Можно видеть, что в этом окне задаётся количество экспериментов статистического моделирования для каждого потока. Поскольку число экспериментов может измеряться миллиардами, а в общем случае миллион экспериментов является недостаточной величиной по точности, предложено задавать число экспериментов в миллионах. После того, как число экспериментов для каждого потока определено, система готова выделить ресурсы для них и подготовить к запуску. На Рисунке 3.7 изображено окно отображения прогресса выполнения статистического моделирования. В нижней части окна расположены кнопки управления. Кнопка «Запуск» предназначена для пуска процесса моделирования, кнопка «Отмена» прерывает запущенный процесс. В

Процесс сбора статистики ×

Поток	Число экспериментов	Прогресс	Статус
1784	100000000	1,8%	<input checked="" type="checkbox"/>
1780	100000000	1,8%	<input checked="" type="checkbox"/>
1760	100000000	1,77%	<input checked="" type="checkbox"/>
2296	100000000	1,74%	<input checked="" type="checkbox"/>

Запуск Отмена

Рисунок 3.7 — Снимок окна отображения прогресса выполнения статистического моделирования.

верхней части окна расположена информационная таблица. Первая колонка с заголовком «Поток» содержит идентификатор потока, присвоенного ему операционной системой. Вторая колонка «Число экспериментов» информирует о количестве экспериментов, которое приходится на данный поток. В колонке «Прогресс» отображается в процентном отношении уже проведённое количество экспериментов. Колонка «Статус» информирует о состоянии потока. Если поток ещё выполняет работу, в этой колонке будет отметка в виде галочки. Следует отметить, и это видно из Рисунка 3.7, что прогресс выполнения работы потоками происходит с разной скоростью. По этой причине они завершают свою работу также неодновременно. По окончании статистического моделирования выдаётся информационное сообщение.

Несмотря на то, что комплекс спроектирован с учётом того, чтобы развиваться и расширять круг решаемых с его помощью задач (в частности, рассматриваемая в данной работе задача была решена с его помощью), на практике выяснилось, что на данной программной платформе затруднительно проводить исследования больших ансамблей аэрозольных кластеров. Расчёты становятся очень длительными, и трата времени на эксперименты становится неудовлетворительной. Кроме того, совершенно исключается возможность использования комплекса на многопроцессорных системах (вычислительных кластерах) под управлением операционной системы на основе Linux, что сужает область применимости данной реализации алгоритма.

### 3.3 Оценка точности расчётов и подбор числа статистических испытаний

Очевидно, что при увеличении расстояния между частицами точность расчёта фотофоретической силы падает, поскольку при сохранении числа статистических испытаний возрастает доля таких молекулярных траекторий, при которых не происходит попадание с опорной сферы ни в одну из частиц. Соответственно, снижается доля молекулярных траекторий, которые ответственны за появление расталкивающей силы.

Оценка точности осуществлялась путём проведения многократного моделирования для одной и той же геометрической конфигурации аэрозольной системы при одном и том же количестве статистических испытаний и расчёта относительной фотофоретической силы  $F = F_{ph}/mg$ . Относительная погрешность расчёта силы  $F$  выражается соотношением:

$$\delta = \frac{\Delta F}{\langle F \rangle} = \frac{\langle |F - \langle F \rangle| \rangle}{\langle F \rangle},$$

где угловые скобки означают усреднение. Число испытаний изменялось от  $10^5$  до

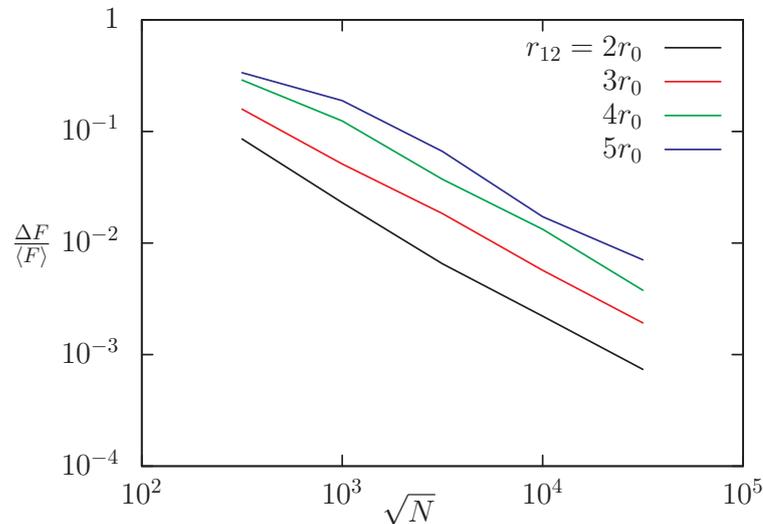


Рисунок 3.8 — Зависимость относительной погрешности вычисления фотофоретической силы от  $\sqrt{N}$ , где  $N$  - число статистических испытаний.

$10^9$ , увеличиваясь в 10 раз. На Рисунке 3.8 приведены графики снижения относительной погрешности расчёта силы с увеличением числа испытаний для случая одинаковых сферических аэрозольных частиц для различных расстояний между их центрами. Оси имеют логарифмический масштаб, по оси абсцисс отложен корень квадратный от числа испытаний, а по оси ординат значение  $\delta$ . Можно видеть,

что по порядку величины точность расчёта пропорциональна  $1/\sqrt{N}$ . При геометрической конфигурации, когда частицы максимально сближены друг с другом, погрешность в 2% достигается уже при  $10^6$  испытаний. При увеличении расстояния между центрами частиц до трёх радиусов, погрешность увеличилась, и теперь при  $10^6$  испытаний она составляет около 5%. Погрешность чуть менее 2% достигается при  $10^7$  испытаний. При расстоянии в 4 радиуса частиц и числе испытаний  $10^7$  относительная погрешность составляет примерно 3,7%. При расстоянии в 5 радиусов частиц она становится равной 6,6%. Максимальное расстояние между центрами частиц, которое устанавливалось в данном численном эксперименте, составляет 12 радиусов частиц. При такой геометрической конфигурации относительная погрешность при  $N = 10^9$  составляет около 7,7%.

Отсюда был сделан выбор числа статистических испытаний. Для проведения исследования зависимости силы фотофоретического взаимодействия от расстояния между центрами частиц, с сохранением приемлемой точности расчётов, следует выбрать число статистических испытаний по порядку величины  $N \sim 10^9$ . Все расчёты проведены с  $N = 4 \cdot 10^9$ . Данное значение удовлетворяет по точности и хорошо распределяется между потоками при использовании распараллеливания алгоритма статистического моделирования.

### **3.4 Верификация программного комплекса**

#### **3.4.1 Верификация реализаций алгоритмов для расчёта фотофоретической силы**

До проведения вычислительных экспериментов была проделана работа по верификации исполнения всех алгоритмов, описанных в данной работе и реализованных в комплексе программ. По мере разработки различных частей комплекса, отвечающих за статистическое моделирование, проводилось их модульное тестирование. На завершающих этапах верификация проводилась путём сопоставления результатов расчёта фотофоретической силы в данном комплексе с аналитическими расчётами.

В качестве аналитических расчётов для верификации были приняты расчёты, выполненные Гансом Рохачеком в его работах [26; 27] над квазисферической моделью, где у аэрозольной частицы поверхность разделена на две полусферы с разными постоянными коэффициентами аккомодации  $\alpha_1$  и  $\alpha_2$  (Рисунок 3.9).

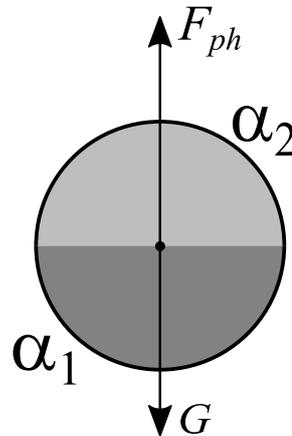


Рисунок 3.9 — Модель аэрозольной частицы для аналитических расчётов

В работе [26] для такой частицы им получено выражение для расчёта величины (модуля) фотофоретической силы  $\Delta\alpha$  - типа (формула 1 в работе [27]) в зависимости от значений коэффициентов аккомодации половинок сферы и молекулярного теплообмена, определяемого давлением и температурой окружающего газа. Формула учитывает выход за пределы свободномолекулярного режима без поправок на молекулярные столкновения. В чисто свободномолекулярном приближении, т.е при характерном давлении  $p^*$  равном бесконечности, эта формула принимает вид:

$$F_{ph}^{roh} = \frac{1}{12\bar{v}} \cdot \frac{\Delta\alpha}{\bar{\alpha}} \cdot H. \quad (3.1)$$

Здесь множитель  $1/12$  для учёта двухатомного газа и полусферического распределения  $\alpha$ ;  $\bar{v}$  означает среднюю тепловую скорость молекул (выражение (1.7)),  $\Delta\alpha = \alpha_1 - \alpha_2$ ,  $\bar{\alpha} = (\alpha_1 + \alpha_2)/2$ ;  $H$  – поток энергии, переносимый молекулами.

В программном комплексе для частицы, описанной выше, было проведено статистическое моделирование и получены матрицы переноса. Для этого был добавлен индикатор, отслеживающий отражения молекул от разных половинок сферы. В расчётах использовались те же параметры, что и в работе [27]:  $\alpha_1 = 0,74$  (верхняя полусфера) и  $\alpha_2 = 0,86$  (нижняя полусфера), комплексный показатель преломления  $\eta = 1,95 - 0,66i$ , плотность вещества частицы  $\rho = 1000 \text{ кг/м}^3$ , лабораторные условия при температуре окружающего частицу газа  $T_0 = 293 \text{ К}$ .

В работе [27] указано, что поток энергии молекулярного переноса тепла  $H$  в выражении (3.1) может быть определён из уравнения теплового баланса:

$$H + E_{emi} = AI + E_{abs}, \quad (3.2)$$

где  $AI$  – поток энергии поглощаемого видимого излучения,  $A = \pi r^2$  – сечение поглощения,  $r$  – радиус частицы,  $I$  – интенсивность излучения,  $E_{abs}$  – поток энергии поглощаемого ИК-излучения,  $E_{emi}$  – поток энергии излучаемого тепла частицей. Для давлений выше 100 Па значением  $E_{emi} - E_{abs}$  можно пренебречь по сравнению с  $H$ , и поэтому, указывает автор, можно принять  $H = AI$ .

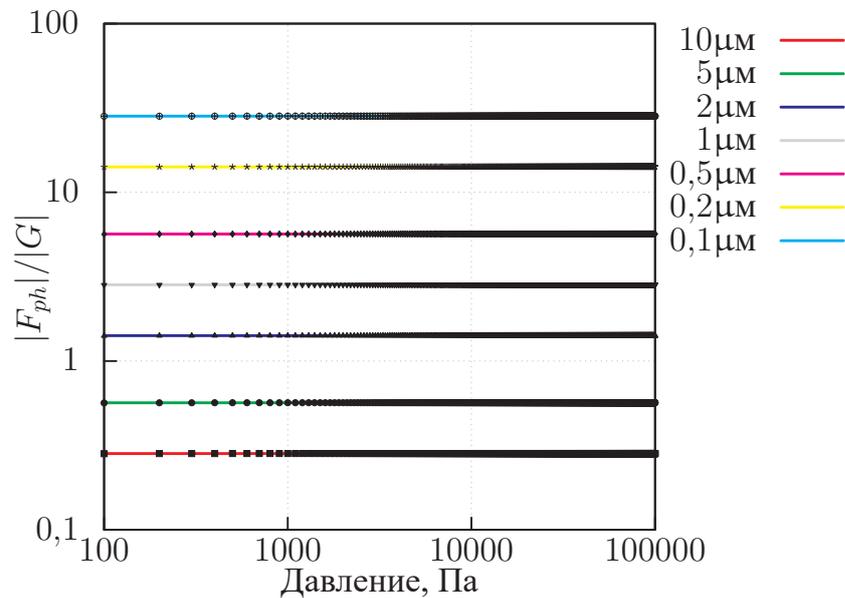


Рисунок 3.10 — Сопоставление результатов расчёта относительной фотофоретической силы  $\Delta\alpha$ -типа, действующей на сферическую аэрозольную частицу различного размера в свободномолекулярном режиме при разных давлениях, по формулам, полученным Рохатчеком (сплошная линия) и с помощью программного комплекса (точки). Температура  $T_0 = 293$  К, ИК излучение не учитывается.

