

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.
Введение	5
Глава 1. Обзор литературы	10
1.1 Общие сведения о коагуляции аэрозольных частиц	10
1.2 Модели с учётом взаимодействия аэрозольных частиц	15
1.3 Факторы, оказывающие влияние на коагуляцию аэрозольных частиц	18
1.4 Газокинетические явления и коагуляция аэрозольных частиц	19
1.5 Уравнения Больцмана и фотофоретические явления в газовой среде	21
1.6 Постановка задачи и общие подходы к решению	27
Глава 2. Разработка вероятностной модели и алгоритмов Монте-Карло для расчёта фотофоретического взаимодействия аэрозольных частиц	32
2.1 Физическая и геометрическая модели задачи расчёта фотофоретической силы	32
2.2 Вероятностная модель взаимодействия аэрозольной системы с разреженной газовой средой	35
2.3 Алгоритм решения задачи на основе использования специальных матриц переноса	39
2.4 Геометрическая модель кластерных систем, состоящих из сферических частиц	43
2.5 Поиск пересечений молекулярных траекторий с поверхностями аэрозольной системы	47
2.6 Оценка условий применимости аппроксимации свободномолекулярного режима	50
2.7 Аппроксимация для поправки к константе коагуляции на основе метода аналогий	51
Глава 3. Программный комплекс	53
3.1 Использование базового алгоритма а ранних работах	53
3.2 Реализация программного комплекса	53

	Стр.
3.3	Функциональные особенности программного комплекса 56
3.4	Оценка точности расчётов и подбор числа статистических испытаний 62
Глава 4. Результаты вычислительных экспериментов по изучению	
силы фотофоретического отталкивания между аэрозольными	
частицами в вакуумных камерах и атмосфере Земли 64	
4.1	Фотофоретическое взаимодействие аэрозольных частиц в
	вакуумных камерах 64
4.1.1	Исследование зависимости от расстояния между частицами 64
4.1.2	Исследование зависимости силы от размера частиц 65
4.1.3	Исследование зависимости от интенсивности падающего
	излучения 67
4.1.4	Исследование зависимости от давления окружающей
	газовой среды 68
4.1.5	Влияние межмолекулярных столкновений на подавление
	силы фотофоретического отталкивания 69
4.1.6	Взаимодействие частиц различающихся по размерам 70
4.1.7	Фотофоретическое взаимодействие частиц с аэрозольным
	кластером 71
4.2	Фотофоретическое взаимодействие аэрозольных частиц в
	атмосфере Земли 72
4.2.1	Исследование зависимости фотофоретического
	взаимодействия от расстояния между частицами на
	различных высотах в атмосфере Земли в дневное время . . . 72
4.2.2	Исследование зависимости фотофоретического
	взаимодействия от размера частиц на различных высотах в
	дневное время 73
4.2.3	Особенности фотофоретического взаимодействия в
	атмосфере Земли в ночное время 75
Глава 5. Влияние на коагуляцию 77	
5.1	Исследование влияния освещения на константу коагуляции 77
5.1.1	Лабораторные условия 77
5.1.2	Атмосферные условия 77

	Стр.
Заключение	80
Список литературы	82

Введение

В настоящее время наблюдается повышенный интерес к задачам моделирования коагуляции аэрозольных частиц с учётом факторов, влияющих на этот процесс, что связано с широким распространением этих процессов в природе и технике, в частности, с задачами нанотехнологий и загрязнения атмосферы.

Теоретическое описание явление 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 она практически никогда не протекает без их участия. К таким факторам относятся присутствие в газовой среде звуковых волн (акустическая коагуляция[6–8]), турбулентности[9], внешних сил (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 и изучение 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 проблемно-ориентированных программ 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 излучение 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 комплекс проблемно-ориентированных программ для проведения вычислительного

эксперимента по оценке фотофоретического взаимодействия аэрозольных кластеров, состоящих из сферических частиц, в условиях разреженной газовой среды вакуумных камер или стратосферы и мезосферы Земли.

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 из 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)

Личный вклад соискателя состоит в разработке детальной 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 конфигурации поверхностей системы, а также алгоритмом построения и решения уравнений теплового баланса в системе. Программный 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 и заключения. Полный объём диссертации составляет 89 страниц, включая 32 рисунка и 0 таблиц. Список литературы содержит 79 наименований.

Глава 1. Обзор литературы

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 [24]. 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»), состоящего из сферических частиц одинакового радиуса. Это означает следующее: предполагается, что одна из частиц неподвижна, 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

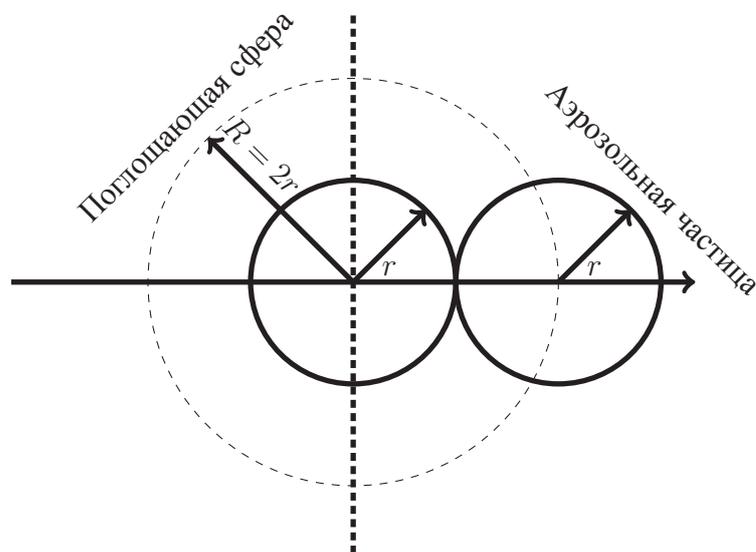


Рисунок 1.1 — Модель «поглощающей сферы»

разработке своей теории он 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 их интенсивности 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 kBT , где k – константа Больцмана, T – температура газовой среды, B – 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 [25; 26]. В этих экспериментах производилось измерение изменения интенсивности конуса Тиндаля¹ 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 [27] от весовой концентрации и среднего размера частиц дыма на основе независимых экспериментов, авторы 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 [28]. Эти методы были применены ими для определения изменения числа частиц с течением времени.

Не смотря 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

¹Это 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.

времени, распределения частиц по размерам, термобарических параметров среды, вида аэрозоля и т.д. Так, например, если аэрозольные частицы просто имеют 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[29]. Возникают уравнения вида:

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

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_{ij} – 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[30]. 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 он 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. Им был опубликован ряд работ по электрической зарядке частиц, хроматографии с И.В. Петряновым, которые считаются пионерскими, много сделано в теории фильтрации совместно с А.А. Киршом. Особую известность Н.А. Фуку принесло издание его монографии «Механика аэрозолей» в 1955 году в Советском Союзе [5], а затем за рубежом в 1964 году [31]. Эта его монография

признана классической и первой, в общем систематизирующей науку об аэрозолях. Очень многие последующие книги по физике аэрозолей [16; 32] 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 [33; 34]. Вместе с тем, существуют и другие подходы. Так, например, успешно применяется метод Монте-Карло для моделирования процесса коагуляции [35; 36], при этом производится распараллеливание алгоритмов для его реализации на GPU [37—39].

1.2 Модели 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 [40]. 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 и одноимённого или противоположного знака [5].

Пусть $F(h)$ сила, действующая между шарообразными монодисперсными частицами радиуса r , где h – расстояние между их центрами. Концентрацию частиц обозначим n . Необходимо решить задачу о диффузии 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 $D = kBT$. 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:

$$\frac{d}{dh} \left(Dh^2 \frac{dn}{dh} - Bh^2 Fn \right) = 0$$

Отсюда следует, что

$$4\pi \left(Dh^2 \frac{dn}{dh} - Bh^2 Fn \right) = \operatorname{const} = M \quad (1.3)$$

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 $n(h)$: первое $n = n_0$; $h \rightarrow \infty$ и второе $n = 0$; $h = R = 2r$, где R – радиус поглощающей сферы. Интегрирование уравнения (1.3) с соблюдением первого условия даёт:

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

Второе условие даёт:

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

Произведём замену B/D на $1/kT$ и $\int_{\infty}^h F(h) dh$ на потенциал силы $u(h)$. Из (1.4) получим

$$M = \frac{4\pi D n_0}{\int_{2r}^{\infty} \frac{1}{h^2} \exp \frac{u(h)}{kT} dh} \quad (1.5)$$

Здесь удобно произвести замену $x = h/2r$. Тогда (1.5) принимает вид:

$$M = \frac{8\pi D n_0 r}{\int_1^{\infty} \frac{1}{x^2} \exp \frac{u(x)}{kT} dx}$$

Если нет никакой силы взаимодействия между частицами, то имеем:

$$M_0 = 8\pi Dn_0r$$

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

$$\beta = \frac{1}{\int_1^{\infty} \frac{1}{x^2} \exp \frac{u(x)}{kT} dx}$$

Коэффициент β есть не что иное как и 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

$$\lambda_{12} = \frac{q_1 q_2}{2rkT}.$$

Обобщённый подход к решению этой задачи позволил сформулировать прямо 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; 41; 42]. 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 и сформулирован более совершенный математический аппарат для его описания. 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[43]. Также необходимо отметить такие экспериментальные работы как[44] 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 усиливается 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 [45] показано, что это оно, в среднем, достаточно слабое и падает с расстоянием между частицами как $1/r^3$, где r – 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; 46], 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.

Экспериментальное исследование [47] выявило, что есть 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 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 [47] единственная, которую удалось обнаружить при поиске работ, посвящённых исследованиям влияния света на коагуляцию аэрозольных частиц. Вместе с тем, исходя из постановки эксперимента, она не была направлена на исследования 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, относящейся к воздействию света на скорость коагуляции аэрозолей.

1.5 Уравнения Больцмана и фотофоретические явления в газовой среде

Первые задокументированные упоминания о явлении фотофореза аэрозольных частиц сделаны французским исследователем М. Тором [48]. Но открытие фотофореза принадлежит Феликсу Эренхафту [49], поскольку именно он впервые системно описал это явление, проведя серию экспериментов, и дал 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 некоторые 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 фотофоретический эффект – это явление, относящееся к классу газокинетических явлений, обусловленное радиометрическим эффектом [20; 50]. 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 возникает 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 эффект теплового скольжения (thermal creep). В этом случае задачу о нахождении фотофоретической силы обычно рассматривают с точки зрения уравнений газогидродинамики [46]. Сама задача о расчёте скорости теплового скольжения имеет тесную взаимосвязь с уравнением Больцмана [51].

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 газокINETический подход для описания явления фотофореза. Особенностью свободномолекулярного 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 ΔT -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 α , интерпретируется в соответствии с зеркально-диффузионной схемой отражения молекул, сформулированной Максвеллом: α 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 [52; 53]. 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 ΔT -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 [54]. 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 α , то есть $\Delta\alpha$ -фотофорез. Рохачек указывает, что ΔT -фотофорез в этом эксперименте играет существенную роль, а именно, является направляющим, так как крутящий момент силы $\Delta\alpha$ -фотофореза может выровнять частицы, на которую действует сила $\Delta\alpha$ -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 $\Delta\alpha$ -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 [52] 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 ΔT 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 известными как законы сохранения. Соответственно, она очень тесно связана с вопросами корректности задач для систем нелинейных дифференциальных и интегродифференциальных уравнений Больцмана(1.6)

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

описывающих, 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 [55]. Белая полоса сверху каждой части рисунка – это масштабная линия, соответствующая 500 нанометрам. Соответственно, на рисунке представлены четыре разные категории частиц. Можно видеть, что это сложные по форме частицы, порядка 0,5 микрона (Рисунок 1.2а), представляющие собой единое тело; составные частицы, размером около 2,5 – 3 микрона, из тел сложной формы – аэрозольные агрегаты (Рисунок 1.2б); аэрозольные кластеры размером 3 – 5 микрон, состоящие из сотен сферических и квазисферических частиц(Рисунок 1.2с), размер каждой из которых около 10 – 30 нанометров [56]; аэрозольные кластеры размером около 1-2 микрон, состоящие из

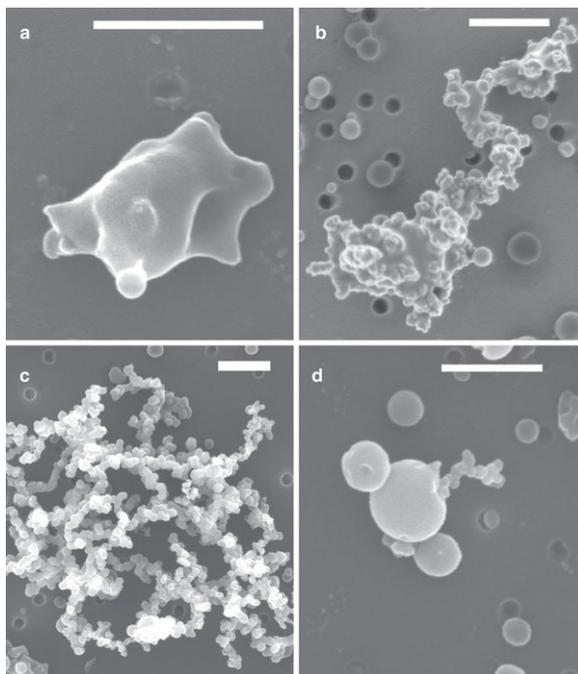


Рисунок 1.2 — Пример сложных сажевых аэрозольных частиц.

