

Фотофоретическое взаимодействие аэрозольных частиц и его влияние на коагуляцию в атмосфере

А.А. Черемисин^{1,2}, А.В. Кушнаренко^{1*}

¹Сибирский федеральный университет
660041, г. Красноярск, просп. Свободный, 82

²Красноярский институт железнодорожного транспорта
660028, г. Красноярск, ул. Ладо Кецховели, 89

Поступила в редакцию 10.12.2013 г.

Проведено исследование сил фотофоретического взаимодействия между сферическими аэрозольными частицами в зависимости от высоты их положения в атмосфере и размера частиц в дневное и ночное время. Установлено, что в дневное время в атмосфере фотофоретическое взаимодействие способно оказать сильное влияние на коагуляцию хорошо поглощающих излучение субмикронных частиц.

Ключевые слова: фотофоретическое взаимодействие, аэрозольные частицы, коагуляция, излучение; photophoretic interaction, aerosol particles, coagulation, radiation.

Коагуляция частиц является одним из наиболее важных процессов, происходящих в аэрозольных системах [1–4]. В частности, этот процесс существенно влияет на состояние атмосферного аэрозоля и на физико-химические реакции, протекающие в атмосфере при антропогенном воздействии. В связи с развитием средств вычислений имеется много работ, в которых представлены результаты моделирования процессов коагуляции [5–7].

Основные представления, заложенные в современные модели коагуляции, известны довольно давно [4, 8]. Это броуновское движение частиц и межчастичное взаимодействие [9], которое обусловлено действием сил Ван-дер-Ваальса [10, 11], а также кулоновскими электростатическими силами, если коагулирующие частицы заряжены [12]. Макроскопические особенности движения среды также влияют на коагуляцию. Это характерно, например, для коагуляции в турбулентных потоках [13] или акустической коагуляции [14]. Кроме того, в настоящее время появились работы, в которых рассматривается взаимодействие частиц при термофорезе [15]. Термофорез — это направленное движение аэрозольных частиц, возникающее при наличии градиентов температурных полей в газовой среде [16]. Этот эффект относится к классу газокинетических явлений.

Согласно расчетам [17] взаимодействие частиц, вовлеченных в термофоретическое движение, в среднем достаточно слабое и падает с увеличением расстояния между частицами как $1/r_{12}^3$, где r_{12} — расстояние между центрами частиц. Более существенное

взаимодействие возникает при седиментации частиц за счет распространения вязких возмущений в среде. Величина этого взаимодействия 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 [18, 19], с помощью которых учитывают проскальзывание газовых молекул в кнудсеновском слое при малых значениях числа Кнудсена.

В настоящей статье рассмотрено взаимодействие частиц, которое можно представить как проявление другого газокинетического явления — фотофореза. Расчеты основаны на использовании приближения свободномолекулярного газокинетического режима и разработанных ранее алгоритмов Монте-Карло [20], которые в данном случае подверглись незначительной модификации.

Фотофоретические силы, рассматриваемые в широком смысле этого термина, вызывают движение частиц, поглощающих излучение, когда их температура отличается от температуры окружающего газа [21–23]. При наличии внешних силовых полей возникают такие явления, как, например, гравитофотофорез или магнитофотофорез. В наших предыдущих работах мы изучали влияние гравитофотофореза [24–26] и магнитофотофореза [27] на аэрозольную стратификацию в средней атмосфере. Разработанные алгоритмы применимы для расчета фотофоретических сил, действующих не только на отдельные аэрозольные частицы или кластеры, но и на аэрозольные системы более общего вида, в которых процессы тепло-массопереноса необходимо анализировать с учетом взаимного влияния всех частиц.

Ранее мы рассмотрели систему из двух сферических аэрозольных частиц одинакового размера,

* Александр Алексеевич Черемисин (aacheremisin@gmail.com); Андрей Викторович Кушнаренко (avkushnarenko@gmail.com).