На Рисунке 3.10 представлены результаты сравнения расчётов в виде графиков зависимости относительной фотофоретической силы (отношение модуля фотофоретической  $\Delta\alpha$  силы  $|F_{ph}|$  к модулю силы тяжести  $|G| = m|\vec{g}|$ ) от давления. В случае силы, рассчитанной через матрицы переноса,  $|F_{ph}|$  имеет смысл:

$$|F_{ph}| = \sqrt{(F_x^{ph})^2 + (F_y^{ph})^2 + (F_z^{ph})^2},$$

согласно выражению (2.10) для расчёта фотофоретической силы. В случае аналитической силы

$$|F_{ph}| = |F_{ph}^{roh}|,$$

согласно выражению (3.1). Сила тяжести численно одинакова для обоих случаев, и здесь  $m$  – масса аэрозольной частицы, а  $|\vec{g}| = 9,8 \text{ м/с}^2$  – ускорение свободного падения.

В данных расчётах посредством комплекса потоки поглощаемой  $\Phi_{abs}^{IR}$  и излучаемой  $\Phi_{emi}^{IR}$  ИК радиации в (2.11) и (2.12) были обращены в 0. Все радиационные коэффициенты (выражение (2.3)) обращены в 1. В программном коде введены соответствующие флаги, позволяющие отключать учёт ИК радиации в тепловом балансе. Такой подход позволяет хорошо проверить газокинетическую часть алгоритмов комплекса, а конкретнее, ту часть, которая отвечает за статистическое моделирование и расчёт матриц переноса.

Можно видеть, что имеет место хорошее совпадение расчётного значения фотофоретической силы с аналитически предсказанным по формуле (3.1). Рисунок 3.11 демонстрирует разницу в процентах между силой, рассчитанной аналитически, и силой, рассчитанной в комплексе через матрицы переноса. Эта разница

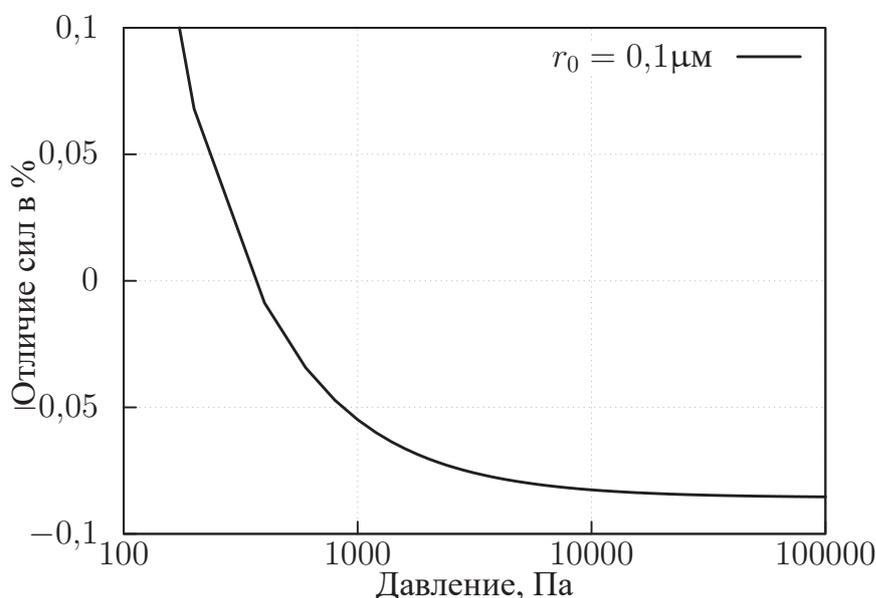


Рисунок 3.11 — Разность между аналитически рассчитанной силой и силой, полученной по результатам статистического моделирования, в процентном соотношении. Для оси абсцисс применён логарифмический масштаб

обусловлена различиями в формулах (3.1) и (2.10). В работе [26] проведена линеаризация, что в итоге делает фотофоретическую силу пропорциональной разнице

температур  $\Delta T$  частицы и окружающего газа (формула 61 и Таблица 2 в работе [26]). В выражении (2.10) для фотофоретической силы, используемом в данной работе, сила пропорциональна  $(\sqrt{T_S} - \sqrt{T_0})$ , что численно точнее.

Для давлений ниже 100 Па разность  $E_{emi} - E_{abs}$  потоков излучения и поглощения ИК радиации по сравнению с молекулярным сбросом тепла становится существенной. Тогда необходимо полностью решать уравнение теплового баланса для нахождения разницы температур  $\Delta T$  частицы и окружающего газа.

В работах [26; 27] для расчёта  $E_{abs}$  и  $E_{emi}$  используются дипольные колебания, а не закон Стефана-Больцмана. Это обосновывается тем, что ИК излучение при температуре частицы около 300 К имеет пиковую длину волны около 10 микрон, которая значительно больше радиуса. Формула 13 работы [27] используется для расчёта как поглощения, так и излучения ИК радиации.

Рисунок 3.12 демонстрирует сравнение аналитических расчётов с учётом ИК излучений по модели в работе [27] и расчётов, полученных в программном комплексе. Условия и частицы те же, что и для Рисунка 3.10, но при этом полностью

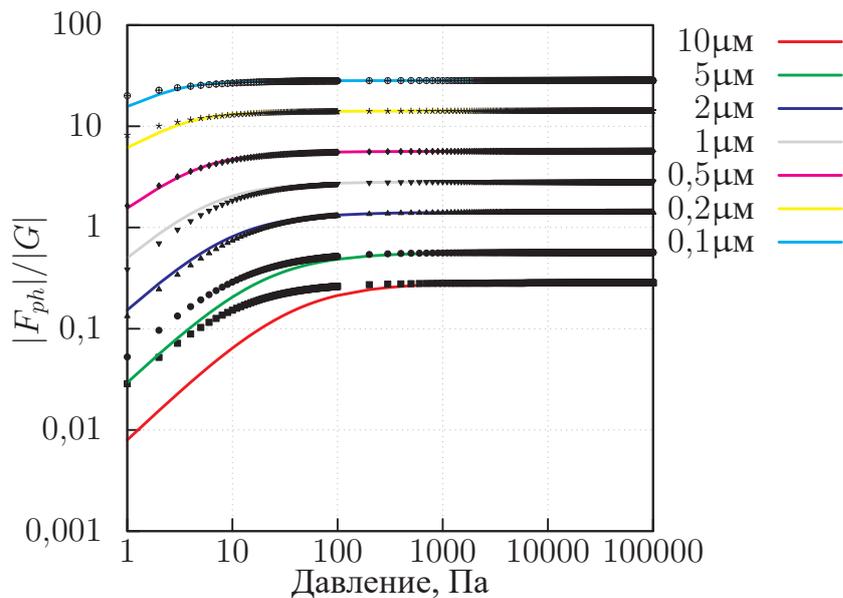


Рисунок 3.12 — Сопоставление результатов расчёта относительной фотофоретической силы  $\Delta\alpha$  - типа, действующей на сферическую аэрозольную частицу различного размера в свободномолекулярном режиме при разных давлениях и с учётом ИК излучений, по формулам, полученным Рохатчеком (сплошная линия) и с помощью программного комплекса (точки). Температура  $T_0 = 293$  К.

учитываются потоки ИК излучений в уравнении теплового баланса. При расчёте

в комплексе радиационный параметр для ИК излучения включён, а для видимого излучения выключен. Можно видеть, что существенно (различие в 10 и более процентов) силы отличаются для частиц размером 10 и 5 микрон: по достижении давления в 100 Па для этих частиц отличия составляют около  $-23\%$  и  $-7\%$  (сила, полученная в комплексе, соответственно, больше). Для частиц радиусом 1 и 2 микрона существенными отличия становятся при давлении в 10 Па, в  $11\%$  и  $8\%$ , соответственно. Для частиц меньше микрона отличия существенны для 5 Па и менее.

Таким образом, можно заключить, что верификация реализаций алгоритмов комплекса пройдена успешно, что подтверждается качественным и количественным сопоставлением с аналитическими, опубликованными в открытой рецензируемой печати расчётами, выполненными другими авторами. Имеющиеся численные отличия обусловлены разными подходами к учёту потоков поглощения и излучения аэрозольными частицами лучистой энергии (в комплексе используется более точная модель излучений, чем в работах [26; 27]), а в газокINETической части алгоритмы выполнены верно.

### 3.4.2 Оценка величины фотофоретической силы

Оценка величины силы фотофоретического взаимодействия проведена на основе сравнительного моделирования частицы по модели Рохачека и бисферической частицы [70]. На Рисунке 3.13 представлены зависимости относительной фотофоретической силы, действующей на частицы, от радиуса опорной сферы  $R_0$ , характеризующего и размер самих частиц. Зависимости получены в лабораторных условиях при температуре газовой среды  $T_0 = 293.15$  К и давлении  $p = 1000$  Па, с пренебрежением разностью потоков излучения и поглощения ИК радиации по сравнению с молекулярным теплообменом. Так же для бисферической частицы выбрана вдвое меньшая плотность, чтобы уравнивать её массу с частицей Рохачека при тех же размерах составляющих её частиц. Кроме того, для бисферической частицы учитывался контактный теплообмен, чтобы получить равные температуры её частиц. Дело в том, что для неё, при равных аккомодационных характеристиках с частицей Рохачека, характерно противодействие фотофоретической силы  $\Delta T$  – типа, силе  $\Delta\alpha$  – типа. Первая направлена от более горячей частицы, с меньшим коэффициентом аккомодации, к частице с меньшей температурой, у которой

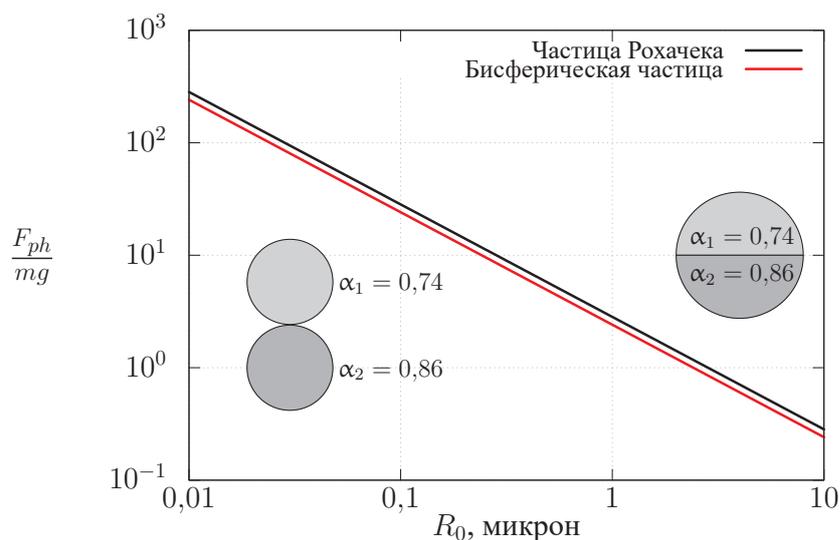


Рисунок 3.13 — Сравнение относительной фотофоретической силы, действующей на частицу Рохачека и бисферическую частицу.

коэффициент аккомодации больше. А вторая, наоборот, направлена от большего коэффициента аккомодации к меньшему. Таким образом, корректное сравнение частицы по модели Рохачека с равномерным распределением температуры её поверхности, и тем самым, испытывающей действие фотофоретической силы  $\Delta\alpha$ -типа, с бисферической частицей возможно только при равных температурах её составных. Следует ожидать, что величина силы фотофоретического отталкивания будет по порядку величины такой же, как и сила, действующая на эти частицы.