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 $\rho = \pi D/\lambda$ [57]. Расчёту фотофоретической силы для несферических частиц посвящены работы [58–60].

Для расчёта газокинетической части сделаем сначала предположение, что частица покоится относительно окружающего газа. Сделаем также допущение о том, что выполняются условия свободно молекулярного приближения [61; 62]. 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 α – 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 [63] 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}_α – 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, Φ_{abs} – поток ИК излучения Земли, Φ_{emi} – поток ИК излучения, эмитируемого частицей. Плотность молекулярного потока энергии в свободно молекулярном режиме

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

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

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

где $\bar{\alpha} = \frac{1}{S} \int_S \alpha_S dS$ – среднее значение коэффициента термической аккомодации, $c_{v,ef} = c_v + \frac{1}{2}k$ есть эффективная теплоёмкость молекул. Для двухатомных молекул атмосферного газа $c_{v,ef} \approx 4k$. 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 в объёме частицы и на её поверхности определяется балансом между выделением энергии внутри частицы 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 Постановка задачи 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.

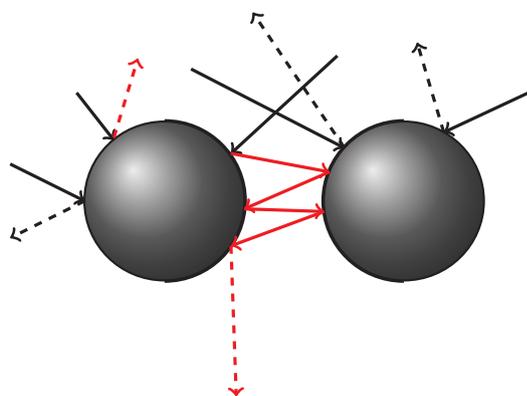


Рисунок 1.3 — Молекулярные траектории, возникающие в аэрозольной системе из двух частиц.

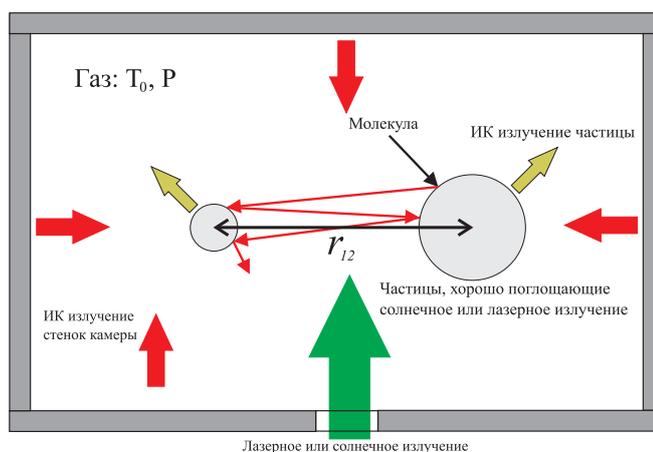


Рисунок 1.4 — Схематическое представление радиационных потоков в условиях вакуумной аэрозольной камеры.

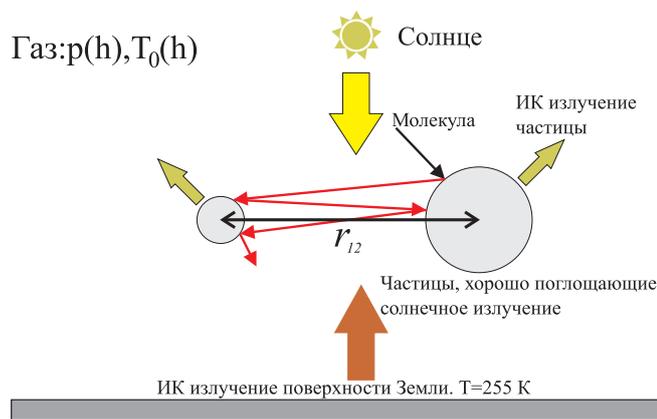


Рисунок 1.5 — Схематическое представление радиационных потоков для атмосферных условий.

В это же время, на части поверхностей частиц, которые обращены друг к другу, могут падать как молекулы из невозмущенной 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 о аэрозолях. Для это-

го изберём метод компьютерного моделирования и на основе численных расчётов оценим эффект и его влияния 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 [64]. 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, и 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 различными частями 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

таких объектов, при взаимодействии с которыми молекулы газа могут многократно сталкиваться с поверхностями частицы, аналитическое вычисление, естественно, становится невозможным.

Для задачи о фотофоретическом взаимодействии аэрозольных частиц, явление многократного столкновения молекул газовой среды с поверхностями частиц играет определяющую роль. Поэтому в данной работе поставлена задача разработки вероятностной модели, описывающей фотофоретическое взаимодействие в разреженной газовой среде между поглощающими изучение 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 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.

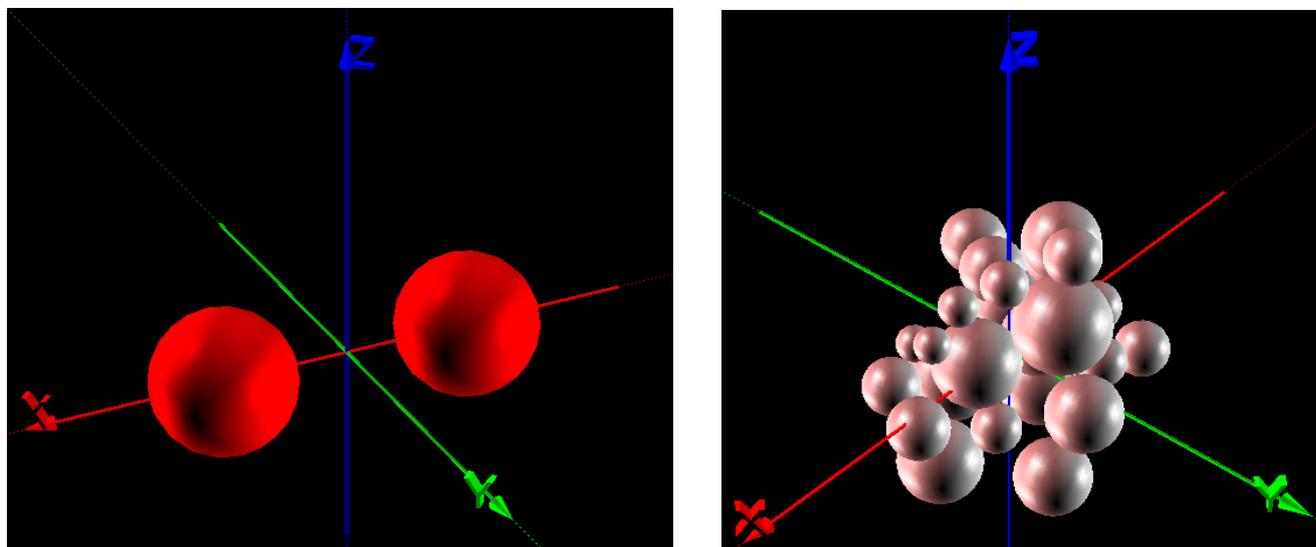


Рисунок 2.1 — Иллюстрация к модели аэрозольной системы двух сферических частиц (слева) и аэрозольного агломерата (справа)

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

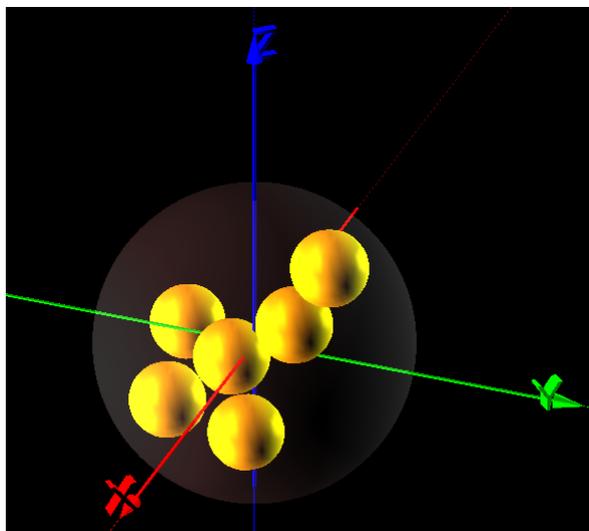


Рисунок 2.2 — Иллюстрация к модели аэрозольной системы и опорной сферы

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 α , 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 [65] (Рисунок 2.3). В

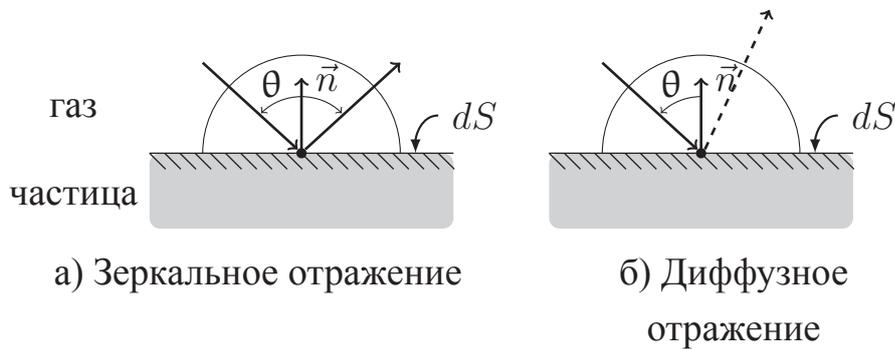


Рисунок 2.3 — Зеркально-диффузионная схема взаимодействия молекул с элементом поверхности аэрозольной частицы

данной работе допущено, что коэффициент аккомодации равен 0,5 для всех частиц.