находящихся на некотором расстоянии друг от друга в стратосфере Земли на высоте 17 км, которые подобно частицам сажи могут хорошо поглощать излучение видимого и инфракрасного диапазонов длин волн [28]. Было обнаружено, что при солнечном освещении между частицами тонкодисперсного размера возникают весьма значительные силы отталкивания, которые в десятки и сотни раз превышают силу тяжести, и эти силы падают примерно обратно пропорционально квадрату расстояния между частицами. Мы назвали эти силы силами фотофоретического взаимодействия. Далее мы провели детальное исследование сил фотофоретического взаимодействия для частиц, находящихся в основном в лабораторных условиях, помещенных в разреженную газовую среду вакуумных камер [29]. Других работ, посвященных эффекту фотофоретического взаимодействия, мы не нашли.

В настоящей статье представлены результаты исследования сил фотофоретического взаимодействия между сферическими аэрозольными частицами на различных высотах в атмосфере Земли в дневное и ночное время, в зависимости от их размера и расстояния между ними. Даны оценки влияния молекулярных столкновений на величину фотофоретических сил и влияния фотофоретических взаимодействий на константу коагуляции аэрозольных частиц для различных высот в атмосфере.

Фотофоретическое взаимодействие аэрозольных частиц

Фотофоретическая сила возникает при нарушении равномерности аккомодации импульса и энергии молекул газа, соударяющихся с поверхностью частицы. В результате поглощения аэрозольной частицей видимого солнечного излучения и теплового излучения Земли поверхность частицы неравномерно разогревается. Молекулы газа после соударения с частицей покидают ее поверхность с большей скоростью там, где она разогрета сильнее, что приводит к нарушению баланса импульса, передаваемого частице молекулами газа. Возникающую при этом фотофоретическую силу относят к ΔT -типу, и она является классической при рассмотрении явления фотофореза. Для оценки взаимодействия молекул газа с поверхностью аэрозольной частицы обычно используют коэффициент аккомодации α . В настоящей статье этот коэффициент интерпретируется в соответствии с зеркально-диффузионной схемой отражения, 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 скорости. Нарушение равномерности распределения коэффициента аккомодации по поверхности частицы также приводит к возникновению фотофоретической силы. Эту силу относят к $\Delta\alpha$ -типу [30, 31]. Силы этого типа достаточно велики в атмосферных усло-

виях и могут влиять на стратификацию аэрозоля в средней атмосфере [24–27], тогда как для сферических аэрозольных частиц в атмосфере с типичной плотностью 1000 кг/м^3 фотофоретические силы ΔT -типа меньше силы тяжести [32].

Пусть в атмосфере находится частица, достаточно хорошо поглощающая солнечное излучение, коэффициент аккомодации одинаков во всех точках поверхности частицы и ее поверхность разогрета равномерно. В этом случае никакой фотофоретической силы, действующей на эту одиночную частицу, не возникает. Теперь предположим, что неподалеку 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. В это же время на части поверхностей частиц, обращенных 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, то молекулы после столкновения с такими поверхностями в среднем имеют большую энергию и импульс, чем молекулы окружающего газа. 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. Это и есть сила фотофоретического взаимодействия.

Общей чертой, объединяющей 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.

Расчет силы фотофоретического взаимодействия

Рассмотрим аэрозольную систему, состоящую из двух одинаковых сферических аэрозольных частиц радиуса r_0 , находящуюся в неподвижной газовой среде атмосферы Земли на некоторой высоте от земной поверхности при температуре T_0 и давлении p . Масса молекул среды равна средней молекулярной массе воздуха, а значения температуры и давления

для заданной высоты соответствуют зональной модели США для тропиков (US Standard Atmosphere, 1976) [33].

В дневное время аэрозольные частицы поглощают энергию солнечного света и ИК-излучение Земли. При этом они начинают испытывать действие силы, которую мы назвали силой фотофоретического взаимодействия.