## Глава 4. Результаты вычислительных экспериментов по изучению силы фотофоретического отталкивания между аэрозольными частицами в вакуумных камерах и атмосфере Земли

### 4.1 Фотофоретическое взаимодействие аэрозольных частиц в вакуумных камерах

#### 4.1.1 Исследование зависимости от расстояния между частицами

Величина фотофоретической силы в зависимости от расстояния между частицами одинакового радиуса представлена на Рисунке 4.1. Величина силы отнесена

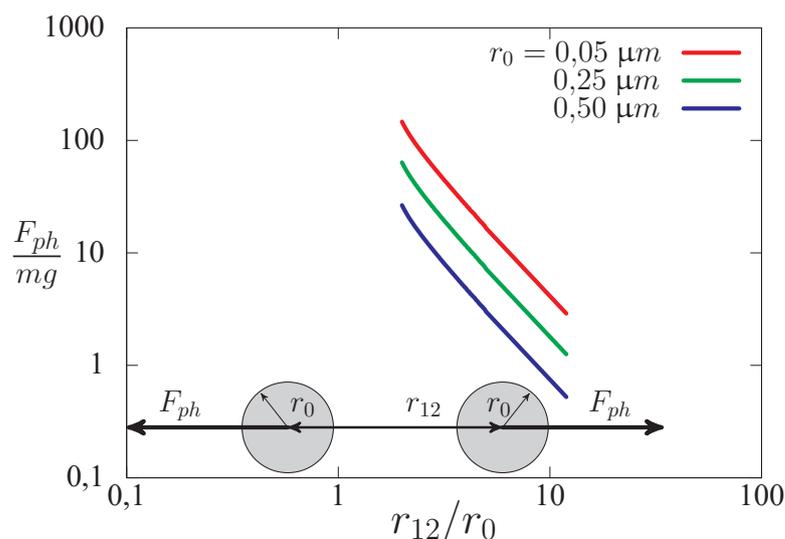


Рисунок 4.1 — Зависимость относительной фотофоретической силы отталкивания одинаковых сферических аэрозольных частиц от расстояния между их центрами.

Лабораторные условия. Частицы хорошо поглощают видимое излучение.

Интенсивность падающего излучения  $I = 1368 \text{ Вт/м}^2$ , давление газа  $p = 1000 \text{ Па}$ , температура  $T_0 = 293,15 \text{ К}$

к силе тяжести частицы, а расстояние между частицами есть расстояние между их центрами. Силы, действующие на каждую из частиц, направлены по оси, соединяющей центры частиц, и являются силами отталкивания. Расчёты проведены для частиц размеров 0,05, 0,25 и 0,5 микрон, находящихся в лабораторных условиях.

Можно видеть, что сила фотофоретического взаимодействия зависит от размера частиц и может достигать значительных относительных величин при их сближении. Зависимость силы от расстояния при заданном давлении приближённо описывается зависимостью кулоновского типа

$$F_{ph}(r_{12}) \approx C/r_{12}^2, \quad (4.1)$$

где  $C$  - постоянная. Вследствие этого при логарифмическом масштабе обеих осей зависимости имеют вид прямых. Результаты расчётов были аппроксимированы методом наименьших квадратов, используя функцию вида  $C/r_{12}^a$ , где подбирались параметры  $C$  и  $a$ . В результате для всей кривой было получено значение  $a$  равное 2,34. Если проводить аппроксимацию для участка, на котором  $r_{12} > 4r_0$ , то есть если исключить из аппроксимации небольшой начальный участок кривой силы, то  $a$  составляет уже 2,07. При дальнейшем увеличении исключаемого начального сегмента  $a$  быстро достигает значения 2. При таком характере зависимости от расстояния силы *фотофоретического взаимодействия можно отнести к типу дальнодействующих.*

#### 4.1.2 Исследование зависимости силы от размера частиц

Максимальная величина силы фотофоретического взаимодействия достигается, когда частицы почти контактируют друг с другом. На Рисунке 4.2 изображена зависимость относительной фотофоретической силы, действующей на частицы одинакового радиуса  $r_0$ , когда они почти соприкасаются друг с другом. Расчёты проведены для тех же лабораторных условий, при которых получены кривые на Рисунке 4.1.

Часть кривой, показанная точками, соответствует  $Kn < 1$ . Как будет показано далее, при таких значениях числа Кнудсена, для расчёта величины фотофоретической силы с удовлетворительной точностью необходимо учитывать столкновения молекул, а представленные результаты расчётов в приближении свободномолекулярного режима не соответствуют действительности.

На кривой относительной силы имеется слабовыраженный максимум при радиусе равном примерно 0,08 микрон. До максимума относительная сила не

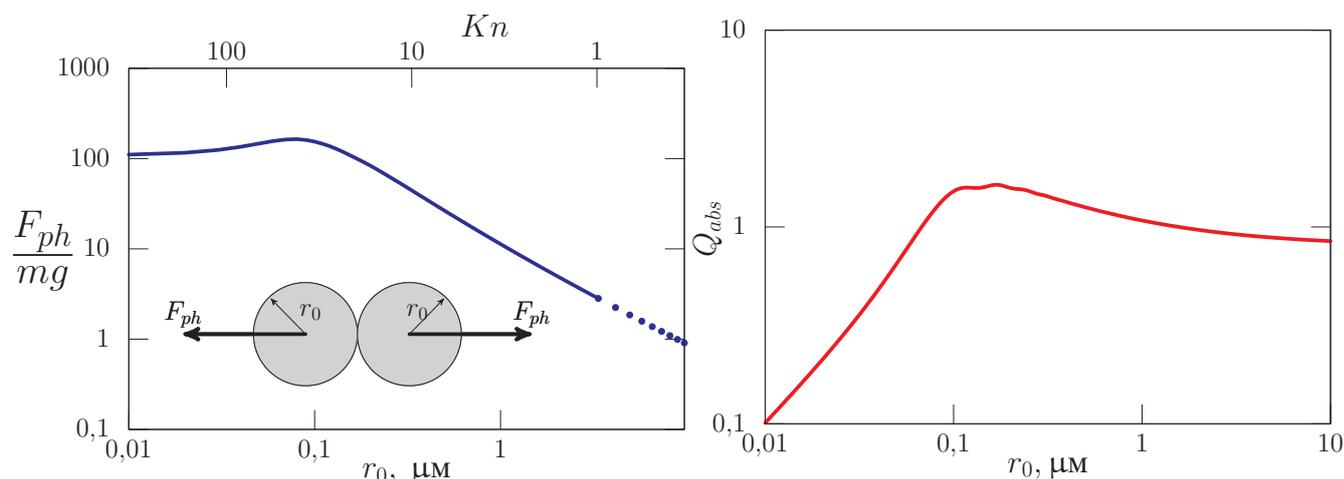


Рисунок 4.2 — Относительная сила фотофоретического отталкивания (слева) и относительное сечение поглощения для  $\lambda = 0,5$  микрон (справа) в зависимости от размера одинаковых сферических частиц, хорошо поглощающих видимое излучение и почти соприкасающихся друг с другом. Частицы находятся в тех же условиях, что и на Рисунке 4.1.

зависит от размера частиц, а после максимума она падает приблизительно обратно пропорционально радиусу частицы. Такое поведение кривой силы тесно связано с зависимостью относительного сечения поглощения от размера частиц. Радиус 0,08 микрон приблизительно соответствует радиусу, при котором наблюдается максимум относительного сечения поглощения для излучения видимого диапазона. При меньших размерах частиц относительное сечение поглощения растёт пропорционально радиусу частиц. Разность температур между поверхностью частиц и газовой средой, рассчитанная в результате решения уравнений теплового баланса (уравнение (2.11)), также растёт пропорционально радиусу частиц. При этом, в соответствии с выражением (2.10), величина фотофоретической силы растёт пропорционально кубу радиуса. В силу того, что сила тяжести также растёт пропорционально кубу радиуса частиц, происходит стабилизация относительной величины силы. При  $r_0 > 0,08$  микрон относительное сечение поглощения стабилизируется. В результате относительная сила начинает убывать обратно пропорционально радиусу частиц.

### 4.1.3 Исследование зависимости от интенсивности падающего излучения

Величина фотофоретической силы существенно зависит от интенсивности падающего излучения. Как видно на Рисунке 4.3, сначала наблюдается линейный рост силы с увеличением интенсивности, а затем зависимость становится

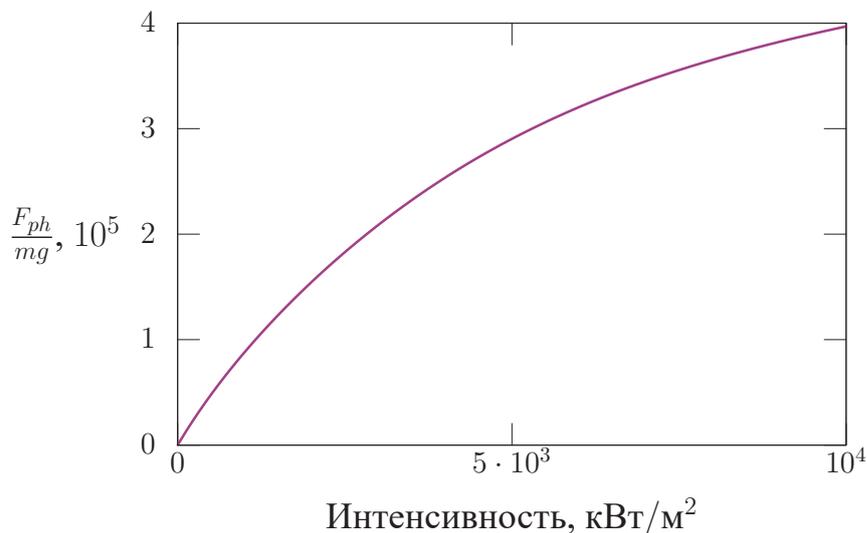


Рисунок 4.3 — Зависимость силы фотофоретического отталкивания от интенсивности падающего излучения видимого диапазона длин волн,  $\lambda_{max} = 0,5$  микрон. Лабораторные условия, давление газа 1000 Па, частицы одинакового радиуса 0,5 микрон почти в контакте друг с другом.

нелинейной. Такая зависимость силы от интенсивности соответствует поведению разности температур между частицами и газом. При малых интенсивностях тепловой баланс частиц в основном определяется потоком поглощаемого видимого излучения и сбросом тепла в газовую среду за счёт молекулярного теплопереноса, в результате чего разность температур растёт линейно при увеличении интенсивности. С повышением интенсивности в балансе тепловых потоков все большую роль начинает играть поток, излучаемой частицами ИК энергии, и рост температур частиц с увеличением интенсивности замедляется.

#### 4.1.4 Исследование зависимости от давления окружающей газовой среды

На Рисунке 4.4 показано поведение силы фотофоретического взаимодействия в зависимости от давления для нескольких пар одинаковых частиц разного

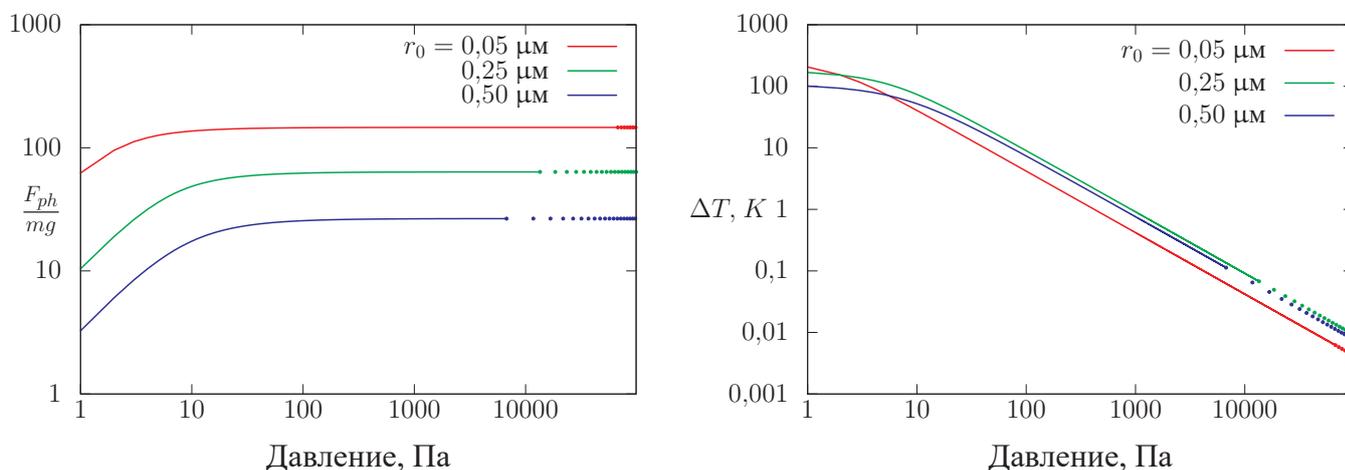


Рисунок 4.4 — Зависимость фотофоретической силы отталкивания (слева) и разности температур между частицами и окружающим газом (справа) в зависимости от давления для двух одинаковых частиц, хорошо поглощающих излучение видимого диапазона и находящихся почти в контакте друг с другом. Лабораторные условия, частицы освещены солнечным светом.