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 со стороны молекул с температурой T_i может быть представлена в виде интеграла:

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

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, начавших свой путь по аэрозольной системе из одной и той же точки на поверхности опорной сферы и имеющих одно и то же направление, справедливо то, 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 методом Монте-Карло [66; 67]. Можно перейти от рассмотрения физической модели пространственных траекторий реальных молекул, к вероятностно эквивалентной ей модели – вероятностной модели, и в результате, задача сводится к воспроизведению равномерно-случайного распределения начальных точек молекулярных траекторий (иначе говоря начального состояния) на опорной сферы и выбора 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 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 Ω , 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 «-» 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 не подвижна относительно газа, средний физический элементарный поток числа молекул через элемент площади dS , в направлении \vec{e}_Ω , 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, θ – угол между единичной нормалью \vec{e}_s к площадке dS и направлением движения молекул в пучке \vec{e}_Ω , $\vec{e}_\Omega = \frac{\vec{v}}{v}$, $\cos \theta = (\vec{e}_s, \vec{e}_\Omega)$. 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 :

$$v(T) = \sqrt{\frac{8k_B T}{\pi m}} \quad (2.5)$$

Плотность распределения потока молекул g_0 :

$$g_0(s, \Omega, v) = G_{S\Omega}(s, \Omega) \cdot g_M(v|T) \quad (2.6)$$

Распределение по скоростям в потоке молекул с температурой T :

$$g_M(v|T) = \frac{v f_M(v|T)}{v(T)} \quad (2.7)$$

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

$$G_{S\Omega}(s, \Omega) = g_s(s) g_\Omega(\Omega|s), \quad (2.8)$$

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 записать поток молекул:

$$d^3 J = j_0 \cdot S_0 \cdot g_0(s, \vec{\Omega}, v) \cdot ds \cdot d\Omega \cdot dv \quad (2.9)$$

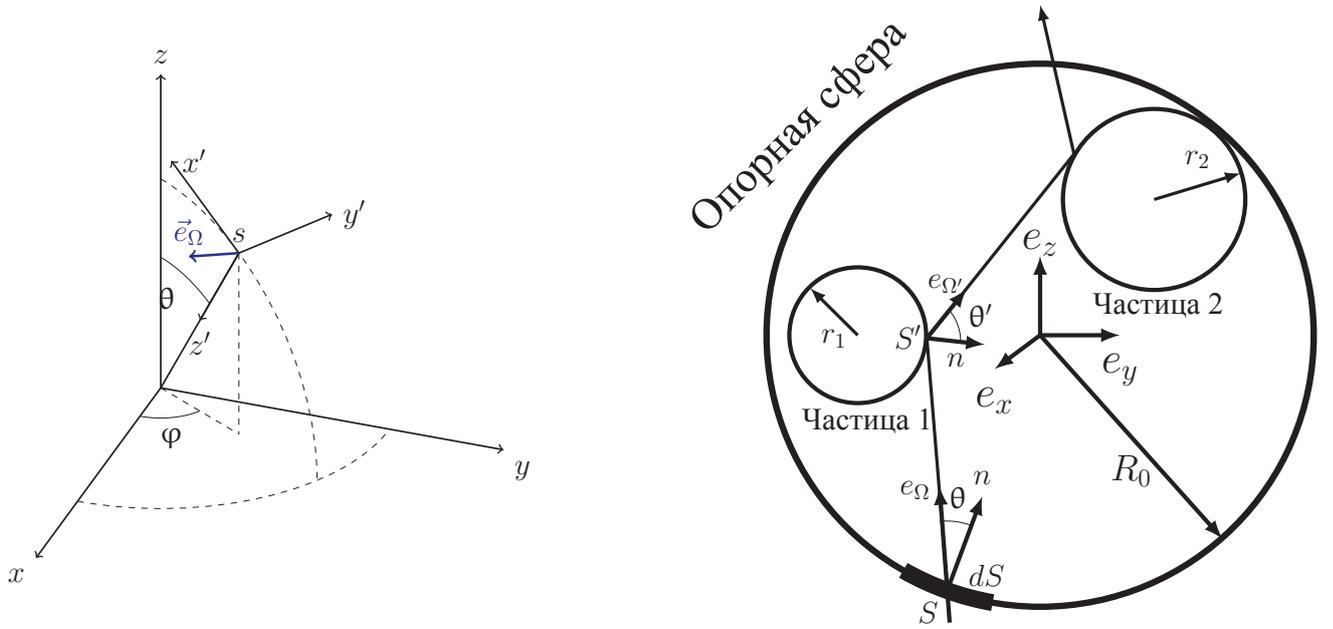


Рисунок 2.4 — Локальная система координат

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 Ω^- и Ω^+ 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:

$$J_h = \gamma_h \left[\int_{S_i} \int_{\Omega^+(s)} \int_V h(x) g^+(x) ds d\Omega dv - \int_{S_i} \int_{\Omega^-(s)} \int_V h(x) g^-(x) ds d\Omega dv \right] \quad (2.10)$$

Выражение (2.10) 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 ε_{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 χ_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 χ_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).

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}_Ω) :
 - 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 α' и α'' . Компоненты радиус-вектора \vec{R} , направленного из центра в точку сферы рассчитываются по следующим формулам:

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

- б) Определяется направляющий вектор траектории \vec{e}_Ω . 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 θ угол между направлением движения и нормалью к поверхности. Генерируются два независимых стандартных случайных числа α' и α'' . Компоненты вектора \vec{e}_Ω рассчитываются по формулам: $e_z = \sqrt{\alpha'}$, $e_y = \sqrt{1 - \alpha'} \sin 2\pi\alpha''$, $e_x = \sqrt{1 - \alpha'} \cos 2\pi\alpha''$. Затем компоненты этого вектора пересчитываются в исходную систему координат. Значения индикаторов χ_T и χ_S устанавливаются равными нулю.
2. Ищется следующая точка пересечения молекулярной траектории с какой-либо аэрозольной поверхностью. Индикатору χ_S присваивается значение, соответствующее индексу поверхности. Если траектория вновь пересекает опорную поверхность, то траектория обрывается.
 3. С вероятностью α реализуется диффузное отражение. Соответственно, с вероятностью $(1 - \alpha)$ реализуется зеркальное отражение.
 - а) В случае зеркального отражения индикатор χ_T не меняет своего значения, а направляющий вектор \vec{e}_Ω 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}_Ω – 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 χ_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:

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

Здесь суммирование производится по столкновениям. Индекс j означает номер столкновения, а N полное число столкновений. Статистическое усреднение значений $\zeta_{i,k,\alpha}^F$ 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 δ_{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:

$$F_{1,\alpha}^{ph} = 3\pi R_0^2(p/\sqrt{T_0}) \sum_{k=1}^n P_{1,k,\alpha}^F(\sqrt{T_k} - \sqrt{T_0}), \alpha = x, y, z \quad (2.11)$$

Здесь $P_{i,k,\alpha}^F$ означает элементы матрицы переноса импульса. Первый индекс соответствует индексу частиц в системе, второй – индексу температуры молекулы соударяющейся с частицей, определённая 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 [64]. 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:

$$\frac{dQ_i}{dt} = \sum_{k=0}^n \lambda_{ik}(T_k - T_i) + \Phi_{abs,i}^V + \Phi_{abs,i}^{IR} - \Phi_{emi,i}^{IR} = 0, \quad i = 1, \dots, n \quad (2.12)$$

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:

$$\begin{aligned} \Phi_{abs}^V &= \pi r^2 I \varepsilon_{abs}^V, \\ \Phi_{abs}^{IR} &= 4\pi r^2 \sigma T_W^4 \varepsilon_{abs}^{IR}, \\ \Phi_{emi}^{IR} &= 4\pi r^2 \sigma T_S^4 \varepsilon_{abs}^{IR}, \end{aligned} \quad (2.13)$$

Здесь r – радиус частицы, I – плотность потока падающего внешнего излучения лазера или других источников видимого излучения, σ – 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 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 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:

$$\Phi_{abs}^{IR} = 2\pi r^2 \sigma T_B^4 \varepsilon_{abs}^{IR} \quad (2.14)$$

Тепловое излучение, исходящее от поверхности Земли и поглощаемое частицами, представлено как излучение от абсолютно чёрной плоскости с температурой $T_B =$

255 К. 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 ε_{abs}^V , ε_{abs}^{IR} и ε_{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_{λ} - это распределение Планка для соответствующей температуры, λ - 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 $1.95 - 0.66i$ [68]. Сечение поглощения было вычислено согласно теории Ми [57]. Плотность материала частиц была принята равной 1000 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 [56; 69; 70]. Аэрозольный кластер представляет собой агломерат сферических частиц, образуя при этом фрактальную структуру [71—74]. 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 [75]. 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; 73; 76]:

$$N_p \sim R^{D_f} \quad (2.15)$$

Здесь N_p – число частиц в кластере; R – радиус минимальной сферы, которую можно описать вокруг кластера. Согласно [73, 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 [56] аэрозольные кластера, полученные авторами в эксперименте путём сжигания пропана в пламени состоят из сферических частиц размером 10-30 нм, а кластера, полученные путём пиролиза бензола в проточном реакторе, из сферических частиц размером 40-200 нм. При этом фрактальная размерность кластеров $D_f = 1,8$. В литературе также даётся определение фрактальной размерности исходя соотношения:

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

Для параметра A используются термины «рефактор», «структурный фактор» и «лакуарность» [77]. 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:

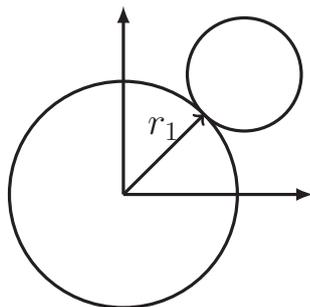
$$D_f = \frac{\ln(N_p/A)}{\ln(R/a)} \quad (2.16)$$

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.)

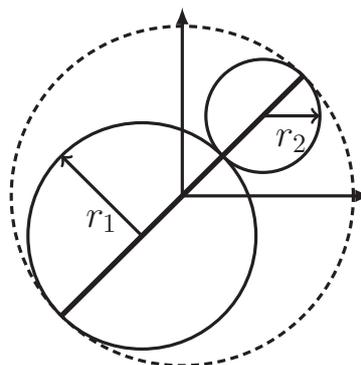
составляют 0,01–0,05 микрон, а размеры кластеров могут иметь размеры от нескольких десятых до примерно десяти микрон.

Таким образом, необходимо, чтобы алгоритм выполнял построение кластера, присоединяя частицы к нему по одной, стремясь выполнять формулу (2.16). Алгоритм основан на методе Монте-Карло 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: $R_{pz} = r_1 (1 - 2 \cdot \alpha')$, $R_{py} = r_1 \sqrt{1 - R_{pz}^2} \cdot \sin 2\pi\alpha''$, $R_{px} = r_1 \sqrt{1 - R_{pz}^2} \cdot \cos 2\pi\alpha''$, где α' и α'' два независимых стандартных случайных числа, r_1 - радиус первой аэрозольной частицы. Возможный результат такого присоединения представлен на Рисунке 2.5а.
 - в) Частицы смешаются 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 (2.15) и (2.16). 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) Соединение
двух частиц



б) Выравнивание
частиц после
соединения

- а) Генерируется новая частица со случайным радиусом r_n .
 б) На сфере кластера ищется точка по формулам:

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

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

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

Разыгрывается направление, по которому очередная частица приближается к кластеру из данной, только что найденной на кластерной сфере точки. Для этого разыгрывается случайный единичный вектор: $e_z = \sqrt{\alpha'}$, $e_y = \sqrt{1 - \alpha'} \cdot \sin 2\pi\alpha''$, $e_x = \sqrt{1 - \alpha'} \cdot \cos 2\pi\alpha''$

- 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 2.2. 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 необ-

ходимо (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 2.2. 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 2.1.

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, судя по многочисленным литературным источникам.