Для расчета силы фотофоретического взаимодействия, возникающей между аэрозольными частицами, применялась техника расчетов, в основе которой лежат газокинетическое уравнение Больцмана, решаемое в приближении свободномолекулярного режима, разложение рядов Неймана по разделяющимся переменным: скоростям и пространственным координатам молекул, специальные матрицы переноса и метод Монте-Карло [20]. Для аэрозольного кластера разработанный алгоритм позволяет рассчитать молекулярный теплоперенос, фотофоретическую силу и ее момент, действующие на кластер, четыре тензора, описывающие вязкие силы и их моменты, а также взаимозависимость вращательного и поступательного движения кластера в линейном по поступательной и вращательной скоростям приближении. Для систем, состоящих из несвязанных между собой нескольких частиц или кластеров, алгоритм также позволяет рассчитать фотофоретические силы, действующие на эти индивидуальные части системы.

Вокруг аэрозольной системы строится опорная сфера радиусом R_0 , которая охватывает все аэрозольные частицы системы и рассматривается как виртуальная поверхность, через которую в систему поступают молекулы невозмущенной газовой среды. Частицы нумеруются индексом $i = 1, \dots, n$, где n – полное число частиц в системе. Газовой среде и, соответственно, опорной сфере присваивается значение индекса, равное нулю. Температура поверхности частицы с индексом i считается постоянной во всех точках ее поверхности и равной T_i .

Расчет фотофоретической силы производится по формуле [20]:

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

Здесь $P_{1,k,\alpha}^F$ – матрица, определяющая молекулярный перенос импульса в системе. Первый индекс матрицы соответствует номеру частицы, второй – номеру температуры в системе. Для определенности сила рассчитывается для частицы с номером, равным единице. Элементы этой матрицы не зависят от давления и температуры газа. Множитель R_0^2 появился из-за того, что статистические расчеты выполняются для системы, геометрически подобной исходной, масштабированной таким образом, чтобы радиус опорной сферы стал равным единице.

Элементы матрицы оцениваются в результате статистического моделирования. По сути, моделируется следующий процесс. Молекулы невозмущенного газа, имеющие максвелловское распределение по скоростям, соответствующее температуре T_0 , попадая

внутрь опорной поверхности и испытав цепь столкновений с поверхностями частиц аэрозольной системы, в конечном итоге пересекают поверхность опорной сферы и покидают пределы системы. Каждая из точек поверхностей характеризуется значением коэффициента аккомодации α . В расчетах использован коэффициент аккомодации $\alpha = 0,5$, одинаковый для поверхностей всех частиц.

Температура поверхностей частиц определяется решением системы уравнений теплового баланса. Была использована упрощенная модель теплового баланса, которая ранее рассматривалась применительно к аэрозольным кластерам [34]. Положено, что температура поверхности каждой из отдельных составляющих систему аэрозольных частиц приближенно постоянна, каждая из этих частиц поглощает и излучает энергию независимо друг от друга и, кроме того, в системе достигнуто стационарное состояние по тепловым потокам.

В этом приближении количество тепла, поступающего в i -ю частицу аэрозольной системы:

$$\frac{dQ_i}{dt} = \sum_{k=0}^n \lambda_{ik} (T_k - T_i) + \Phi_{abs,i}^V + \Phi_{abs,i}^{IR} - \Phi_{em,i}^{IR} = 0, \quad i = 1, \dots, n, \quad (2)$$

где первый член описывает молекулярный перенос; $\Phi_{abs,i}^{IR}$ и $\Phi_{abs,i}^V$ – потоки радиации ИК- и видимого диапазонов длин волн, поглощаемые частицей; $\Phi_{em,i}^{IR}$ – поток излучаемой энергии. Для сферических частиц, входящих в состав аэрозольной системы:

$$\Phi_{abs}^{IR} = 2\pi r^2 \sigma T_B^4 \varepsilon_{abs}^{IR},$$

$$\Phi_{abs}^V = \pi r^2 I \varepsilon_{abs}^V,$$

$$\Phi_{em,i}^{IR} = 4\pi r^2 \sigma T_S^4 \varepsilon_{em,i}^{IR}.$$

Здесь r – радиус частицы; $I = 1368 \text{ Вт/м}^2$ – солнечная постоянная; σ – постоянная Стефана–Больцмана; T_S – температура поверхности частицы. Тепловая энергия, излучаемая Землей и поглощаемая частицей, представлена излучением абсолютно черной поверхности с температурой $T_B = 255 \text{ К}$. Спектральное распределение солнечного излучения соответствовало тепловому излучению при температуре 6000 К. Радиационные коэффициенты для частиц ε_{abs}^V , ε_{abs}^{IR} , $\varepsilon_{em,i}^{IR}$:

$$\varepsilon = \int J(\lambda) u_\lambda d\lambda / \int u_\lambda d\lambda,$$

где u_λ – планковское спектральное распределение при соответствующей температуре; λ – длина волны; фактор эффективности поглощения

$$J(\lambda) = A(\lambda) / \pi r^2,$$

$A(\lambda)$ – сечение поглощения для частицы, которое рассчитывалось по теории Ми [35]. Оптические свойства частиц определяет комплексный показатель преломления, равный $1,95 - i \cdot 0,66$ для всех длин волн.

Такой показатель преломления соответствует сильно поглощающим излучение материалам, и частицы по оптическим свойствам можно отнести к классу сажеподобных [36]. Плотность частиц полагалась равной 1000 кг/м^3 .

Интенсивность излучения частиц нелинейным образом зависит от температур поверхностей, вследствие чего задача определения неизвестных температур системы является нелинейной. Коэффициенты молекулярного теплопереноса λ_{ik} (2) оцениваются в результате статистического моделирования и, что важно, при неизвестных температурах системы.

Взаимодействие двух сферических частиц в атмосфере

Величина силы фотофоретического взаимодействия для двух одинаковых сферических аэрозольных частиц радиусом $r_0 = 0,03 \text{ мкм}$ в атмосфере в дневное время представлена на рис. 1 в виде отношения силы F_{ph} к весу тела mg (m – масса тела, $g = 9,8 \text{ м/с}^2$ – ускорение свободного падения), 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.

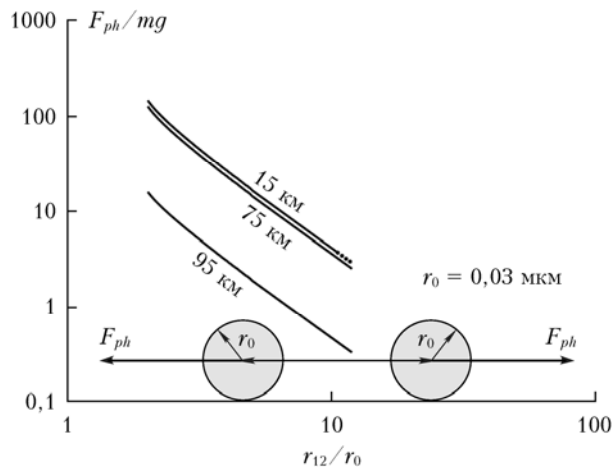


Рис. 1. Сила фотофоретического отталкивания двух одинаковых сферических аэрозольных частиц, находящихся на различных высотах в атмосфере в дневное время, в зависимости от расстояния между их центрами. Частицы, подобно частицам сажи, хорошо поглощают видимое и ИК-излучения

Зависимости силы для высот в диапазоне от 15 до 75 км симпатны зависимостям, которые приведены на рис. 1 для границ этого диапазона. Для заданной пары аэрозольных частиц при солнечном освещении отличие величины силы для разных высот из указанного диапазона невелико (максимум примерно 13%), так как 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 определенной высоте в атмосфере зависимость силы фотофоретического взаимодействия от расстояния между центрами частиц приближенно можно выразить как

$$F_{ph}(r_{12}) \approx \frac{C}{r_{12}^2}, \quad (3)$$

где C – параметр, значение которого определяется на основе численной аппроксимации методом наименьших квадратов кривых $F_{ph}(r_{12})$ при r_{12} больше четырех радиусов частиц. Начальный участок кривых силы слегка отличается от зависимостей вида (3).