размера. Пунктиром обозначены участки кривых, где число и фотофоретические силы существенно меньше рассчитанных в приближении свободномолекулярного режима. Характерной особенностью кривых является наличие плато в области сравнительно высоких давлений. При довольно низких давлениях, меньших величины порядка 10 Па, относительная сила начинает падать с уменьшением давления.

Согласно выражению (2.10), величина силы обратно пропорциональна давлению и пропорциональна разности температур частиц и газовой среды. В области давлений, соответствующих плато на кривых относительной силы, падение силы за счёт уменьшения давления компенсируется ростом разности температур частиц и окружающего газа, в результате относительная сила остаётся постоянной. При низких давлениях температура частиц повышается до такой степени, что в тепловом балансе начинает играть роль ИК излучение частиц, что и обуславливает уменьшение силы при дальнейшем падении давления.

#### 4.1.5 Влияние межмолекулярных столкновений на подавление силы фотофоретического отталкивания

Представляет интерес оценка того, насколько сильно влияют межмолекулярные столкновения на величину силы фотофоретического взаимодействия. Для этого было проведено численное моделирование по алгоритму, учитывающему схему, описанную в разделе 2.6 настоящей работы. При этом давление было выбрано таким, чтобы уже на небольшом расстоянии между центрами частиц не соблюдалось условие свободномолекулярного режима.

$$F_{ph}(r_{12})^* \approx F_{ph}(r_{12}) \exp(-r_{12}/l_{av}) = C \exp(-r_{12}/l_{av})/r_{12}^2 \quad (4.2)$$

где  $F_{ph}(r_{12})$  – фотофоретическая сила, рассчитанная в приближении свободномолекулярного режима,  $r_{12}$  – расстояние между частицами, а  $C$  есть постоянная в выражении (4.1). Рисунок 4.5 демонстрирует эффект уменьшения величины силы

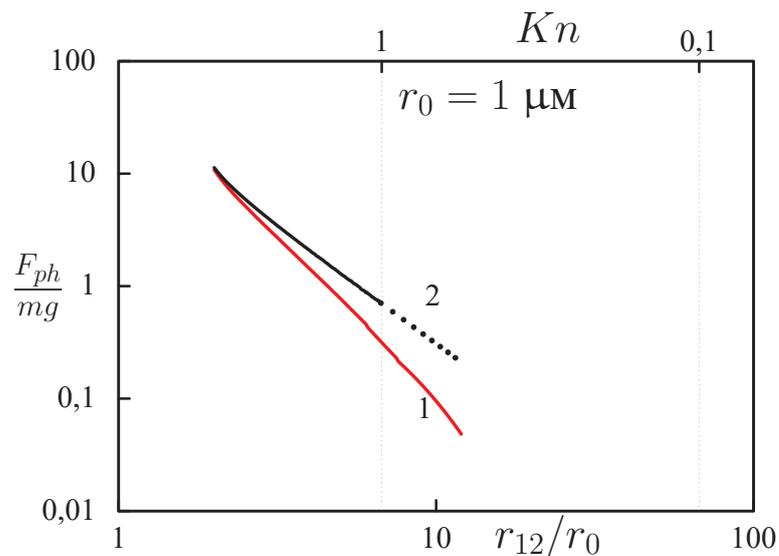


Рисунок 4.5 — Уменьшение фотофоретической силы при учёте молекулярных столкновений. Зависимость фотофоретической силы от расстояния, рассчитанная с учётом (кривая 1) и без учёта (кривая 2) молекулярных столкновений, для двух одинаковых частиц радиусом 1 микрон в лабораторных условиях, при давлении 10000 Па и источнике излучения солнечного типа. На верхней горизонтальной оси показано число Кнудсена аэрозольной системы.

фотофоретического взаимодействия за счёт молекулярных столкновений. Можно видеть, что силы, рассчитанные с учётом и без учёта молекулярных столкновений,

отличаются не столь уж и значительно. При относительно малых расстояниях между частицами величины сил становятся совсем близкими друг к другу. При  $Kn = 1$  сила уменьшается приблизительно в два раза за счёт молекулярных столкновений. Как уже говорилось, применённая расчётная схема существенно завышает влияние молекулярных столкновений на величину фотофоретической силы. При  $Kn < 1$ , т.е. при больших расстояниях между частицами, силы, рассчитанные в разных приближениях, отличаются существенно. При больших расстояниях между частицами фотофоретическая сила, рассчитанная с учётом молекулярных столкновений, начинает уменьшаться по экспоненциальному закону (4.2) с ростом этих расстояний. Таким образом, принимая во внимание оценки погрешности расчётов, применимость свободномолекулярного приближения для количественного расчёта сил фотофоретического взаимодействия можно считать оправданной при  $Kn > 1$ .

#### 4.1.6 Взаимодействие частиц, различающихся по размерам

При коагуляции в аэрозольных системах могут присутствовать как мелкие частицы, так и частицы, размер которых вырос в результате коагуляционных

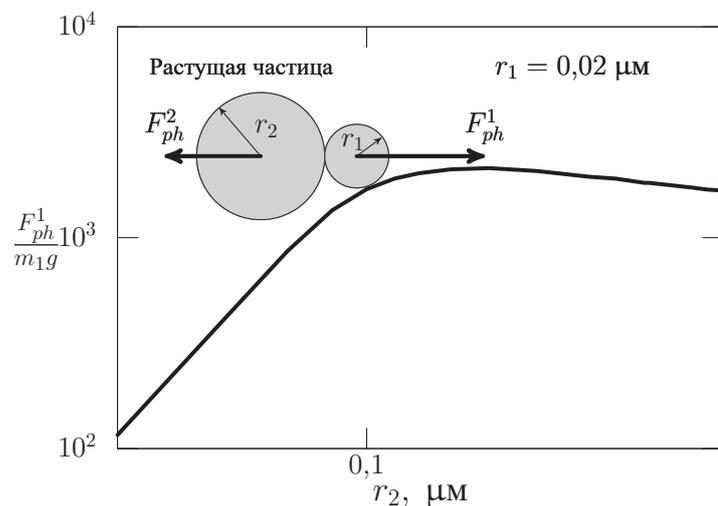


Рисунок 4.6 — Сила фотофоретического отталкивания, действующая на частицу фиксированного размера радиуса  $r_1 = 0,02$  микрон, в зависимости от радиуса второй частицы  $r_2$ . Лабораторные условия, интенсивность падающего излучения солнечного типа  $1368 \text{ Вт/м}^2$ , давление газа  $1000 \text{ Па}$ , температура  $293,15 \text{ К}$ .

процессов. Сила фотофоретического взаимодействия, действующая на частицу

фиксированного размера, существенно зависит от размера партнёра по взаимодействию (Рисунок 4.6). С увеличением размеров второй частицы сначала сила быстро растёт, а затем в какой-то степени стабилизируется. Смена характера поведения кривой силы соответствует изменению вида зависимости сечения поглощения солнечного излучения второй частицы от её размера.

#### 4.1.7 Фотофоретическое взаимодействие частиц с аэрозольным кластером

На Рисунке 4.7 изображён кластер, состоящий из 380 сферических частиц. Для создания кластера использовался алгоритм, описанный в разделе 2.4 диссертации. На положительных полуосях системы координат, центр которой совпадает

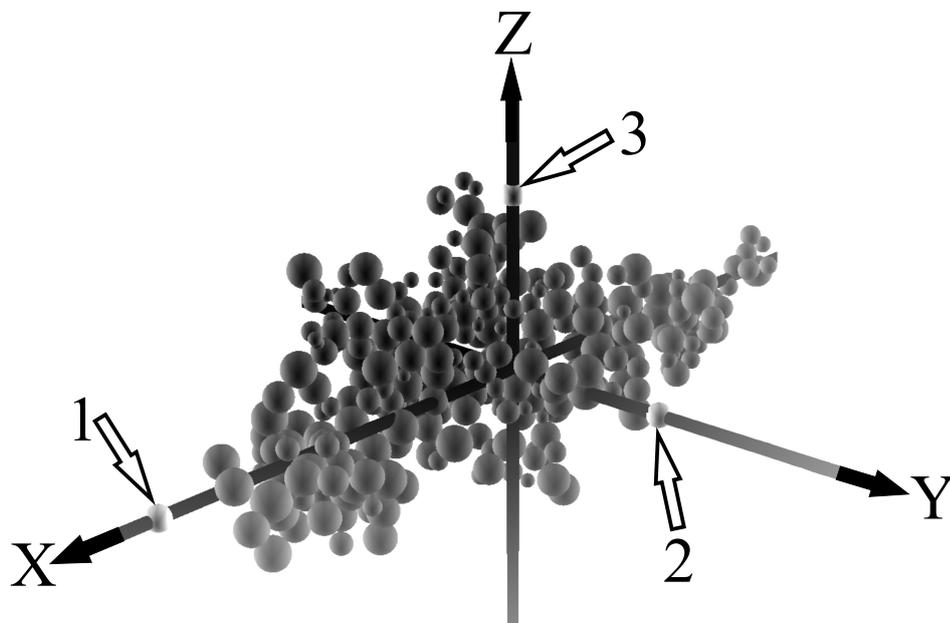


Рисунок 4.7 — Кластер, состоящий из 380 сферических частиц радиусом 10 – 30 нанометров. Фрактальная размерность 1,8. Цифрами обозначены свободные частицы, взаимодействующие с кластером.

с центром масс кластера, расположены отдельные сферические частицы радиусом 10 нанометров. На Рисунке 4.8 представлены зависимости  $x$ -,  $y$ - и  $z$ -компонент фотофоретической силы от координат этих маленьких частиц, т.е. от расстояния от этих частиц до центра масс кластера. Можно видеть, что взаимодействие с кластером асимметрично: величина силы зависит не только от расстояния от частицы до центра кластера, но и от того, с какой стороны частица приближается к кластеру. В данном случае силы примерно направлены от центра кластера. Кривые

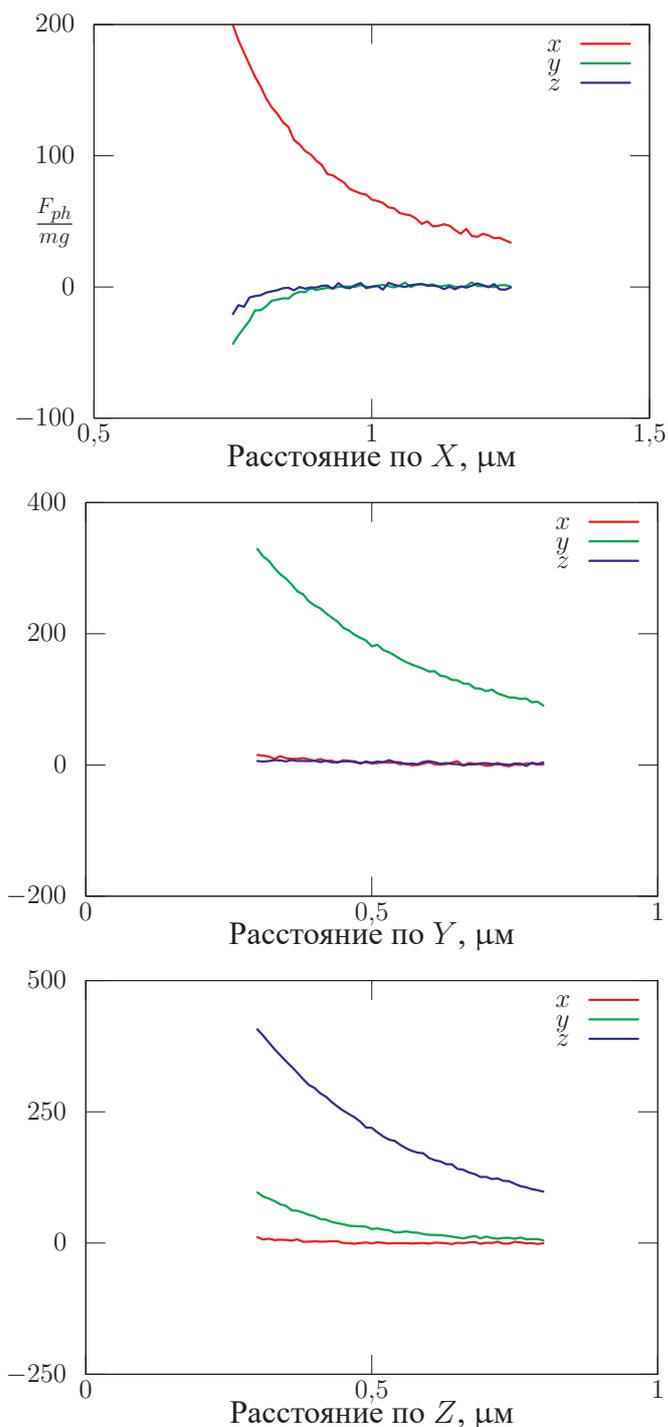


Рисунок 4.8 — Силы фотофоретического отталкивания, действующие на свободные частицы со стороны кластера, изображённого на Рисунке 4.7.