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. Необходи-

мо 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:

$$(x - x_0)^2 + (y - y_0)^2 + (z - z_0)^2 = r^2 \quad (2.17)$$

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

$$\begin{cases} x = x_s + e_x t \\ y = y_s + e_y t \\ z = z_s + e_z t \end{cases} \quad (2.18)$$

Подставив (2.18) в (2.17) и раскрыв квадраты, получим следующее квадратное уравнение относительно t :

$$\begin{aligned} & (e_x^2 + e_y^2 + e_z^2) t^2 + \\ & 2t(e_x(x_s - x_0) + e_y(y_s - y_0) + e_z(z_s - z_0)) + \\ & (x_s - x_0)^2 + (y_s - y_0)^2 + (z_s - z_0)^2 - r^2 = 0 \end{aligned} \quad (2.19)$$

Следует заметить, что $e_x^2 + e_y^2 + e_z^2 = 1$, поскольку \vec{e} - единичный вектор. Таким образом уравнение (2.19) является приведённым квадратным уравнением вида $t^2 + bt + c = 0$, где

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

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 2.5). 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

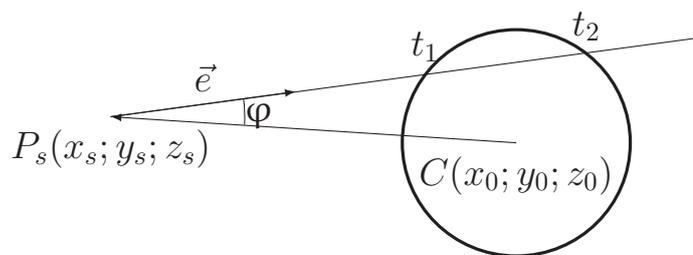


Рисунок 2.5 — Пересечение сферы траекторией

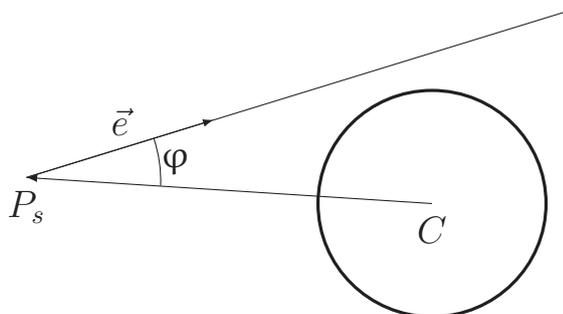


Рисунок 2.6 — Пролегание траектории мимо сферы

из точки начала траектории в центр сферы меньше $\pi/2$ (Рисунок 2.6). При положительном дискриминанте и коэффициенте b квадратное уравнение (2.19) 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 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 (2.18) 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, окружающей 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 со 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 упоминалось в разделе 1.2, существует общий подход к решению задачи о нахождении поправки к константе коагуляции, при наличии взаимодействия между частицами, в котором взаимодействие частиц учитывается через введение энергетического барьера [5, §51]. Например для электростатического взаимодействия поправка может быть найдена следующим образом:

$$K = \beta K_0, \quad \beta = \frac{\lambda_{12}}{e^{\lambda_{12}} - 1} \quad (2.20)$$

где K_0 - константа коагуляции для незаряженных частиц, β - поправочный коэффициент, $\lambda_{12} = U/kT$, $U = q_1q_2/2r$ есть энергия электростатического взаимодействия частиц радиуса 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. Заменим электростатическую энергию U на работу фотофоретической силы U_{ph} при сближении частиц:

$$\lambda_{12} = \frac{U_{ph}}{kT}, \quad U_{ph} = \int_{2r}^{\infty} F_{ph} ds \quad (2.21)$$

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. Программный комплекс

Описанные ранее алгоритмы реализованы в специальном 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 Использование базового алгоритма а ранних работах

Ранее базовый алгоритм[23] был использован при исследовании гравитофотофоретического движения сложных аэрозольных частиц и агломератов в средней и верхней атмосфере Земли. Были опубликованы работы[63; 64; 78]. В совокупности с экспериментальными работами и наблюдениями за аэрозольными слоями, удалось показать роль явления фотофореза и гравито-фотофореза в формировании аэрозольных слоёв в атмосфере Земли на высотах 20, 30, 50, 70 и 85 километров над уровнем моря[79].

3.2 Реализация программного комплекса

Программный комплекс «Атмосферный аэрозоль» реализован на языке программирования Delphi ¹ с применением объектно-ориентированного подхода и

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

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;
- 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 τ . 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 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 последствие 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.

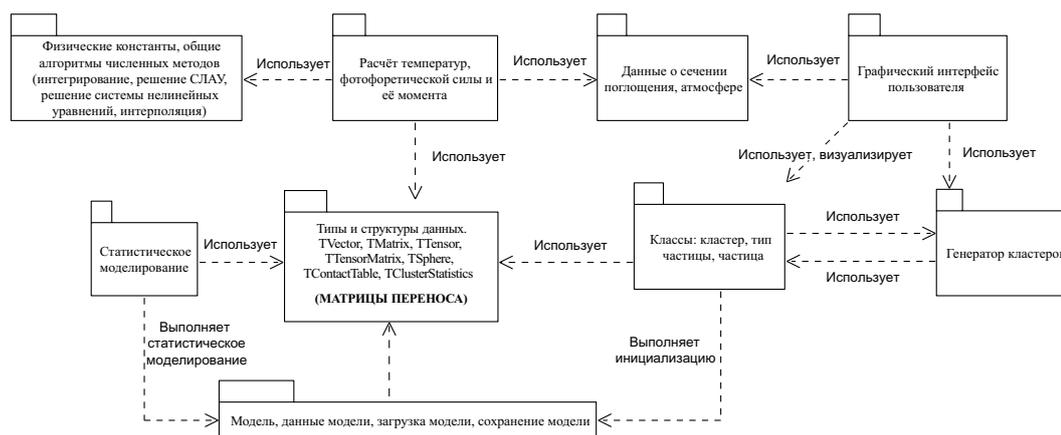


Рисунок 3.1 — Архитектура программного комплекса

3.3 Функциональные особенности программного 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

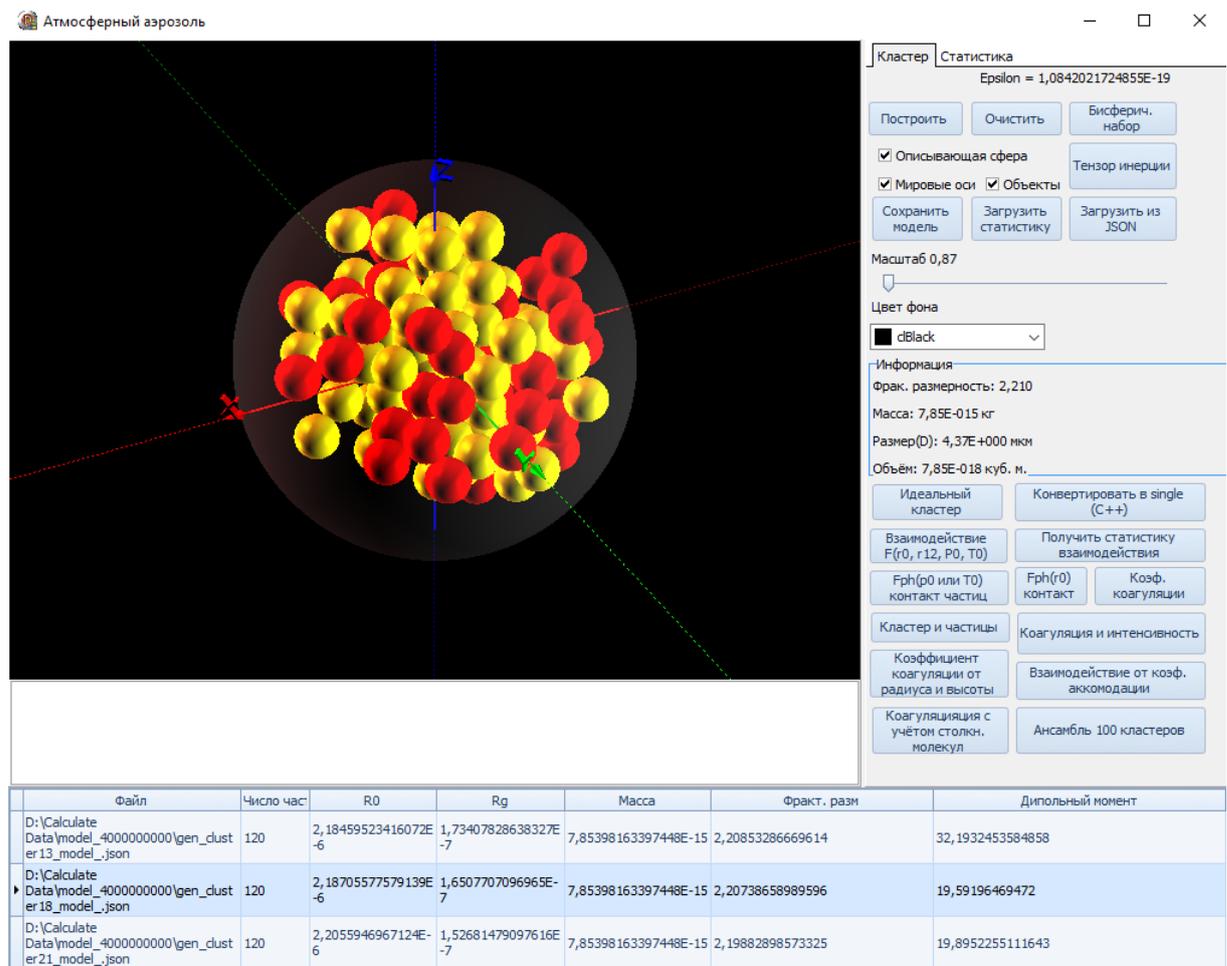


Рисунок 3.2 — Общий вид окна кластер, состоящий из двух типов частиц, обозначенных условно жёлтым и красным цветом. Справа находится панель доступа к функциям приложения «Атмосферный аэрозоль». В чёрной области компонент визуализации.

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. 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,

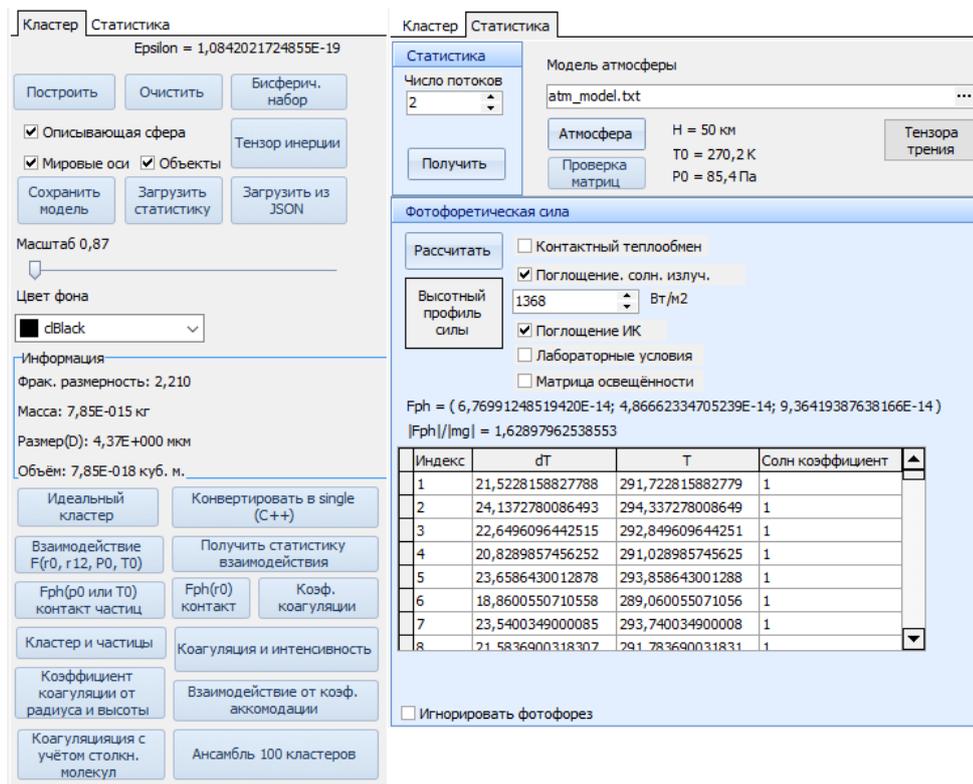


Рисунок 3.3 — Панель инструментов и доступ к функциям кластера.

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.

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 прямо 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

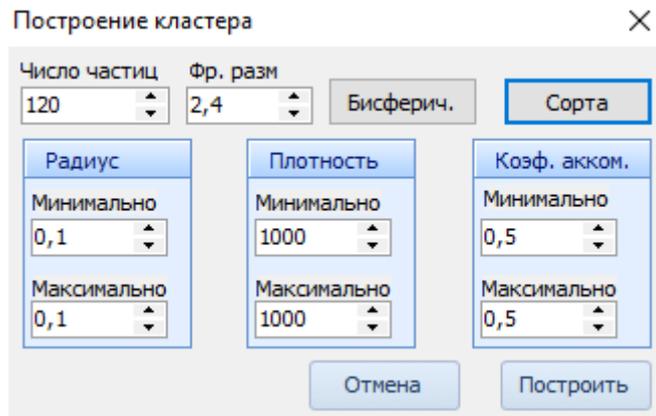


Рисунок 3.4 — Диалог настройки начальных параметров алгоритма построения аэрозольного кластера.

Типы частиц

№	Общее		Радиус [нм]		Кэф. акком.		Плотность [кг./куб.м.]		Показатель преломления					
	Вкл.	Цвет	Макс.	Мин.	Макс.	Мин.	Макс.	Мин.	Макс.	Re	Мин.	Макс.	Im	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 создание сортов/типов частиц. Каждому сорту/типу частиц сопоставляются максимальные и минимальные значения параметров частиц: радиуса, коэффициента аккомодации, плотности, что учитывается при генерации частиц.