Влияние столкновений молекул на силу фотофоретического взаимодействия

Если число Кнудсена аэрозольной системы $\text{Kn} < 1$, то на фотофоретическом взаимодействии существенно сказывается столкновение молекул друг с другом. В общем случае молекулярный перенос описывается интегродифференциальными уравнениями Больцмана, в которых учитывается столкновение молекул между собой. Для грубой оценки влияния молекулярных столкновений на величину сил фотофоретического взаимодействия рассмотрим приближенную схему столкновений. Пусть газовая молекула, столкнувшись с поверхностью одной из аэрозольных частиц в точке s' , начинает двигаться вдоль прямой 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 столкнется с новой поверхностью. При учете столкновений молекул вероятность того, что молекула достигнет точки s , не испытав столкновения 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 нее 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 мы следующим образом модифицировали исходный алгоритм [20], базирующийся на приближении свободномолекулярного режима и методе Монте-Карло. Предполагалось, что та же самая молекула перемещается по прямой из точки s' , где она сталкивается с поверхностью, до точки s – точки столкновения с новой поверхностью.

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 невозмущенной газовой среды.

Применение такой схемы расчета может заметно завышать эффект уменьшения силы фотофоретического взаимодействия за счет взаимных столкновений молекул. В частности, взаимные столкновения молекул, каждая из которых несет избыточный импульс и энергию, которые они получили от нагретых поверхностей аэрозольной системы, не должны со стопроцентной вероятностью уменьшать величину фотофоретических сил. Тогда как согласно схеме любые столкновения приводят к выравниванию температур в газовых пучках и газовой среде.

Сравнение результатов расчета силы фотофоретического отталкивания, полученных с учетом и без учета молекулярных столкновений, представлено на рис. 2. Здесь, как и на рис. 1, приведены зависимости силы фотофоретического взаимодействия от расстояния между центрами частиц, радиус которых 0,03 мкм. Параметры атмосферы соответствуют нулевой высоте над уровнем моря: давление равно 101 000 Па, температура 300 К, средняя длина свободного пробега молекул 0,0686 мкм. Полагается, что частицы находятся в атмосфере в дневное время. Изменение плотности потока, падающего на частицы солнечного излучения, за счет его рассеяния и поглощения в атмосфере не учитывалось ($I = 1368 \text{ Вт/м}^2$). На верхней горизонтальной оси отмечены значения числа Кнудсена аэрозольной системы, в данном случае $\text{Kn} = l_{av}/r_{12}$. Кривая 1 получена с учетом, кривая 2 — без учета молекулярных столкновений. Сегмент последней кривой, представленный сплошной линией, соответствует сравнительно большим значениям числа Кнудсена ($\text{Kn} > 1$). Кривая при $\text{Kn} < 1$ продолжена точками. В данном случае $\text{Kn} = 1$ достигается приблизительно при $r_{12} = 2,25r_0$.

Рассмотрим область чисел Кнудсена, где $\text{Kn} \geq 1$. Различие между двумя зависимостями (кривые 1 и 2) нивелируется при увеличении этого числа, но даже на нижней границе указанного диапазона при $\text{Kn} = 1$ оно не очень велико — молекулярные столкновения примерно на 25% уменьшают величину рассчитанной силы.

Таким образом, применение свободномолекулярного приближения для количественного расчета сил фотофоретического взаимодействия можно считать оправданным при $\text{Kn} \geq 1$. Принимая во внимание, что использованная схема учета молекулярных столкновений заметно преувеличивает влияние столкновений молекул между собой, погрешность расчетов на границе диапазона при $\text{Kn} = 1$ составит 10% и будет уменьшаться при увеличении числа Кнудсена.

При $\text{Kn} < 1$, т.е. с ростом расстояния между частицами, силы, рассчитанные в разных приближе-