Лабораторные условиях, интенсивность падающего излучения солнечного типа  $1368 \text{ Вт/м}^2$ , давлении газа  $1000 \text{ Па}$ , температура  $293,15 \text{ К}$ .

сил ограничены снизу расстояниями, когда свободная частица сталкивается с частицами кластера. Частицам, приближающимся к кластеру вдоль оси  $X$ , нужно преодолеть меньшие силы фотофоретического отталкивания, чем частицам, движущимся вдоль осей  $Y$  и  $Z$ .

## 4.2 Фотофоретическое взаимодействие аэрозольных частиц в атмосфере Земли

Расчёт силы фотофоретического взаимодействия относится к классу нелинейных задач [91]. Условия инфракрасного теплообмена для частиц в вакуумных камерах и в атмосфере отличаются весьма значительно. Модели теплообмена для аэрозольных частиц в атмосфере (Рисунок 1.5) и в вакуумных камерах (Рисунок 1.4) и их отличие описаны в работах [92] и [93]. Например, в атмосфере часть энергии, поступающей в частицу, может сбрасываться в космическое пространство. Нелинейность задачи и отличие теплообмена по-разному проявляются в вакуумных камерах и в атмосфере. В результате появляется необходимость отдельного изучения сил фотофоретического взаимодействия в условиях атмосферы, даже если они уже были исследованы в вакуумных камерах, т.к. априори невозможно предсказать поведение сил на разных высотах в атмосфере по результатам исследований в вакуумных камерах. Детальному исследованию сил фотофоретического взаимодействия в атмосфере, с учётом изменения всего комплекса условий, в которых находятся частицы, посвящена статья [93].

### 4.2.1 Исследование зависимости фотофоретического взаимодействия от расстояния между частицами на различных высотах в атмосфере Земли в дневное время

Величина силы фотофоретического взаимодействия для двух одинаковых сферических аэрозольных частиц радиуса  $r_0 = 0,03$  микрон в атмосфере в дневное время представлена на Рисунке 4.9 в виде отношения силы к весу частиц  $mg$ , а расстояние между частицами как отношение расстояния между центрами частиц  $r_{12}$  к радиусу частиц  $r_0$ . Для обеих осей использован логарифмический масштаб. Силы направлены вдоль прямой, соединяющей центры частиц, и являются силами отталкивания.

Зависимости силы для высот в диапазоне от 15 до 75 километров симбатны зависимостям, которые приведены на Рисунке 4.9 для границ этого диапазона. Для заданной пары аэрозольных частиц при солнечном освещении отличие величи-

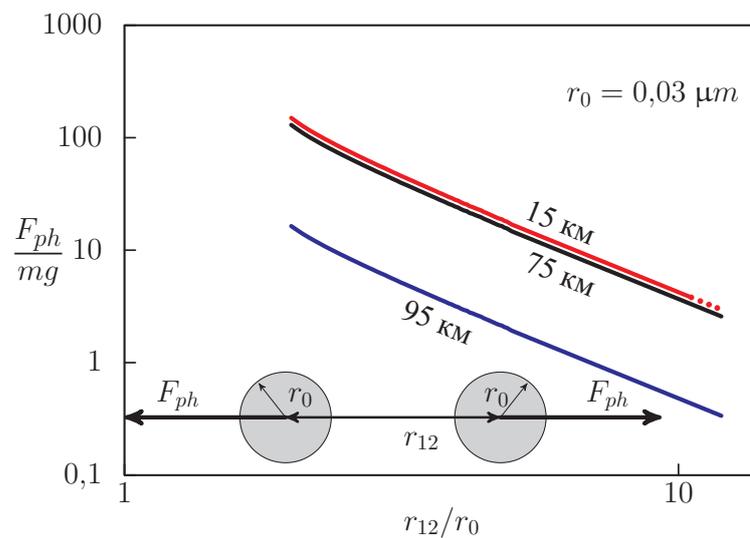


Рисунок 4.9 — Сила фотофоретического отталкивания двух одинаковых сферических аэрозольных частиц, находящихся на различных высотах в атмосфере в дневное время, в зависимости от расстояния между их центрами. Частицы, подобно частицам сажи, хорошо поглощают видимое и ИК излучения.

ны силы для разных высот из указанного диапазона невелики, максимум примерно 13%, т.к. определяется изменением температуры атмосферы:  $F_{ph} \sim 1/\sqrt{T_0}$ , и не зависит от атмосферного давления. Для указанного выше диапазона высот такое поведение силы от давления связано, в частности, с тем, что ИК излучение играет сравнительно малую роль в тепловом балансе частиц. Но при увеличении высоты молекулярный теплоперенос начинает уступать позиции ИК излучению, и сила начинает падать при уменьшении давления атмосферы, как это видно на примере кривой силы для 95 километров. Для заданной пары частиц на определённой высоте в атмосфере зависимость силы фотофоретического взаимодействия от расстояния между центрами частиц приближённо можно выразить соотношением (4.1).

#### 4.2.2 Исследование зависимости фотофоретического взаимодействия от размера частиц на различных высотах в дневное время

На Рисунке 4.10 представлены силы фотофоретического взаимодействия аэрозольных частиц в зависимости от их размера, радиуса  $r_0$ , для различных высот в атмосфере. Силы рассчитаны для такого взаимного положения частиц, когда

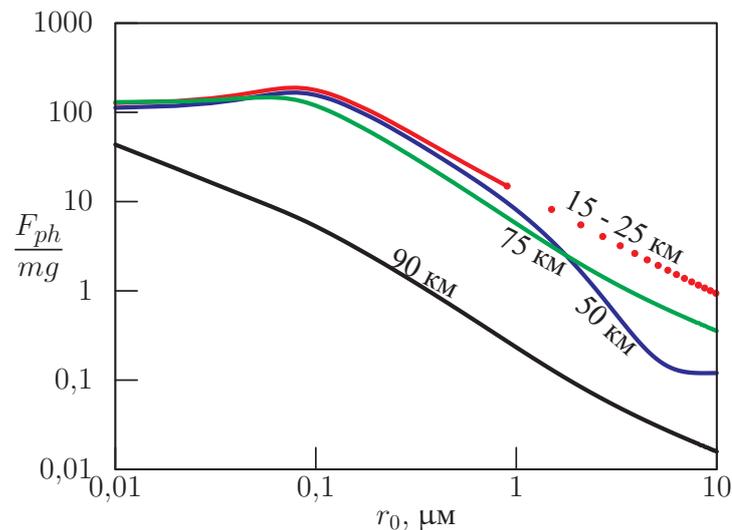


Рисунок 4.10 — Сила фотофоретического взаимодействия двух одинаковых сферических аэрозольных частиц, находящихся на различных высотах в атмосфере в дневное время, в зависимости от размера этих частиц. Частицы находятся почти в контакте друг с другом и, подобно саже, хорошо поглощают видимое и ИК излучение.

они находятся почти в контакте друг с другом, и расстояние между их центрами  $r_{12} \approx 2r_0$ . На этом расстоянии в дневное время сила фотофоретического взаимодействия имеет максимальное значение, когда частицы поглощают видимое солнечное излучение и инфракрасное излучение от поверхности Земли. Силы рассчитаны в приближении свободномолекулярного режима. Кривые зависимостей силы от расстояния между частицами для диапазона высот 15 – 25 километров почти совпадают друг с другом и показаны с помощью одной красной линии. Точками обозначен участок этой линии, когда  $Kn < 1$  для кривой, соответствующей силе на 15 километров, и использование приближения свободномолекулярного режима приводит к большим погрешностям.

В дневных условиях для частиц радиусом от 0,01 до 0,3 микрон на высотах 15 – 75 километров сила фотофоретического отталкивания превосходит силу тяжести на два порядка величины. Зависимости силы от размера частиц для этого диапазона высот имеют следующие особенности. При малых размерах частиц ( $r_0$  примерно меньше 0,03 микрон) относительная величина силы является приблизительно постоянной величиной. При больших размерах наблюдается падение относительной силы с ростом размера частиц. На больших высотах, например, на 90 километров, происходит увеличение влияния ИК излучения на тепловой баланс частиц, что

приводит к тому, что при заданном размере частиц сила заметно уменьшается по сравнению с её величиной на более низких высотах.

### 4.2.3 Особенности фотофоретического взаимодействия в атмосфере Земли в ночное время

Рисунок 4.11 демонстрирует фотофоретическое взаимодействие для ночных условий, когда частицами поглощается только ИК излучение Земли. В ночных

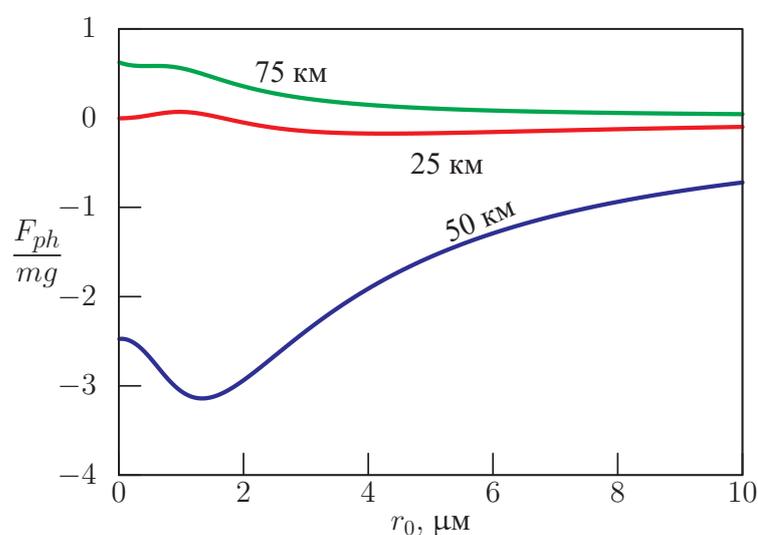


Рисунок 4.11 — Сила фотофоретического взаимодействия двух одинаковых сферических аэрозольных частиц, находящихся на различных высотах в атмосфере в ночное время, в зависимости от размера этих частиц. Частицы находятся почти в контакте друг с другом и, подобно саже, хорошо поглощают видимое и ИК излучение.

условиях силы фотофоретического взаимодействия сравнительно невелики по сравнению с силами, действующими на частицы днём. Эти силы максимум в несколько раз превышают силу тяжести. Кроме того, наблюдается не только отталкивание, но и притяжение частиц. Притяжению на Рисунке 4.11 соответствует отрицательный знак для сил взаимодействия. Притяжение возникает на высотах в окрестности 50 километров. Это происходит потому, что тепловой баланс, определяемый молекулярными потоками тепла, поглощаемой и излучаемой ИК энергией, таков, что температура частиц становится меньше температуры атмосферного газа

[71] (радиационное выхолаживание), и в соответствии с выражением (2.10), фотофоретическая сила меняет знак, т.е. частицы начинают испытывать притяжение друг к другу.

## Глава 5. Влияние фотофоретического отталкивания между аэрозольными частицами на их коагуляцию в вакуумных камерах и атмосфере Земли

### 5.1 Исследование влияния освещения на константу коагуляции

Как показано в предыдущих разделах, даже в присутствии освещения, интенсивность которого не превышает солнечной константы, аэрозольные частицы, сильно поглощающие видимое излучение, испытывают силу фотофоретического отталкивания, существенно превышающую силу тяжести. Это приводит к мысли о том, что такое отталкивание должно сказываться на скорости коагуляции этих аэрозольных частиц. Особенно важным здесь является то, что эта сила фотофоретического отталкивания относится к дальнедействующим силам (выражение (4.1)).