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

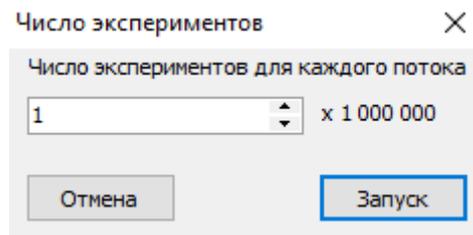


Рисунок 3.6 — Диалоговое окно задания числа экспериментов на поток.

отредактировать, добавить, удалить. При добавлении нового сорта, путём простого нажатия на кнопку «Добавить» в конец таблицы добавляется новый сорт с параметрами по умолчанию и случайно подобранным цветом. 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 случайным 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 количество 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

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"/>

Рисунок 3.7 — Снимок окна отображения прогресса выполнения статистического моделирования.

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 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, и, 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.

3.4 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 попадания с опорной сферы ни в одну из частиц. Соответственно, снижается доля молекулярных траекторий, которые ответственны за появление расталкивающей силы.

Оценка точности осуществлялась, путём проведения многократно 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 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 центрами частиц. Оси имеют логарифмический масштаб, по оси абсцисс отложен корень квадратный от числа испытаний, а по оси ординат значение δ . Можно видеть, что по порядку величины точность расчёта пропорциональна $1/\sqrt{N}$. При геометрической конфигурации, когда частицы максимально сближены друг

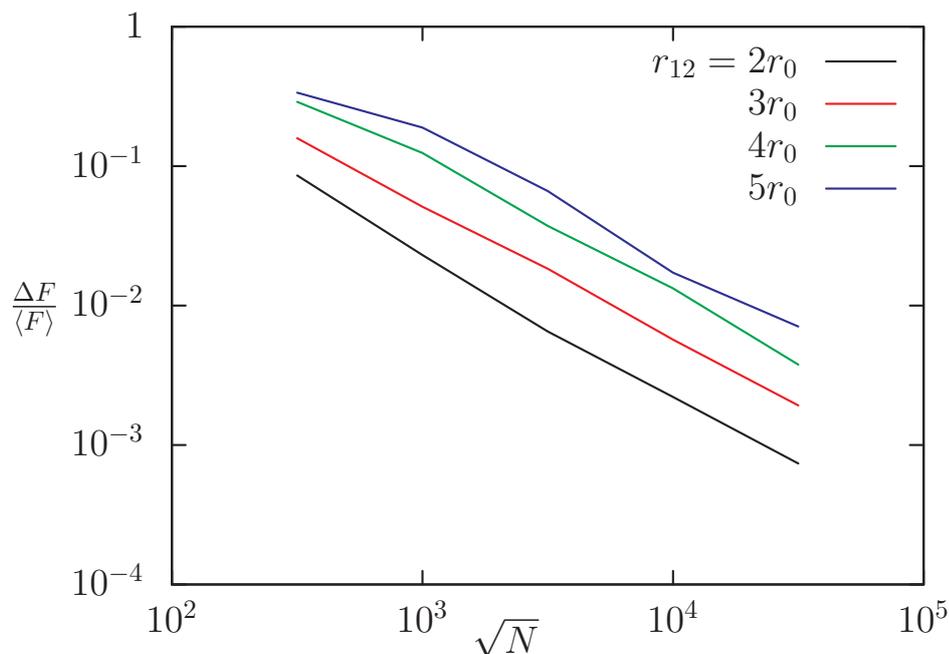


Рисунок 3.8 — Зависимость относительной погрешности вычисления фотофоретической силы от \sqrt{N} , где N - число статистических испытаний.

с другом погрешность в 2% достигается уже при 10^6 испытаний. При увеличении расстояния между центрами частиц, когда оно равно 3 радиуса частиц, 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 составляем 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.

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

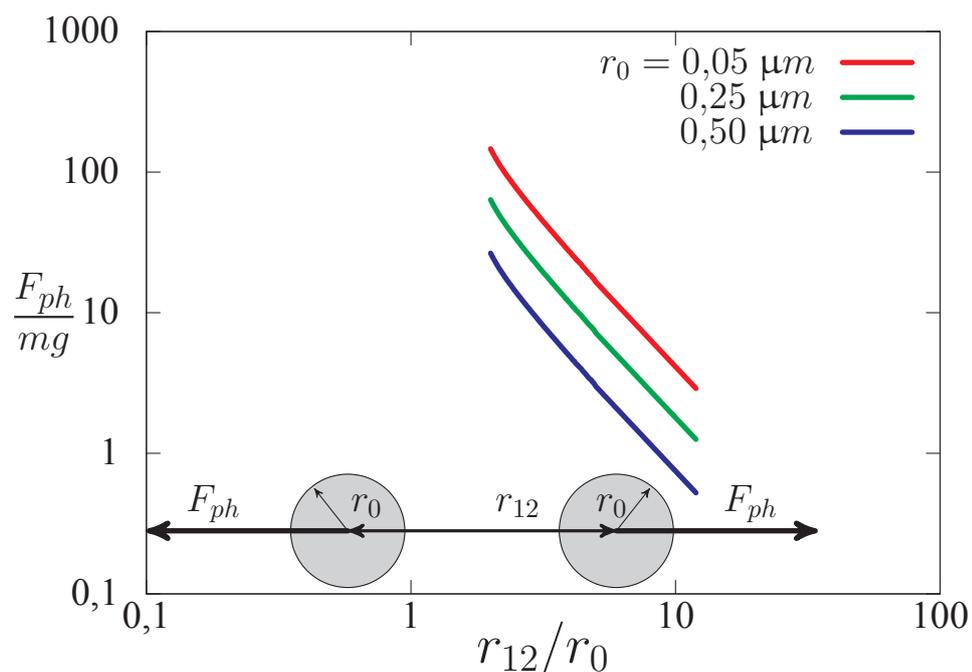


Рисунок 4.1 — Зависимость относительной фотофоретической силы отталкивания одинаковых сферических аэрозольных частиц от расстояния между их центрами.

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 нескольких размеров, 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}^α , где подбирались параметры C и α . В результате, для всей кривой, было получено значение α равное 2,34. Если проводить аппроксимацию для участка, на котором $r > 4r_0$, то есть если исключить из аппроксимации небольшой начальный участок кривой силы, то α составляет уже 2,07. При дальнейшем увеличении исключаемого начального сегмента, α 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.

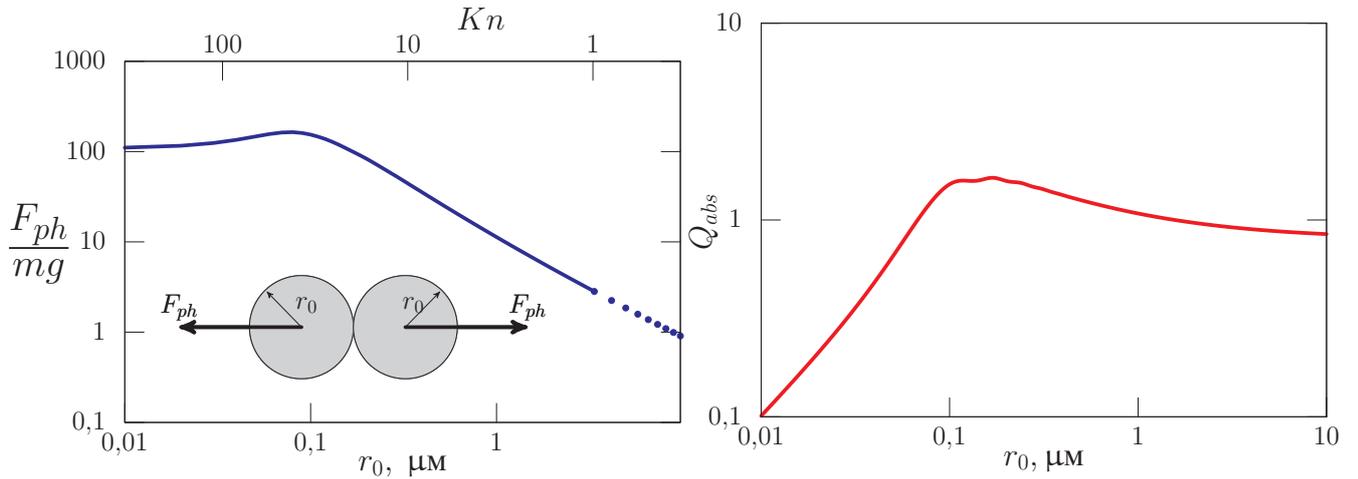


Рисунок 4.2 — Относительная сила фотофоретического отталкивания (слева) и относительное сечение поглощения для $\lambda = 0,5 \mu\text{m}$ (справа) в зависимости от размера одинаковых сферических частиц, хорошо поглощающих видимое излучение и почти соприкасающимися друг с другом. Частицы находятся в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

На кривой относительной силы имеется слабовыраженный максимум при радиусе равном примерно $0,08 \mu\text{m}$. До максимума относительная сила не 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 $0,08 \mu\text{m}$ 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 (2.12)), также растёт пропорционально радиусу частиц. При этом, в соответствии с выражением (2.11), 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 $r_0 > 0,08 \mu\text{m}$ 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

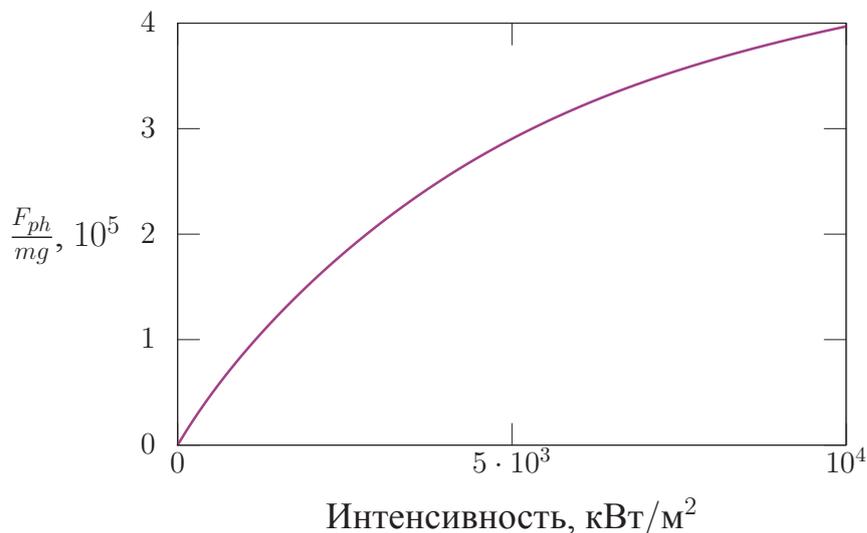


Рисунок 4.3 — Зависимость силы фотофоретического отталкивания от интенсивности падающего излучения видимого диапазона длин волн, $\lambda_{max} = 0,5 \mu\text{м}$. Лабораторные условия, давление газа 1000 Па, частицы одинакового радиуса $0,5 \mu\text{м}$ почти в контакте друг с другом.