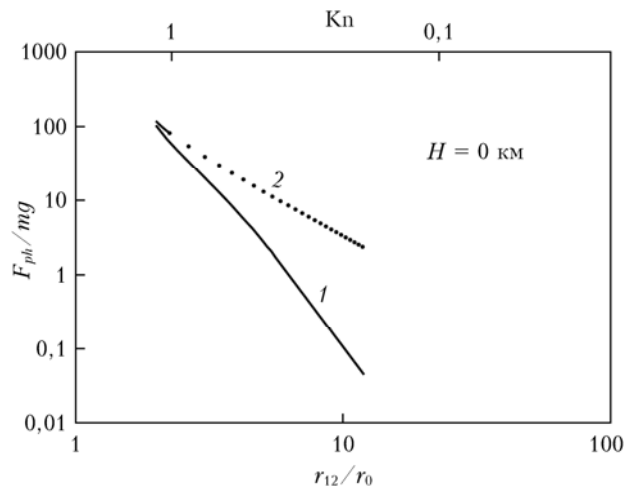


Рис. 2. Сила фотофоретического отталкивания двух одинаковых сферических аэрозольных частиц радиусом 0,03 мкм, находящихся в атмосфере на уровне моря в дневное время, рассчитанная с учетом (1) и без учета (2) столкновений молекул между собой. Частицы, подобно частицам сажи, хорошо поглощают видимое и ИК-излучения

ниях, отличаются существенно. При уменьшении числа Кнудсена эффект фотофоретического взаимодействия подавляется межмолекулярными столкновениями все сильнее и сильнее. Если расстояние между частицами велико ($r_{12} \gg l_{av}$), а радиусы аэрозольных частиц достаточно малы ($r_0 \ll l_{av}$), вышеописанная схема учета молекулярных столкновений позволяет получить довольно точную оценку величины фотофоретической силы с учетом молекулярных столкновений при больших расстояниях между частицами:

$$F_{ph}(r_{12})^* \approx F_{ph}(r_{12}) \exp\left(-\frac{r_{12}}{l_{av}}\right) = C \frac{\exp\left(-\frac{r_{12}}{l_{av}}\right)}{r_{12}^2}, \quad (4)$$

где $F_{ph}(r_{12})$ — фотофоретическая сила, рассчитанная в приближении свободномолекулярного режима. При больших расстояниях между частицами фотофоретическая сила, рассчитанная с учетом молекулярных столкновений, начинает уменьшаться по экспоненциальному закону (4) с ростом этих расстояний.

Зависимость фотофоретического взаимодействия от размеров частиц

На рис. 3 представлены силы фотофоретического взаимодействия аэрозольных частиц в зависимости от их размера (радиуса r_0) для различных высот в атмосфере. Силы рассчитаны для такого взаимного положения частиц, когда 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. Рис. 3, а получен для дневных условий, когда частицы поглощают видимое солнечное и инфракрасное излучения от поверхности Земли. Силы рассчитаны

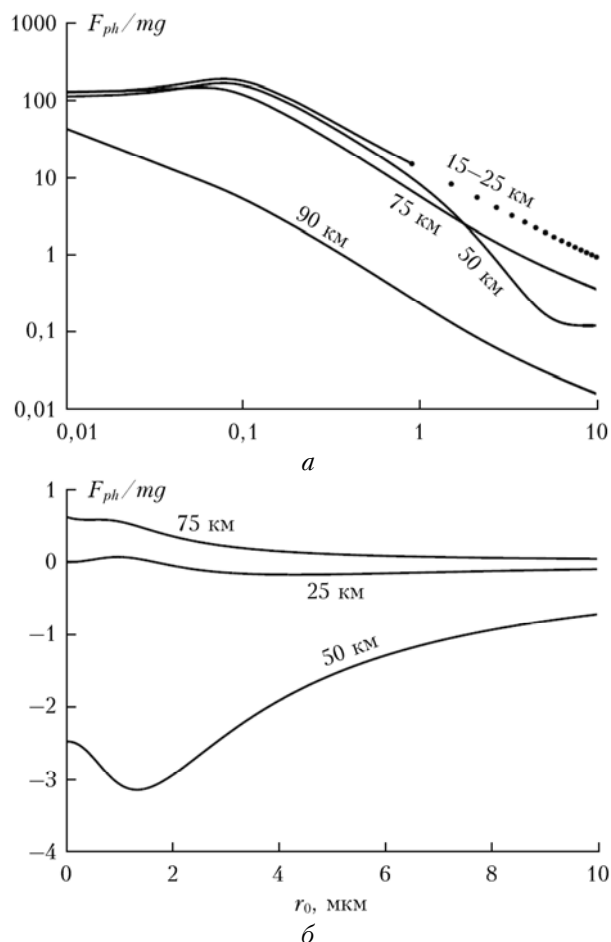


Рис. 3. Сила фотофоретического взаимодействия двух одинаковых сферических аэрозольных частиц, находящихся на различных высотах в атмосфере в дневное (а) и ночное (б) время, в зависимости от размера этих частиц. Частицы находятся почти в контакте друг с другом и, подобно частицам сажи, хорошо поглощают видимое и ИК-излучения