Для проведения этой части исследования использована методика, описанная в разделе 2.7. Начальный участок зависимости  $F_{ph}(r_{12})$  в пределах от  $r_{12} = 2r_0$  до  $r_{12} = 4r_0$  интегрируется численно методом Симпсона с линейной интерполяцией. Здесь, благодаря подбору оптимального числа статистических испытаний, при моделировании методом Монте-Карло, получаются хорошие, гладкие зависимости  $F_{ph}(r_{12})$ . Участок от  $r_{12} = 4r_0$  до бесконечности можно проинтегрировать аналитически, зная, что  $F_{ph}(r_{12}) = C/r_{12}^2$ , подобрав константу  $C$  методом наименьших квадратов (см. страницу 74). Таким образом, потенциал силы фотофоретического отталкивания

$$U_{ph} = \int_{2r}^{\infty} F_{ph} ds$$

можно использовать для вычисления поправки  $\beta$  к константе коагуляции  $K_0$ :

$$K = \beta K_0, \quad \beta = \frac{\lambda_{12}}{e^{\lambda_{12}} - 1} \lambda_{12} = \frac{U_{ph}}{k_B T}, \quad (5.1)$$

где  $K_0$  константа быстрой коагуляции без каких бы то ни было потенциалов взаимодействия и влияний света (константа коагуляции в темноте), а  $K$  – константа медленной коагуляции с учётом фотофоретического отталкивания аэрозольных частиц.

### 5.1.1 Лабораторные условия

Лабораторные условия характерны тем, что в них можно изменять интенсивность падающего на частицы видимого излучения. Поэтому расчёты проведены для интенсивности, соответствующей солнечной константе  $I = 1368 \text{ Вт/м}^2$  и при интенсивностях в 5 раз и в 10 раз её превышающих. К техническим средствам, при помощи которых можно это реализовать, относятся лазеры на парах бромида меди. Длины волн излучения в таких лазерах от 510 до 578 нанометров, что соответствует зелёной спектральной линии слева и жёлтой справа. Режим работы импульсно-периодический, частота следования импульсов 10 – 100 кГц, длительность импульса 20 – 50 наносекунд, средняя мощность 1 – 50 Вт, диаметр пучка 5 – 20 миллиметров.

Согласно результатам расчётов, при освещении тонкодисперсных аэрозольных частиц константа коагуляции незначительно меняется за счёт фотофоретиче-

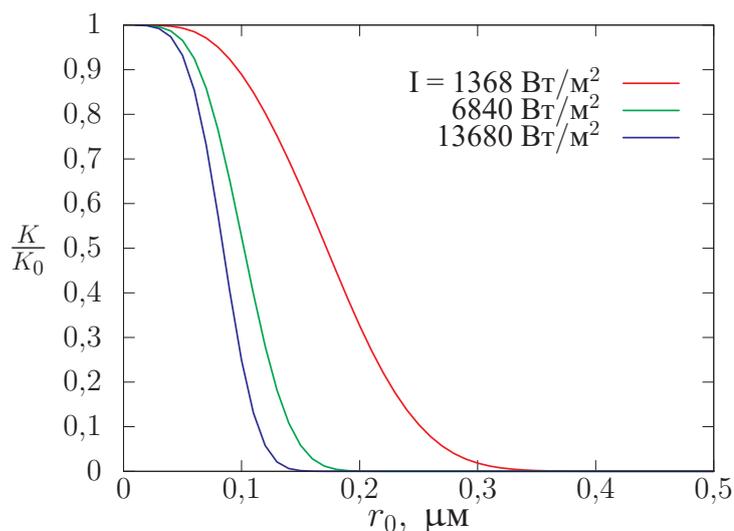


Рисунок 5.1 — Отношение констант коагуляции при освещении, с учётом сил фотофоретического отталкивания, и в условиях темноты в зависимости от размера коагулирующих частиц и интенсивности падающего излучения видимого диапазона,  $\lambda_{max} = 0,5$  микрон. Лабораторные условия, давление атмосферы 1000 Па. Частицы, подобно саже, хорошо поглощают видимое излучение.

ского отталкивания (Рисунок 5.1). Несмотря на то, что для таких частиц величина фотофоретического отталкивания превосходит силу тяжести на два порядка, оказывается, что высоты энергетического барьера  $U_{ph}$  (в выражении (5.1) параметр  $\lambda_{12}$

есть измерение  $U_{ph}$  в единицах  $k_B T$ ) недостаточно для значительного замедления коагуляции.

При увеличении размера частиц величина константы коагуляции в условиях освещения резко падает, на порядки, в сравнении с константой в условиях темноты. Здесь, несмотря на то, что для таких частиц сила фотофоретического отталкивания не в сотни раз, а только в десятки раз превышает силу тяжести, её влияние оказывается существенным. Как уже отмечалось в разделе 4.1.2, масса частицы всегда растёт пропорционально  $r^3$ , а фотофоретическая сила, после начала стабилизации сечения поглощения около  $r = 0,1$  микрон, пропорциональна площади поверхности частицы. В конечном итоге, высоты энергетического барьера  $U_{ph}$  становится достаточно для того, чтобы замедлять коагуляцию.

При увеличении интенсивности падающего на частицы излучения, эффект усиливается, и константа коагуляции начинает изменяться при всё меньших и меньших размерах частиц. Здесь также сказывается и то, что в рассматриваемой модели сильно разогретые поглощённым видимым излучением частицы, становятся «источником горячих молекул», тем самым увеличивая толщину диффузного слоя, как бы осуществляя «торможение на дальних подступах» других частиц. Итак, мы видим, что *эффект фотофоретического взаимодействия способен оказать существенное влияние на процесс коагуляции аэрозольных частиц.*

Как указано ранее в разделе 2.7, при заданном давлении, оценку отношения констант коагуляции имеет смысл проводить для ограниченного диапазона размеров частиц. Согласно модели атмосферы, использованной в данной работе, высоте 30 километров соответствует давление  $p = 1220$  Па и  $T_0 = 232,3$  К. Следовательно, давление в 1000 Па соответствует высоте в атмосфере чуть выше 30 километров. При  $T_0 = 293,15$  К в аэрозольной камере длина свободного пробега молекул газовой среды  $l_{av} \approx 6,74$  микрон. Таким образом, при условии, что за число Кнудсена системы принимается соотношение  $Kn = l_{av}/r_{12}$ , верхняя граница составляет примерно 0,5 микрон, что обеспечивает свободномолекулярный режим при расстоянии между частицами вплоть до 10 радиусов, при этом фотофоретическое отталкивание превышает силу тяжести в несколько раз (Рисунок 4.1).

### 5.1.2 Атмосферные условия

Рисунок 5.2 демонстрирует отношения констант коагуляции (параметр  $\beta = K/K_0$ ) в дневное время и в темноте в зависимости от высоты расположения частиц в атмосфере и их размера. На зависимости для высоты 15 километров точками

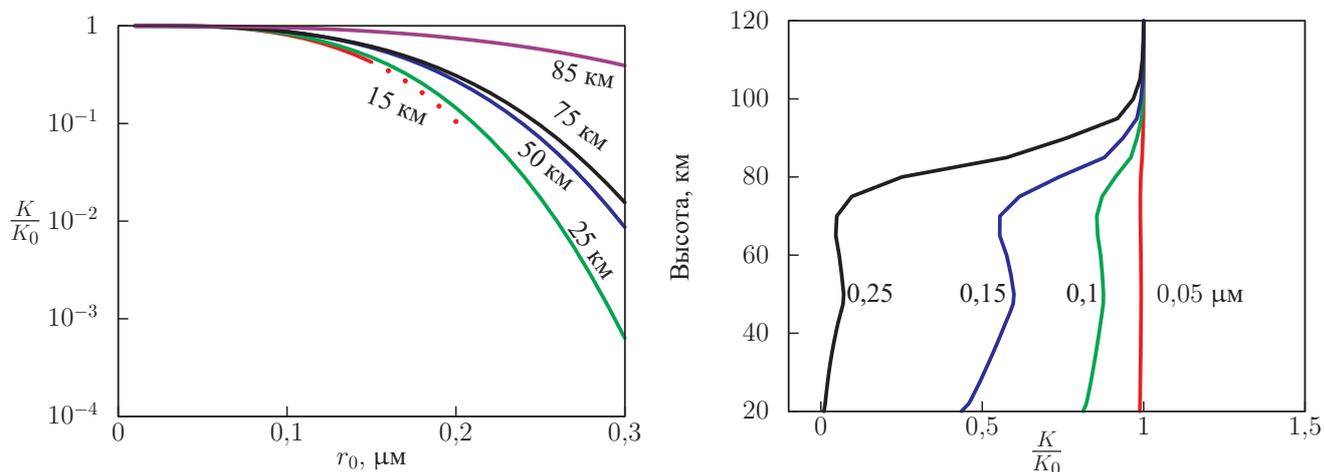


Рисунок 5.2 — Отношение констант коагуляции в дневное время, с учётом сил фотофоретического отталкивания, и без в зависимости от размера частиц (слева) и высоты в атмосфере (справа). Частицы хорошо поглощают видимое и ИК излучение.

обозначен участок кривой, соответствующий выходу за пределы применимости свободномолекулярного режима. Согласно результатам расчётов, при освещении тонкодисперсных аэрозольных частиц константа коагуляции незначительно меняется за счёт фотофоретического отталкивания (Рисунок 5.2 справа). Увеличение размеров коагулирующих частиц приводит к тому, что уже для  $r = 0,15$  микрон в диапазоне высот от 20 до, примерно, 70 километров константа коагуляции уменьшается вдвое. При  $r = 0,2$  микрон имеет место падение константы коагуляции более чем на порядок в том же диапазоне высот.

Итак, мы видим, что эффект фотофоретического взаимодействия способен оказать существенное влияние на процесс коагуляции аэрозольных частиц в атмосфере в дневное время.

## Заключение

Работая над выполнением поставленных задач и достижением конечной цели, автором был исследован значительный пласт литературы по теме диссертации. Сама постановка задачи и суть рассмотренного эффекта фотофоретического взаимодействия аэрозольных частиц, которые хорошо поглощают видимое излучение и преобразуют его в тепло, при относительной простоте не нашли своего описания в литературе. Первый же доклад на конференции European Aerosol Conference в г. Манчестер, Великобритания, в 2011 году, показал, что о таком эффекте не известно и в мировом сообществе специалистов по аэрозолям. Обсуждение было в высшей степени открытым.

К итогам выполненного исследования относится следующее:

1. Разработана вероятностная модель, описывающая фотофоретическое взаимодействие в разреженной газовой среде между поглощающими излучение аэрозольными частицами или кластерами, состоящими из сферических частиц.
2. Разработан алгоритм генерации моделей аэрозольных кластеров, состоящих из сферических частиц.
3. Разработан детальный алгоритм решения задачи расчёта сил фотофоретического взаимодействия между аэрозольными частицами и кластерами на основе метода Монте-Карло и использования матриц переноса.
4. Предложена модификация алгоритма расчёта силы фотофоретического взаимодействия, позволяющая оценить влияние межмолекулярных столкновений на подавление фотофоретической силы.
5. Предложено решение задачи о влиянии фотофоретического взаимодействия сферических аэрозольных частиц на их коагуляцию.
6. Реализован предметно-ориентированный программно-алгоритмический комплекс (или комплекс проблемно-ориентированных программ) по оценке сил фотофоретического взаимодействия в разреженной газовой среде вакуумных камер и атмосферы Земли.
7. Проведены вычислительные эксперименты по исследованию сил фотофоретического взаимодействия, возникающих между аэрозольными частицами и кластерами в разреженной газовой среде вакуумных камер и атмосферы Земли. Показано, что эти силы могут превосходить силу

тяжести в десятки и даже сотни раз, в зависимости от размера частиц и расстояния между ними. Установлено, что для среднedisперсных и грубодисперсных частиц, хорошо поглощающих солнечный свет, фотофоретическое взаимодействие может снижать константу их коагуляции на несколько порядков величины.

В качестве рекомендаций и перспектив дальнейшей разработки темы необходимо отметить следующее. Алгоритм генерации кластеров можно развить и на его основе построить новый алгоритм, с более совершенной процедурой присоединения новых частиц к кластеру. В текущей реализации присоединение производится в точку контакта к другой частице кластера, поэтому каждая его частица имеет контакт не более, чем с одной другой частицей кластера. Такой подход вполне оправдан с точки зрения простоты реализации, скорости и стабильности работы. В тоже время, в реальных агломератах каждая частица имеет несколько контактных соседей. Усовершенствованный алгоритм генерации кластеров позволил бы более точно воспроизводить их реальную морфологию.

Работы по исследованию газокинетических эффектов можно продолжить и рассмотреть ситуацию двух частиц в низкотемпературной слабоионизированной плазме. Однако, это потребует серьёзной модификации алгоритмов. Будет затронут не только алгоритм статистического моделирования, но и алгоритм расчёта температур частиц.