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 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

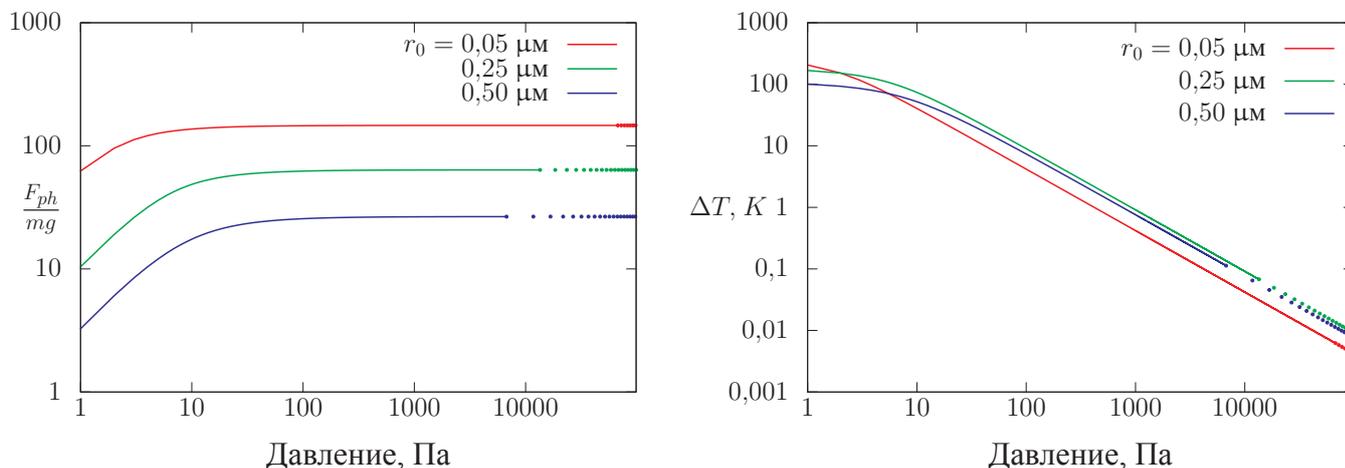


Рисунок 4.4 — Зависимость фотофоретической силы отталкивания (слева) и разности температур между частицами и окружающим газом (справа) в зависимости от давления для двух одинаковых частиц, хорошо поглощающих излучение видимого диапазона и находящихся почти в контакте друг с другом. Лабораторные условия, 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 (2.11), 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 отгружающего 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 схеме 2.6 для давления при котором уже на небольшом расстоянии между центрами частиц не соблюдается 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

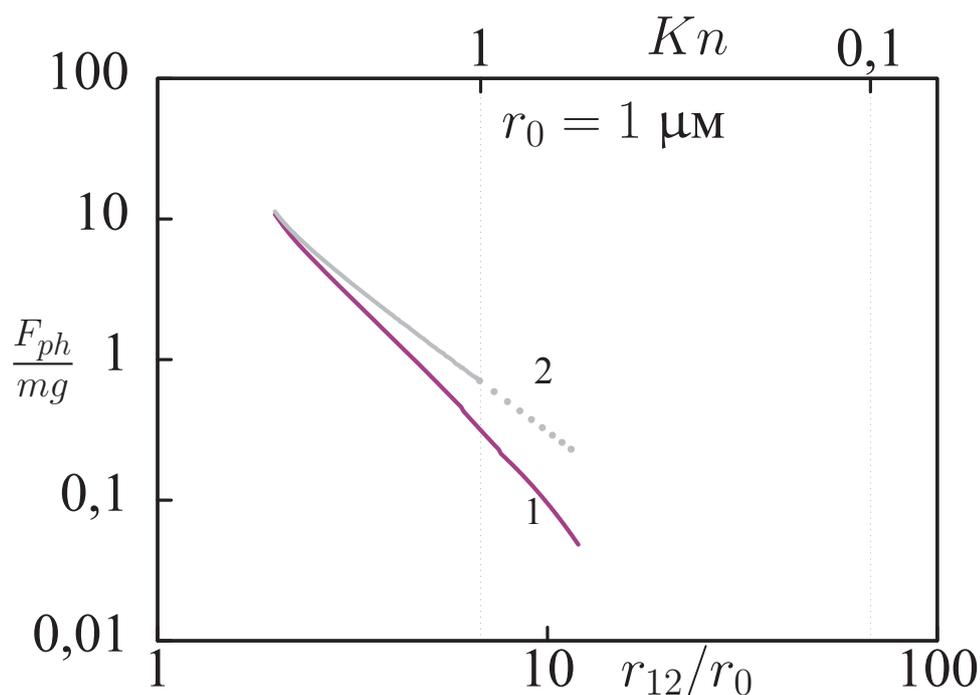


Рисунок 4.5 — Уменьшение фотофоретической силы при учёте молекулярных столкновений. Зависимость фотофоретической силы от расстояния, рассчитанная с учётом (кривая 1) и без учёта (кривая 2) молекулярных столкновений, для двух одинаковых частиц радиусом 1 микрон в лабораторных условиях, при давлении 10000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

фотофоретического взаимодействия за счёт молекулярных столкновений. Как видим, при силы, рассчитанные с учётом и без учёта молекулярных столкновений, отличаются не столь уж и значительно. При относительно больших значениях этого числа, 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 оправданным 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

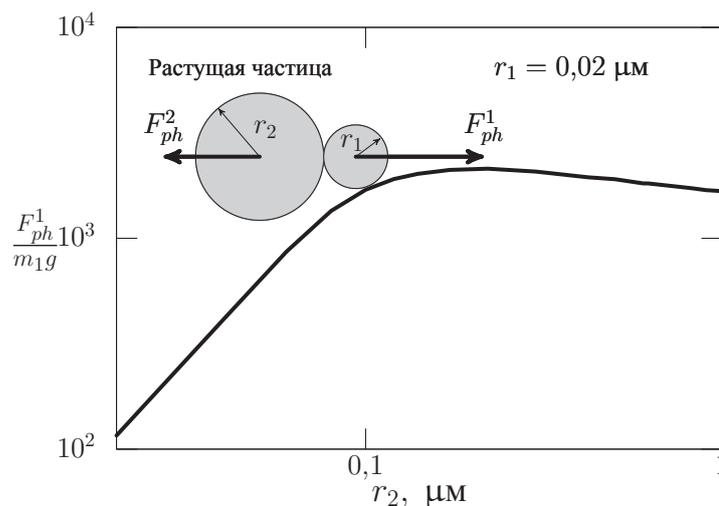


Рисунок 4.6 — Сила фотофоретического отталкивания, действующая на частицу фиксированного размера радиуса $r_1 = 0,02 \mu\text{м}$, в зависимости от радиуса второй частицы r_2 . Лабораторные условия, интенсивность падающего излучения солнечного типа 1368 Вт/м^2 , давление газа 1000 Па , температура $293,15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

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

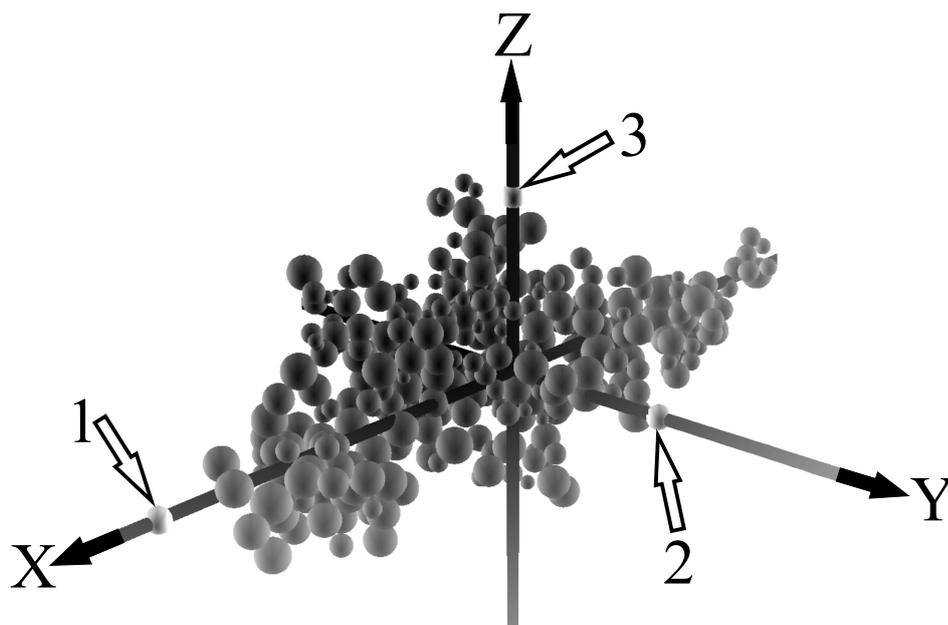


Рисунок 4.7 — Кластер, состоящий из 380 сферических частиц радиусом 10 - 30 нм. Фрактальная размерность 1,8. Цифрами обозначены свободные частицы, взаимодействующие с кластером.

с центром масс кластера, расположены отдельные сферические частицы радиусом 10 нм. 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. Как видим, 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,

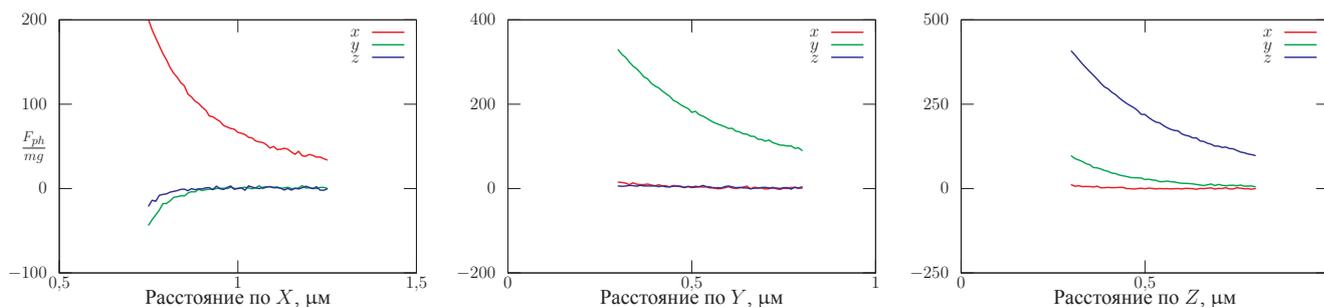


Рисунок 4.8 — Силы фотофоретического отталкивания, действующие на свободные частицы со стороны кластера, изображённого на Рисунке 4.7.

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

силы примерно направлены от центра кластера. Кривые 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, двигающимся вдоль осей Y и Z .

4.2 Фотофоретическое взаимодействие аэрозольных частиц в атмосфере Земли

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 $r_0 = 0,03 \text{ мкм}$ 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 симпатны зависимостям, которые приведены на Рисунке 4.9 для границ этого диапазона. Для заданной пары аэрозольных частиц при солнечном освещении, отличие величины

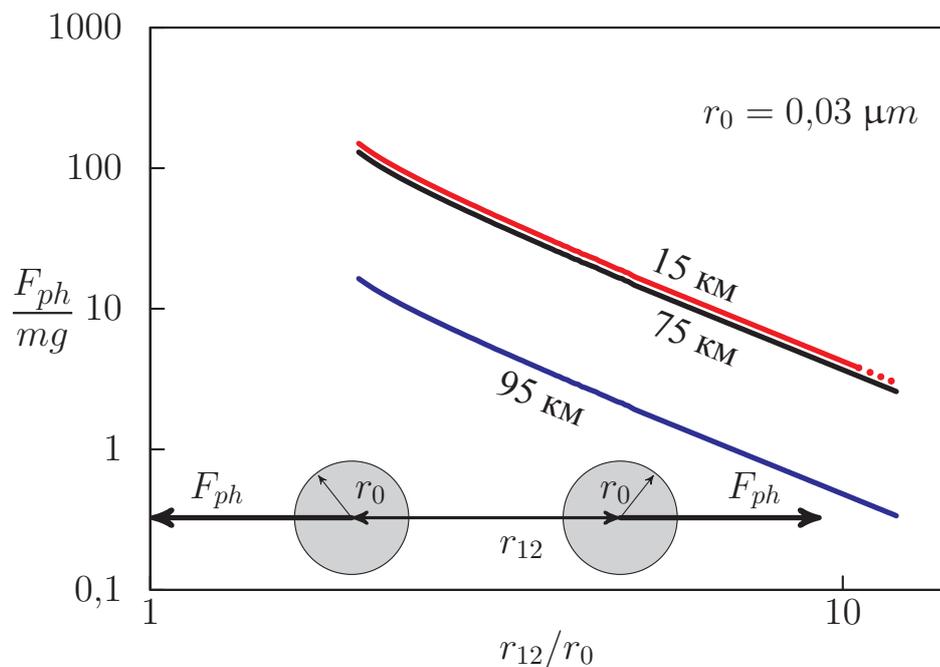


Рисунок 4.9 — Сила фотофоретического отталкивания двух одинаковых сферических аэрозольных частиц, находящихся на различных высотах в атмосфере в дневное время, в зависимости от расстояния между их центрами. Частицы, подобно частицам сажи, хорошо поглощают видимое и ИК излучения.