Также можно провести численные эксперименты по «фотофоретической» коагуляции – смоделировать процесс коагуляции аэрозольных частиц с учётом поглощения ими света и возникновения эффекта фотофоретического взаимодействия.

Реализацию программного комплекса необходимо выполнить на языке программирования C++ для возможности выполнения алгоритмов на больших супервычислительных платформах под управлением ОС Linux.

В заключение автор выражает благодарность и большую признательность научному руководителю Черемисину Александру Алексеевичу за поддержку, помощь, обсуждение результатов и научное руководство. Также автор благодарит Васильева Юрия Владимировича за оказанную помощь в проверке реализации ключевых алгоритмов и в работе по сравнению модельных численных расчётов и аналитических оценок. Особую благодарность автор выражает член-корреспонденту РАН Геннадия Алексеевичу Михайлову за поддержку и серьёзную мотивацию к работе, а также официальным оппонентам: д. ф.-м.н. Каргину Борису Александровичу за помощь в организации проведения семинаров и Плотникову

Михаилу Юрьевичу за существенные замечания, которые, несомненно, сделали эту работу лучше. Также автор очень признателен Цибульскому Геннадию Михайловичу, руководителю кафедры, где автор выполнил данную работу. Без его поддержки и помощи многие организационные аспекты были бы затруднены многократно. Я также благодарю своих коллег по работе, без их поддержки и советов было бы существенно труднее. Очень существенной была поддержка родных и близких, особенно супруги, Кушнарченко Елены Евгеньевны, благодаря которой были созданы благоприятные условия для работы. Отдельная благодарность авторам шаблона `Russian-Phd-LaTeX-Dissertation-Template`, в котором оформлена данная работа. Очень важно отметить огромную роль и заслугу моего первого учителя, Иванова Анатолия Александровича, который и познакомил меня впервые с методом Монте-Карло во время моего обучения в университете.

Работа посвящается моему отцу Кушнарченко Виктору Андреевичу.

## Список литературы

1. *Einstein, A.* Über die von der molekularkinetischen Theorie der Wärme geforderte Bewegung von in ruhenden Flüssigkeiten suspendierten Teilchen / A. Einstein // *Annalen der Physik.* — 1905. — Т. 322, № 8. — С. 549—560.
2. *Smoluchowski, M. V.* Drei Vorträge über Diffusion, Brownsche Bewegung und Koagulation von Kolloidteilchen / M. V. Smoluchowski // *Zeitschrift für Physik.* — 1916. — Vol. 17. — P. 557—585.
3. *Lemons, D. S.* Paul Langevin's 1908 paper «On the Theory of Brownian Motion» / D. S. Lemons, A. Gythiel // *American Journal of Physics.* — 1997. — Vol. 65, no. 11. — P. 1079—1081.
4. *Chandrasekhar, S.* Stochastic Problems in Physics and Astronomy / S. Chandrasekhar // *Reviews of Modern Physics.* — 1943. — Vol. 15, no. 1.
5. *Фукс, Н. А.* Механика аэрозолей / Н. А. Фукс. — Издательство академии наук СССР, 1955. — С. 370.
6. *Медников, Е. П.* Акустическая коагуляция и осаждение аэрозолей / Е. П. Медников. — Издательство Академии наук СССР, 1963. — С. 262.
7. *Mednikov, E. P.* Theory of the acoustic coagulation of aerosols / E. P. Mednikov // *Ultrasonics.* — 1969. — Vol. 7, no. 2. — P. 148.
8. *Markauskas, D.* Simulation of Acoustic Particle Agglomeration in Poly-dispersed Aerosols / D. Markauskas, A. Maknickas, R. Kačianauskas // *Procedia Engineering.* — 2015. — Vol. 102. — P. 1218—1225. — New Paradigm of Particle Science and Technology Proceedings of The 7th World Congress on Particle Technology.
9. *Delichatsios, M. A.* Coagulation in turbulent flow: Theory and experiment / M. A. Delichatsios, R. F. Probstein // *Journal of Colloid and Interface Science.* — 1975. — Vol. 51, no. 3. — P. 394—405.
10. *Ивлев, Л. С.* Физика атмосферных аэрозольных систем / Л. С. Ивлев, Ю. А. Довгалюк. — СПб.: НИИХ СПбГУ, 1999. — С. 194.
11. *Баканов, С. П.* Термофорез в газах / С. П. Баканов, Б. В. Дерягин, Б. В. Ролдугин // *Успехи физических наук.* — 1979. — Т. 129, № 10. — С. 255—278.

12. *Jung, H.* Numerical analysis for the thermophoretic coagulation of monodisperse particles at continuum regime / H. Jung, S. Y. Lee, J. H. Kim // *Journal of Colloid and Interface Science.* — 2010. — Vol. 349, no. 1. — P. 438—441.
13. *Грин, Х.* Аэрозоли - пыли, дымы и туманы / Х. Грин, В. Лейн // *Аэрозоли - пыли, дымы и туманы / под ред. Н. Фукс.* — Издание второе, стереотипное. — Издательства "Химия" Ленинградское отделение, 1972. — Гл. Глава 5 Коагуляция. Факторы, влияющие на скорость коагуляции. С. 151—160.
14. *Kennedy, I. M.* Direct numerical simulation of aerosol coagulation with Van der Waals forces / I. M. Kennedy, S. J. Harris // *Journal of Colloid and Interface Science.* — 1989. — Vol. 130, no. 2. — P. 489—497.
15. *Kerminen, V. M.* Correction for the Brownian coagulation coefficient due to Van der Waals forces between non-equal sized particles / V. M. Kerminen, Y. Viisanen, T. Vesala, R. Hillamo // *Journal of Aerosol Science.* — 1991. — Vol. 22, Supplement 1. — S105—S107.
16. *Friedlander, S. K.* *Smoke, Dust, and Haze: Fundamentals of Aerosol Dynamics* / S. K. Friedlander. — New York : Oxford University Press, 2000. — P. 431. — (Topics in Chemical Engineering Series).
17. *Park, S. H.* Coagulation of bipolarly charged ultrafine aerosol particles / S. H. Park, K. W. Lee, M. Shimada, K. Okuyama // *Journal of Aerosol Science.* — 2005. — Vol. 36, no. 7. — P. 830—845.
18. *Reed, L. D.* Particle interactions in low knudsen number thermophoresis / L. D. Reed, F. A. J. Morrison // *Journal of Aerosol Science.* — 1975. — Vol. 6, no. 5. — P. 349—365.
19. *Chen, S. H.* Thermophoretic interactions of aerosol particles with constant temperatures / S. H. Chen // *Journal of Aerosol Science.* — 2002. — Vol. 33, no. 8. — P. 1155—1180.
20. *Rosen, M. H.* The photophoretic force / M. H. Rosen, C. J. Orr // *Journal of Colloid Science.* — 1964. — Vol. 19, no. 1. — P. 50—60.
21. *Yamamoto, K.* Photophoresis of a sphere in a rarefied gas / K. Yamamoto, M. V. Dongen // *Journal of Colloid and Interface Science.* — 1976. — Vol. 57, no. 1. — P. 162—165.
22. *Reed, L. D.* Low Knudsen number photophoresis / L. D. Reed // *Journal of Aerosol Science.* — 1977. — Vol. 8, no. 2. — P. 123—131.

23. *Cheremisin, A. A.* Transfer matrices and solution of the heat-mass transfer problem for aerosol clusters in a rarefied gas medium by the Monte Carlo method / A. A. Cheremisin // Russian Journal of Numerical Analysis and Mathematical Modelling. — 2010. — Vol. 25, issue 3. — P. 209—233.
24. *Keith, D. W.* Photophoretic levitation of engineered aerosols for geoengineering / D. W. Keith // Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America. — 2010. — Vol. 107, no. 38. — P. 16428—16431.
25. *Colbeck, I.* Thermophoretic and photophoretic motion of aerosols / I. Colbeck, E. J. Hardman // Powder Technology. — 1991. — Vol. 65, issue 1—3. — P. 447—451. — A Special Volume Devoted to the Second Symposium on Advances in Particulate Technology.
26. *Rohatschek, H.* Semi-empirical model of photophoretic forces for the entire range of pressures / H. Rohatschek // Journal of Aerosol Science. — 1995. — Vol. 26, no. 5. — P. 717—734.
27. *Rohatschek, H.* Levitation of stratospheric and mesospheric aerosols by gravitophoresis / H. Rohatschek // Journal of Aerosol Science. — 1996. — Vol. 27, no. 3. — P. 467—475.
28. *Фридрихсберг, Д. А.* Курс коллоидной химии / Д. А. Фридрихсберг. — М. «Химия», 1984. — С. 367.
29. *Tolman, R. C.* Relation between the intensity of tyndall beam and concentration of suspensions and smokes / R. C. Tolman, L. H. Reyerson, E. B. Vliet, R. H. Gerke, A. P. Brooks // Journal of the American Chemical Society. — 1919. — Vol. 41, no. 3. — P. 300—303.
30. *Tolman, R. C.* The disappearance of smoke in a confined space / R. C. Tolman, E. B. Vliet, W. M. Peirce, R. H. Dougherty // Journal of the American Chemical Society. — 1919. — Vol. 41, no. 3. — P. 304—312. — eprint: <http://dx.doi.org/10.1021/ja01460a003>.
31. *Tolman, R. C.* A tyndallmeter for the examination of disperse systems / R. C. Tolman, E. B. Vliet // Journal of the American Chemical Society. — 1919. — Vol. 41, no. 3. — P. 297—300.
32. *Whytlaw-Gray, R.* Smoke: a study of aerial disperse systems / R. Whytlaw-Gray, H. Patterson. — E. Arnold, 1932. — P. 192.

33. *Лушников, А. А.* Коагуляция в присутствии внешних источников / А. А. Лушников, В. Н. Пискунов // Доклады Академии Наук СССР. — 1976. — Т. 231, № 6. — С. 1403—1406.
34. *Сутугин, А. Г.* О моделировании коагуляции высокодисперсных аэрозолей / А. Г. Сутугин, А. А. Лушников // Теоретические основы химической технологии. — 1975. — № 2. — С. 210—218.
35. *Fuchs, N. A.* The Mechanics of Aerosols / N. A. Fuchs. — Pergamon Press, 1964.
36. *Грин, Х.* Аэрозоли - пыли, дымы и туманы / Х. Грин, В. Лейн ; под ред. Н. Фукс. — Издание второе, стереотипное. — Издательства "Химия" Ленинградское отделение, 1972. — С. 426.
37. *Yu, M.* A bimodal moment method model for submicron fractal-like agglomerates undergoing Brownian coagulation / M. Yu, T. L. Chan // Journal of Aerosol Science. — 2015. — Vol. 88. — P. 19—34.
38. *Polovnikov, P. V.* Advancement of the kinetic approach to Brownian coagulation on the base of the Langevin theory / P. V. Polovnikov, I. B. Azarov, M. S. Veshchunov // Journal of Aerosol Science. — 2016. — Vol. 96. — P. 14—23.
39. *Palaniswamy, G.* Direct simulation, Monte Carlo, aerosol dynamics: Coagulation and condensation / G. Palaniswamy, S. K. Loyalka // Annals of Nuclear Energy. — 2008. — Vol. 35, no. 3. — P. 485—494.
40. *Wei, J.* A Monte Carlo method for coagulation of charged particles / J. Wei // Journal of Aerosol Science. — 2013. — Vol. 65. — P. 21—25.
41. *Михайлов, Г. А.* Весовой метод Монте-Карло для приближённого решения нелинейного уравнения коагуляции / Г. А. Михайлов, С. В. Рогазинский, Н. М. Урева // Журнал вычислительной математики и математической физики. — 2006. — Т. 46, № 4. — С. 715—726.
42. *Марченко, М. А.* Статистическое моделирование пространственно неоднородной коагуляции с учётом диффузионного переноса частиц / М. А. Марченко // Сибирский журнал вычислительной математики. — 2005. — Т. 8, № 3. — С. 245—258.
43. *Wei, J.* A GPU-based parallelized Monte-Carlo method for particle coagulation using an acceptance-rejection strategy / J. Wei, F. E. Kruijs // Chemical Engineering Science. — 2013. — Vol. 104. — P. 451—459.

44. *Wei, J.* GPU-accelerated Monte Carlo simulation of particle coagulation based on the inverse method / J. Wei, F. E. Kruis // *Journal of Computational Physics*. — 2013. — Vol. 249. — P. 67—79.
45. *Xu, Z.* Fast Monte Carlo simulation for particle coagulation in population balance / Z. Xu, H. Zhao, C. Zheng // *Journal of Aerosol Science*. — 2014. — Vol. 74. — P. 11—25.
46. *Fuchs, N. A.* Über die Stabilität und Aufladung der Aerosole / N. A. Fuchs // *Zeitschrift für Physik*. — 1934. — Т. 89, № 11/12. — С. 736—743.
47. *Кафаров, В. В.* Системный анализ процессов химической технологии : Процессы массовой кристаллизации из растворов и газовой фазы / В. В. Кафаров, И. Н. Дорохов, Э. М. Кольцова ; Академия наук СССР секция химико-технологических и биологических наук ; под ред. Н. М. Жаворонкова. — Москва: Наука, 1983. — С. 368.
48. *Simons, S.* A kernel for combined Brownian and gravitational coagulation / S. Simons, M. Williams, J. S. Cassell // *Journal of Aerosol Science*. — 1986. — Vol. 17, no. 5. — P. 789—793.
49. *Qiao, R.-L.* Effect of Weak Brownian Motion on Gravitational Coagulation / R.-L. Qiao, Z. Li, C.-S. Wen // *Journal of Colloid and Interface Science*. — 1998. — Vol. 202, no. 1. — P. 205—207.
50. *Williams, M.* *Aerosol Science: Theory and Practice : with Special Applications to the Nuclear Industry* / M. Williams, S. Loyalka. — Pergamon Press, 1991. — P. 446.
51. *Subramanian, V.* Experimental study on enhanced Brownian coagulation of sodium compound aerosol in the presence of gamma field / V. Subramanian, R. Baskaran, R. Indira // *Journal of Aerosol Science*. — 2008. — Vol. 39, no. 9. — P. 814—818.
52. *Keh, H. J.* Particle interactions in thermophoresis / H. J. Keh, S. H. Chen // *Chemical Engineering Science*. — 1995. — Vol. 50, no. 21. — P. 3395—3407.
53. *Yalamov, Y. I.* Theory of the photophoretic motion of the large-size volatile aerosol particle / Y. I. Yalamov, V. B. Kutukov, E. R. Shchukin // *Journal of Colloid and Interface Science*. — 1976. — Vol. 57, no. 3. — P. 564—571.
54. *Каблукова, Е. Г.* Численное статистическое моделирование распространения терагерцового излучения в облачном аэрозоле / Е. Г. Каблукова, Б. А. Каргин, А. А. Лисенко, Г. Г. Матвиенко, Е. Н. Чесноков // *Оптика атмосферы и океана*. — 2014. — Т. 27, № 11. — С. 939—948.

55. *Thoré, M.* Le radiomètre d'absorption / M. Thoré // *Les Mondes*. — 1877. — Т. 42. — С. 585—586.
56. *Ehrenhaft, F.* On the physics of millionths of centimeters / F. Ehrenhaft // *Zeitschrift für Physik*. — 1917. — Т. 18. — С. 352—368.
57. *Brock, J. R.* On radiometer forces / J. R. Brock // *Journal of Colloid and Interface Science*. — 1967. — Vol. 25, no. 4. — P. 564—567.
58. *Баканов, С. П.* Термофорез в газах при малых числах Кнудсена / С. П. Баканов // *Успехи физических наук*. — 1992. — Т. 162, № 9. — С. 133—152.
59. *Wurm, G.* Experiments on negative photophoresis and application to the atmosphere / G. Wurm, O. Krauss // *Atmospheric Environment*. — 2008. — Vol. 42, no. 11. — P. 2682—2690.
60. *Rohatschek, H.* Direction, magnitude and causes of photophoretic forces / H. Rohatschek // *Journal of Aerosol Science*. — 1985. — Vol. 16, no. 1. — P. 29—42.
61. *Лифшиц, Е. М.* Физическая кинетика / Е. М. Лифшиц, Л. П. Питаевский. — М: Наука, Главная редакция физико-математической литературы, 1979. — (Теоретическая физика).
62. *China, S.* Morphology and mixing state of individual freshly emitted wildfire carbonaceous particles / S. China, C. Mazzoleni, K. Gorkowski, C. Aiken Allison, M. K. Dubey // *Nature Communications*. — 2013. — July. — Vol. 4.
63. *Karasev, V. V.* Formation of charged soot aggregates by combustion and pyrolysis: charge distribution and photophoresis / V. V. Karasev, N. A. Ivanova, A. R. Sadykova, N. Kukhareva, [et al.] // *Journal of Aerosol Science*. — 2004. — Vol. 35, no. 3. — P. 363—381.
64. *Bohren, C. F.* Absorption and scattering of light by small particles / C. F. Bohren, D. R. Huffman. — New York : Wiley, 1998. — P. 544.
65. *Rohatschek, H.* The photophoretic force on nonspherical particles / H. Rohatschek, W. Zulehner // *Journal of Colloid and Interface Science*. — 1985. — Vol. 108, no. 2. — P. 457—461.
66. *Zulehner, W.* Photophoresis of nonspherical bodies in the free molecule regime / W. Zulehner, H. Rohatschek // *Journal of Colloid and Interface Science*. — 1990. — Vol. 138, no. 2. — P. 555—564.

67. *Huan, J. K.* Thermophoresis and photophoresis of cylindrical particles / J. K. Huan, J. T. Hung // *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*. — 2001. — Vol. 176, no. 2/3. — P. 213—223.
68. *Hidy, G. M.* Photophoresis and the descent of particles into the lower stratosphere / G. M. Hidy, J. R. Brock // *Journal of Geophysical Research*. — 1967. — Vol. 72, no. 2. — P. 455—460.
69. *Tehrani, S.* Photophoresis of micrometer-sized particles in the free-molecular regime / S. Tehranian, F. Giovane, J. Blum, Y.-L. Xu, B. A. S. Gustafson // *International Journal of Heat and Mass Transfer*. — 2001. — Vol. 44, no. 9. — P. 1649—1657.
70. *Cheremisin, A. A.* Photophoretic forces for bispherical aerosol particles / A. A. Cheremisin, Y. V. Vassilyev, A. V. Kushnarenko // *Proc. SPIE 5027, Ninth Joint International Symposium on Atmospheric and Ocean Optics/Atmospheric Physics. Part II. Vol. 5027*. — 2003. — P. 21—32.
71. *Cheremisin, A. A.* Gravito-photophoresis and aerosol stratification in the atmosphere / A. A. Cheremisin, Y. V. Vassilyev, H. Horvath // *Journal of Aerosol Science*. — 2005. — Vol. 36, no. 11. — P. 1277—1299.
72. *Maxwell, J. C.* On Stresses in Rarified Gases Arising from Inequalities of Temperature / J. C. Maxwell // *Philosophical Transactions of the Royal Society of London*. — 1879. — T. 170. — C. 231—256.
73. *Shaw, R. A.* Experimental determination of the thermal accommodation and condensation coefficients of water / R. A. Shaw, D. Lamb // *The Journal of Chemical Physics*. — 1999. — Vol. 111, no. 23. — P. 10659—10663.
74. *Sharipov, F.* Energy accommodation coefficient extracted from acoustic resonator experiments / F. Sharipov, M. R. Moldover // *Journal of Vacuum Science & Technology A*. — 2016. — Vol. 34, no. 6. — P. 061604.
75. *Snelling, D. R.* Determination of the soot absorption function and thermal accommodation coefficient using low-fluence LII in a laminar coflow ethylene diffusion flame / D. R. Snelling, F. Liu, G. J. Smallwood, Ö. L. Gülder // *Combustion and Flame*. — 2004. — Vol. 136, no. 1. — P. 180—190.
76. *Michelsen, H. A.* Derivation of a temperature-dependent accommodation coefficient for use in modeling laser-induced incandescence of soot / Michelsen, H. A. // *Applied Physics B Laser and Optics*. — 2009. — Vol. 94. — P. 103—117.

77. *Maffi, S.* Investigation on thermal accommodation coefficient and soot absorption function with two-color TIRE-LII technique in rich premixed flames / S. Maffi, S. De Iuliis, F. Cignoli, G. Zizak // *Applied Physics B Lasers and Optics*. — 2011. — Vol. 104, issue 2, no. 2. — P. 357—366.
78. *Соболь, И. М.* Численные методы Монте-Карло / И. М. Соболь. — Наука, 1973. — С. 312.
79. *Михайлов, Г. А.* Оптимизация весовых методов Монте-Карло / Г. А. Михайлов. — Наука, 1987. — С. 238.
80. *Михайлов, Г. А.* Весовые алгоритмы статистического моделирования / Г. А. Михайлов ; под ред. Б. А. Каргин. — ИВМ и МГ СО РАН, 2003. — С. 184.
81. *Михайлов, Г. А.* Численное статистическое моделирование. Методы Монте-Карло. / Г. А. Михайлов, А. В. Войтишек. — Академия, 2006. — С. 368.
82. *Tian, K.* Determination of the morphology of soot aggregates using the relative optical density method for the analysis of TEM images / K. Tian, K. A. Thomson, F. Liu, D. R. Snelling, G. J. Smallwood, D. Wang // *Combustion and Flame*. — 2006. — Vol. 144, no. 4. — P. 782—791.
83. *Arora, P.* Morphological characteristics of particles emitted from combustion of different fuels in improved and traditional cookstoves / P. Arora, S. Jain // *Journal of Aerosol Science*. — 2015. — Vol. 82. — P. 13—23.
84. *Смирнов, Б. М.* Фрактальные кластеры / Б. М. Смирнов // *Успехи физических наук*. — 1986. — Т. 149, № 6. — С. 177—219.
85. *Смирнов, Б. М.* Свойства фрактального агрегата / Б. М. Смирнов // *Успехи физических наук*. — 1989. — Т. 157, № 2. — С. 357—360.
86. *Федер, Е.* Фракталы / Е. Федер. — М. «Мир», 1991. — С. 254.
87. *Lottin, D.* On methods determining the fractal dimension of combustion aerosols and particle clusters / D. Lottin, D. Ferry, J. M. Gay, D. Delhaye, F. X. Ouf // *Journal of Aerosol Science*. — 2013. — Vol. 58. — P. 41—49.
88. *Kahnert, M.* Review: Model particles in atmospheric optics / M. Kahnert, T. Nousiainen, H. Lindqvist // *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*. — 2014. — Vol. 146. — P. 41—58. — *Electromagnetic and Light Scattering by Nonspherical Particles {XIV}*.

89. Михайлов, Б. М. Образование фрактальных структур в газовой фазе / Б. М. Михайлов, С. С. Власенко // Успехи физических наук. — 1995. — Т. 165, № 3. — С. 263—283.
90. Ролдугин, В. И. Свойства фрактальных дисперсных систем / В. И. Ролдугин // Успехи химии. — 2003. — Т. 72, № 11. — С. 1027—1054.
91. Черемисин, А. А. Оценка фотофоретического взаимодействия аэрозольных частиц в стратосфере / А. А. Черемисин, А. В. Кушнарченко // Оптика атмосферы и океана. — 2010. — Т. 23, № 6. — С. 475—479.
92. Cheremisin, A. A. Photophoretic interaction of aerosol particles and its effect on coagulation in rarefied gas medium / A. A. Cheremisin, A. V. Kushnarenko // Journal of Aerosol Science. — 2013. — Vol. 62. — P. 26—39.
93. Черемисин, А. А. Фотофоретическое взаимодействие аэрозольных частиц и его влияние на коагуляцию в атмосфере / А. А. Черемисин, А. В. Кушнарченко // Оптика атмосферы и океана. — 2014. — Т. 27, № 12. — С. 1090—1098.

## Приложение А

## Свидетельство о государственной регистрации программы для ЭВМ

РОССИЙСКАЯ ФЕДЕРАЦИЯ



## СВИДЕТЕЛЬСТВО

о государственной регистрации программы для ЭВМ

№ 2013612189

Моделирование фотофоретического  
движения аэрозольных частиц

Правообладатель(ли): **Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего профессионального образования «Сибирский федеральный университет» (СФУ) (RU)**

Автор(ы): **Кушнарченко Андрей Викторович (RU)**

Заявка № **2012661568**

Дата поступления **24 декабря 2012 г.**

Зарегистрировано в Реестре программ для ЭВМ  
**18 февраля 2013 г.**

Руководитель Федеральной службы  
по интеллектуальной собственности

Б.П. Симонов