силы для разных высот из указанного диапазона невелико, 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 км. 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 вы-

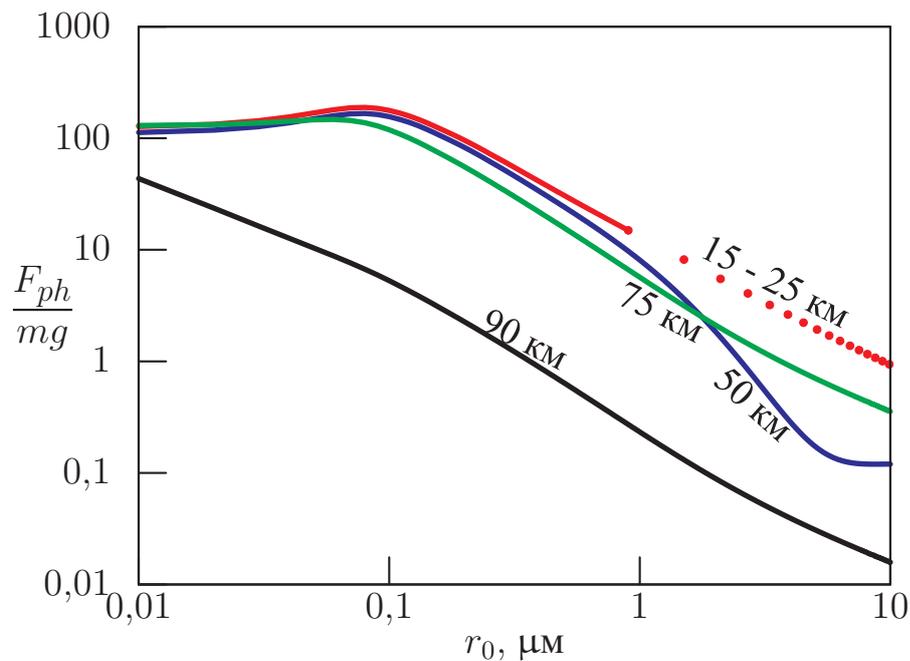


Рисунок 4.10 — Сила фотофоретического взаимодействия двух одинаковых сферических аэрозольных частиц, находящихся на различных высотах в атмосфере в дневное время, в зависимости от размера этих частиц. Частицы находятся почти в контакте друг с другом и, подобно саже, хорошо поглощают видимое и ИК излучение.

сот в атмосфере. Силы рассчитаны для такого взаимного положения частиц, когда они находятся почти в контакте друг с другом и расстояние между их центрами $r_{12} \approx 2r_0$. На этом расстоянии сила фотофоретического взаимодействия имеет максимальное значение. Рисунок получен для дневных условий, 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 км почти совпадают друг с другом и нарисованы с помощью одной линии. Точками обозначен участок этой линии, когда $Kn < 1$ для кривой соответствующей силе на 15 км и использование приближения свободномолекулярного режима приводит к большим погрешностям.

В дневных условиях, для частиц радиусом от 0,01 до 0,3 мкм на высотах 15-75 км 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 мкм, относительная величина силы является приблизительно постоянной величиной. При больших размерах наблюдается падение относительной силы с

ростом размера частиц. На больших высотах, например, на 90 км, 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

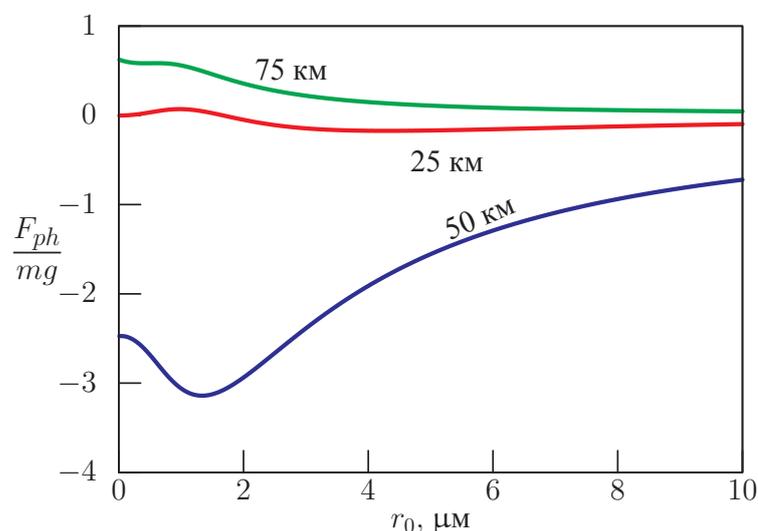


Рисунок 4.11 — Сила фотофоретического взаимодействия двух одинаковых сферических аэрозольных частиц, находящихся на различных высотах в атмосфере в ночное время, в зависимости от размера этих частиц. Частицы находятся почти в контакте друг с другом и, подобно саже, хорошо поглощают видимое и ИК излучение.

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 км. Это происходит потому, что тепловой баланс, определяемый молекулярными потоками тепла, поглощаемой и излучаемой ИК энергией, таков,

что температура частиц становится меньше температуры атмосферного газа [64], и в соответствии с выражением (2.11), фотофоретическая сила меняет знак, т.е. частицы начинают испытывать притяжение друг к другу.

Глава 5. Влияние на коагуляцию

5.1 Исследование влияния освещения на константу коагуляции

Итак, силы фотофоретического взаимодействия, действующие на аэрозольные частицы при их освещении даже обычным солнечным светом, велики по сравнению с силой тяжести и являются дальнодействующими. Осталось ответить на вопрос, достаточно ли они велики, чтобы оказать влияние на коагуляцию аэрозольных частиц? В соответствии с предложенной аппроксимацией в разделе 2.7 были произведены расчёты.

5.1.1 Лабораторные условия

Согласно результатам расчётов, при освещении тонкодисперсных аэрозольных частиц константа коагуляции незначительно меняется за счёт фотофоретического отталкивания (Рисунок 5.1). При увеличении размера частиц величина константы коагуляции в условиях освещения резко падает, на порядки, в сравнении с константой в условиях темноты. При увеличении интенсивности падающего на частицы излучения, эффект усиливается, и константа коагуляции начинает изменяться при все меньших и меньших размерах частиц. Итак, мы видим, что *эффект фотофоретического взаимодействия способен оказать существенное влияние на процесс коагуляции аэрозольных частиц.*

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 размера частиц. На зависимости для высоты 15 км точками обозначен участок кривой, соответствующий выходу за пределы применимости

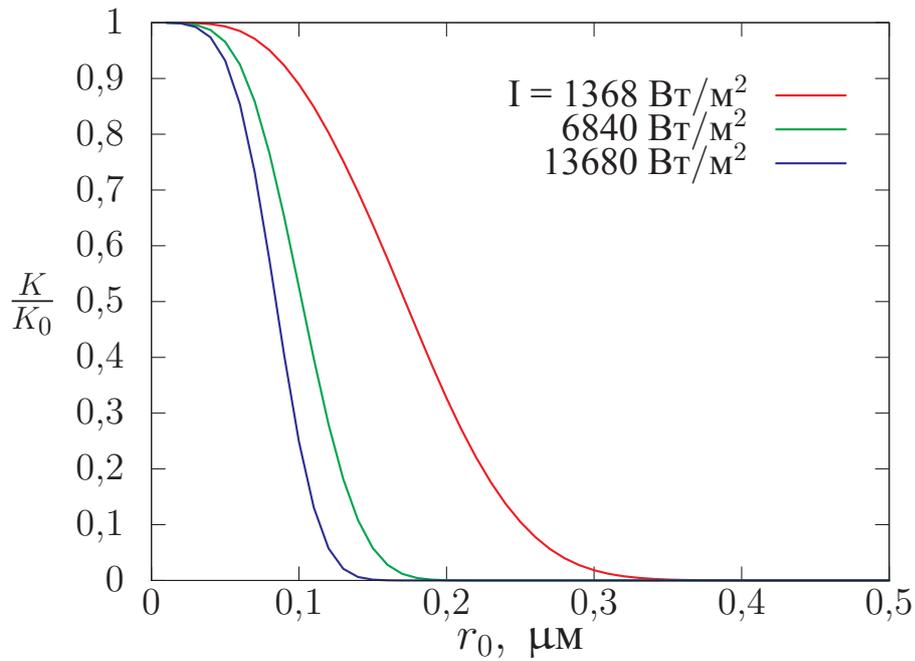


Рисунок 5.1 — Отношение констант коагуляции при освещении, с учётом сил фотофоретического отталкивания, и в условиях темноты в зависимости от размера коагулирующих частиц и интенсивности падающего излучения видимого диапазона, $\lambda_{max} = 0,5 \mu\text{м}$. Лабораторные условия, давление атмосферы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

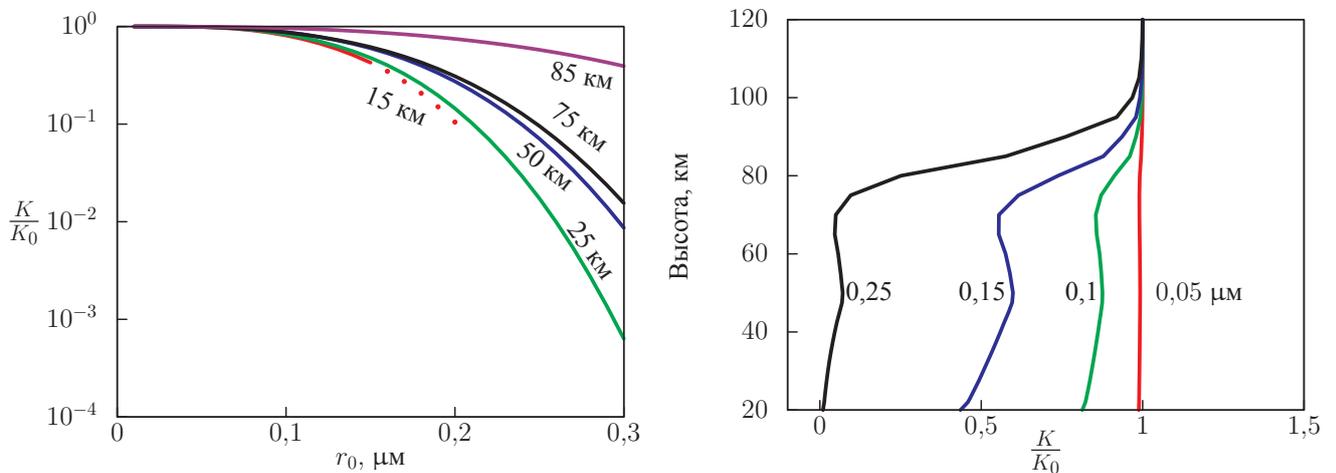


Рисунок 5.2 — Отношение констант коагуляции в дневное время, с учетом сил фотофоретического отталкивания, и без в зависимости от размера частиц (слева) и высоты в атмосфере (справа). Частицы хорошо поглощают видимое и ИК излучение.

свободномолекулярного режима. Согласно результатам расчётов, при освещении тонкодисперсных аэрозольных частиц константа коагуляции незначительно меняется за счёт фотофоретического отталкивания (Рисунок 5.2 справа). При увеличении размера частиц величина константы коагуляции в условиях освещения

резко падает, на порядки в сравнении с константой в условиях темноты. Итак, мы видим, что эффект фотофоретического взаимодействия способен оказать существенное влияние на процесс коагуляции аэрозольных частиц в атмосфере в дневное время.

Заключение

Основные результаты работы заключаются в следующем.

1. Разработана вероятностная модель, описывающая фотофоретическое взаимодействие в разреженной газовой среде между поглощающими изучение 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 аналитическое решение задачи о влиянии фотофоретического взаимодействия сферических аэрозольных частиц на их коагуляцию.
6. Реализован комплекс проблемно-ориентированных программ для проведения вычислительного эксперимента 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 заключение автор выражает благодарность и большую признательность научному руководителю Черемисину А. А. за поддержку, помощь, обсуждение результатов и научное руководство. Также автор благодарит Васильева Ю. В. за оказанную помощь в проверке реализации ключевых алгоритмов и в работе по сравнению

модельных численных расчётов в разных комплексах. Авторам шаблона *Russian-Phd-Latex-Dissertation-Template* за помощь в оформлении диссертации.

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. — Т. 17. — С. 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.* Механика аэрозолей / Н. Фукс. — Издательство академии наук СССР, 1955. — С. 370.
6. *Медников, Е.* Акустическая коагуляция и осаждение аэрозолей / Е. Медников. — Издательство Академии наук СССР, 1963. — С. 262. — URL: http://books.google.ru/books?id=%5C_f1MAQAIAAJ.
7. *Mednikov, E.* Theory of the acoustic coagulation of aerosols / E. 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.* Coagulation in turbulent flow: Theory and experiment / M. Delichatsios, R. Probstein // *Journal of Colloid and Interface Science.* — 1975. — Vol. 51, no. 3. — P. 394—405.
10. *Ивлев, Л.* Физика атмосферных аэрозольных систем / Л. Ивлев, Ю. Довгалоук. — СПб.: НИИХ СПбГУ, 1999. — С. 194.
11. *Баканов, С.* Термофорез в газах / С. Баканов, Б. Дерягин, Б. 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. — URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0021979710006193>.
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. Correction for the Brownian coagulation coefficient due to Van der Waals forces between non-equal sized particles / V.-M. Kerminen [et al.] // *Journal of Aerosol Science*. — 1991. — Vol. 22, Supplement 1. — S105—S107.
16. *Friedlander, S.* Smoke, Dust, and Haze: Fundamentals of Aerosol Dynamics / S. Friedlander. — New York : Oxford University Press, 2000. — P. 431. — (Topics in Chemical Engineering Series).
17. Coagulation of bipolarly charged ultrafine aerosol particles / S. Park [et al.] // *Journal of Aerosol Science*. — 2005. — Vol. 36, no. 7. — P. 830—845.
18. *Reed, L.* Particle interactions in low knudsen number thermophoresis / L. Reed, F. M. Jr. // *Journal of Aerosol Science*. — 1975. — Vol. 6, no. 5. — P. 349—365. — URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0021850275900233>.
19. *Chen, S.* Thermophoretic interactions of aerosol particles with constant temperatures / S. Chen // *Journal of Aerosol Science*. — 2002. — Vol. 33, no. 8. — P. 1155—1180.
20. *Rosen, M.* The photophoretic force / M. Rosen, C. O. Jr. // *Journal of Colloid Science*. — 1964. — Vol. 19, no. 1. — P. 50—60. — URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0095852264900066>.
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. — URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0021979776901855>.

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.* Transfer matrices and solution of the heat-mass transfer problem for aerosol clusters in a rarefied gas medium by the Monte Carlo method / A. Cheremisin // *Russian Journal of Numerical Analysis and Mathematical Modelling*. — 2010. — Vol. 25, issue 3. — P. 209—233.
24. *Фридрихсберг, Д.* Курс коллоидной химии / Д. Фридрихсберг. — М. «Химия», 1984. — С. 367. — URL: <https://books.google.ru/books?id=u7DguAAACAАJ>.
25. Relation between the intensity of tyndall beam and concentration of suspensions and smokes / R. C. Tolman [et al.] // *Journal of the American Chemical Society*. — 1919. — Vol. 41, no. 3. — P. 300—303. — eprint: <http://dx.doi.org/10.1021/ja01460a002>.
26. The disappearance of smoke in a confined space / R. C. Tolman [et al.] // *Journal of the American Chemical Society*. — 1919. — Vol. 41, no. 3. — P. 304—312. — eprint: <http://dx.doi.org/10.1021/ja01460a003>.
27. *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. — eprint: <http://dx.doi.org/10.1021/ja01460a001>.
28. *Whytlaw-Gray, R.* Smoke: a study of aerial disperse systems / R. Whytlaw-Gray, H. Patterson. — E. Arnold, 1932. — P. 192. — URL: <https://books.google.ru/books?id=wxMhAAAAMAАJ>.
29. *Лушников, А.* Коагуляция в присутствии внешних источников / А. Лушников, В. Пискунов // *Доклады Академии Наук СССР*. — 1976. — Т. 231, № 6. — С. 1403—1406.
30. *Сутугин, А.* О моделировании коагуляции высокодисперсных аэрозолей / А. Сутугин, А. Лушников // *Теоретические основы химической технологии*. — 1975. — № 2. — С. 210—218.
31. *Fuchs, N.* The Mechanics of Aerosols / N. Fuchs. — Pergamon Press, 1964.
32. *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. — URL: <http://books.google.ru/books?id=5Mv-AgAAQBAJ>.

33. *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.
34. *Polovnikov, P.* Advancement of the kinetic approach to Brownian coagulation on the base of the Langevin theory / P. Polovnikov, I. Azarov, M. Veshchunov // *Journal of Aerosol Science*. — 2016. — Vol. 96. — P. 14—23.
35. *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.
36. *Wei, J.* A Monte Carlo method for coagulation of charged particles / J. Wei // *Journal of Aerosol Science*. — 2013. — Vol. 65. — P. 21—25.
37. *Wei, J.* A GPU-based parallelized Monte-Carlo method for particle coagulation using an acceptance–rejection strategy / J. Wei, F. E. Kruis // *Chemical Engineering Science*. — 2013. — Vol. 104. — P. 451—459.
38. *Wei, J.* GPU-accelerated Monte Carlo simulation of particle coagulation based on the inverse method / J. Wei, F. Kruis // *Journal of Computational Physics*. — 2013. — Vol. 249. — P. 67—79.
39. *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.
40. *Fuchs, N.* Über die Stabilität und Aufladung der Aerosole / N. Fuchs // *Zeitschrift für Physik*. — 1934. — T. 89, № 11/12. — C. 736—743.
41. *Simons, S.* A kernel for combined Brownian and gravitational coagulation / S. Simons, M. Williams, J. Cassell // *Journal of Aerosol Science*. — 1986. — Vol. 17, no. 5. — P. 789—793.
42. *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.
43. *Williams, M.* *Aerosol Science: Theory and Practice : with Special Applications to the Nuclear Industry* / M. Williams, S. Loyalka. — Pergamon Press, 1991. — P. 446.

44. *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.
45. *Keh, H. J.* Particle interactions in thermophoresis / H. J. Keh, S. H. Chen // *Chemical Engineering Science*. — 1995. — Vol. 50, no. 21. — P. 3395—3407. — URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0009250995001814>.
46. *Yalamov, Y.* Theory of the photophoretic motion of the large-size volatile aerosol particle / Y. Yalamov, V. Kutukov, E. Shchukin // *Journal of Colloid and Interface Science*. — 1976. — Vol. 57, no. 3. — P. 564—571. — URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0021979776902344>.
47. *Colbeck, I.* Thermophoretic and photophoretic motion of aerosols / I. Colbeck, E. Hardman // *Powder Technology*. — 1991. — Vol. 65, issue 1—3. — P. 447—451. — URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/003259109180206X> ; A Special Volume Devoted to the Second Symposium on Advances in Particulate Technology.
48. *Thoré, M.* Le radiomètre d'absorption / M. Thoré // *Les Mondes*. — 1877. — T. 42. — C. 585—586.
49. *Ehrenhaft, F.* On the physics of millionths of centimeters / F. Ehrenhaft // *Zeitschrift für Physik*. — 1917. — T. 18. — C. 352—368.
50. *Brock, J.* On radiometer forces / J. Brock // *Journal of Colloid and Interface Science*. — 1967. — Vol. 25, no. 4. — P. 564—567.
51. *Баканов, С.* Термофорез в газах при малых числах Кнудсена / С. Баканов // *Успехи физических наук*. — 1992. — Т. 162, № 9. — С. 133—152.
52. *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. — URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/002185029500011Z>.
53. *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. — URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1352231007006115>.

54. *Rohatschek, H.* Direction, magnitude and causes of photophoretic forces / H. Rohatschek // *Journal of Aerosol Science*. — 1985. — Vol. 16, no. 1. — P. 29—42. — URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0021850285900187>.
55. Morphology and mixing state of individual freshly emitted wildfire carbonaceous particles / S. China [et al.] // *Nature Communications*. — 2013. — July. — Vol. 4. — URL: <http://dx.doi.org/10.1038/ncomms3122>.
56. Formation of charged soot aggregates by combustion and pyrolysis: charge distribution and photophoresis / V. Karasev [et al.] // *Journal of Aerosol Science*. — 2004. — Vol. 35, no. 3. — P. 363—381. — URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0021850203004385>.
57. *Bohren, C.* Absorption and scattering of light by small particles / C. Bohren, D. Huffman. — New York : Wiley, 1998. — P. 544.
58. *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. — URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0021979785902851>.
59. *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.
60. *Keh, H. J.* Thermophoresis and photophoresis of cylindrical particles / H. J. Keh, H. J. Tu // *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*. — 2001. — Vol. 176, no. 2/3. — P. 213—223. — URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0927775700005677>.
61. *Hidy, G.* Photophoresis and the descent of particles into the lower stratosphere / G. Hidy, J. Brock // *Journal of Geophysical Research*. — 1967. — Vol. 72, no. 2. — P. 455—460. — URL: <http://dx.doi.org/10.1029/JZ072i002p00455>.
62. Photophoresis of micrometer-sized particles in the free-molecular regime / S. Tehrani [et al.] // *International Journal of Heat and Mass Transfer*. — 2001. — Vol. 44, no. 9. — P. 1649—1657. — URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0017931000002301>.

63. *Cheremisin, A.* Photophoretic forces for bispherical aerosol particles / A. Cheremisin, Y. Vassilyev, A. Kushnarenko // Proc. SPIE 5027, Ninth Joint International Symposium on Atmospheric and Ocean Optics/Atmospheric Physics. Part II. Vol. 5027. — 2003. — P. 21—32. — URL: <http://dx.doi.org/10.1117/12.497278>.
64. *Cheremisin, A.* Gravito-photophoresis and aerosol stratification in the atmosphere / A. Cheremisin, Y. Vassilyev, H. Horvath // Journal of Aerosol Science. — 2005. — Vol. 36, no. 11. — P. 1277—1299. — URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0021850205000339>.
65. *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. — С. 231—256. — eprint: <http://rstl.royalsocietypublishing.org/content/170/231.full.pdf+html>. — URL: <http://rstl.royalsocietypublishing.org/content/170/231.short>.
66. *Соболь, И.* Численные методы Монте-Карло / И. Соболь. — Наука, 1973. — С. 312.
67. *Михайлов, Г.* Оптимизация весовых методов Монте-Карло / Г. Михайлов. — Наука, 1987. — С. 238.
68. *Rohatschek, H.* Levitation of stratospheric and mesospheric aerosols by gravito-photophoresis / H. Rohatschek // Journal of Aerosol Science. — 1996. — Vol. 27, no. 3. — P. 467—475. — URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0021850295005560>.
69. Determination of the morphology of soot aggregates using the relative optical density method for the analysis of TEM images / K. Tian [et al.] // Combustion and Flame. — 2006. — Vol. 144, no. 4. — P. 782—791.
70. *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.
71. *Смирнов, Б.* Фрактальные кластеры / Б. Смирнов // Успехи физических наук. — 1986. — Т. 149, № 6. — С. 177—219.
72. *Смирнов, Б.* Свойства фрактального агрегата / Б. Смирнов // Успехи физических наук. — 1989. — Т. 157, № 2. — С. 357—360.
73. *Федер, Е.* Фракталы / Е. Федер. — М. «Мир», 1991. — С. 254.

74. On methods determining the fractal dimension of combustion aerosols and particle clusters / D. Lottin [et al.] // *Journal of Aerosol Science*. — 2013. — Vol. 58. — P. 41—49. — URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0021850213000050>.
75. *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}*.
76. *Михайлов, Б.* Образование фрактальных структур в газовой фазе / Б. Михайлов, С. Власенко // *Успехи физических наук*. — 1995. — Т. 165, № 3. — С. 263—283.
77. *Ролдугин, В.* Свойства фрактальных дисперсных систем / В. Ролдугин // *Успехи химии*. — 2003. — Т. 72, № 11. — С. 1027—1054.
78. *Cheremisin, A.* Numerical calculation gravito-photophoretic movement for aerosol aggregates / A. Cheremisin, Y. Vassilyev // Vol. 148. — A. Deepak Publishing, 2006. — P. 131—135.
79. The global picture of aerosol layers formation in the stratosphere and in the mesosphere under the influence of gravito-photophoretic and magneto-photophoretic forces / A. Cheremisin [et al.] // *Journal of Geophysical Research Atmospheres*. — 2011. — Vol. 116, D19204, 15PP, doi:10.1029/2011JD015958.