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 $K_n < 1$ для кривой, соответствующей силе на 15 км, и использование приближения свободномолекулярного режима приводит к большим погрешностям. Рис. 3, б демонстрирует зависимости для ночных условий, когда частицами поглощается только ИК-излучение Земли.

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. Зависимости силы от размера частиц для этого диапазона высот имеют следующие особенности. При малых размерах частиц (r_0 меньше 0,03 мкм) относительная величина силы является приблизительно постоянной величиной. С ростом размера частиц наблюдается падение относительной силы. На больших высотах, например 90 км, происходит увеличение влияния ИК-излучения на тепловой баланс частиц, что приводит к тому, что при за-

данном размере частиц сила заметно уменьшается по сравнению с ее величиной на более низких высотах.

Ночью силы фотофоретического взаимодействия невелики по сравнению с силами, действующими на частицы днем. Эти силы максимум в несколько раз превышают силу тяжести. Кроме того, наблюдается не только отталкивание, но и притяжение частиц, которое возникает на высотах в окрестности 50 км (см. рис. 3). Ему соответствует отрицательный знак для сил взаимодействия. Частицы притягиваются потому, что тепловой баланс, определяемый молекулярными потоками тепла, поглощаемой и излучаемой ИК-энергией, таков, что температура частиц становится меньше температуры атмосферного газа [24], и в соответствии с выражением (1) фотофоретическая сила меняет знак, т.е. частицы начинают испытывать притяжение друг к другу.

Влияние фотофоретического взаимодействия на константу коагуляции

Кулоновский тип зависимости фотофоретической силы взаимодействия от расстояния между центрами частиц (3) позволяет провести аналогию с электростатическим взаимодействием, возникающим между аэрозольными частицами, имеющими заряд одного знака. Решение задачи о броуновской коагуляции заряженных частиц одинакового размера известно [4]. Константа коагуляции с учетом электростатического отталкивания имеет вид

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

Здесь K_0 – константа коагуляции для частиц без зарядов; β – поправочный коэффициент; $\lambda_{12} = U/kT$, $U = q_1 q_2 / 2r_0$ – энергия электростатического взаимодействия частиц радиусом r_0 , находящихся в контакте друг с другом. Заменяв U на работу фотофоретической силы U_{ph} при сближении частиц, получим

$$\lambda_{12} = \frac{U_{ph}}{kT}, \quad U_{ph} = \int_{2r_0}^{\infty} F_{ph} ds \approx \frac{C}{2r_0}.$$

В данном случае константа K_0 является константой коагуляции в темноте без влияния сил фотофоретического взаимодействия. Оценку отношения констант коагуляции на свету и в темноте имеет смысл проводить для ограниченного сверху диапазона размеров частиц. Верхняя граница приближенно определяется из следующих условий: 1) при близком расположении частиц друг от друга число Кнудсена системы должно быть по крайней мере больше единицы; 2) величина силы фотофоретического взаимодействия должна существенно превышать силу тяжести, так как если величина этих сил становится сопоставимой, то существенную роль начинают играть силы вязкого взаимодействия, возникающие при седиментации частиц.

Рис. 4 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, соответствующий выходу за пределы применимости свободно-молекулярного режима. Согласно результатам расчетов при освещении тонкодисперсных аэрозольных частиц константа коагуляции незначительно меняется за счет фотофоретического отталкивания. При увеличении размера частиц величина константы коагуляции в условиях освещения резко падает на порядки по сравнению с константой в условиях темноты. Таким образом, эффект фотофоретического взаимодействия способен оказать существенное влияние на процесс коагуляции аэрозольных частиц в атмосфере в дневное время.

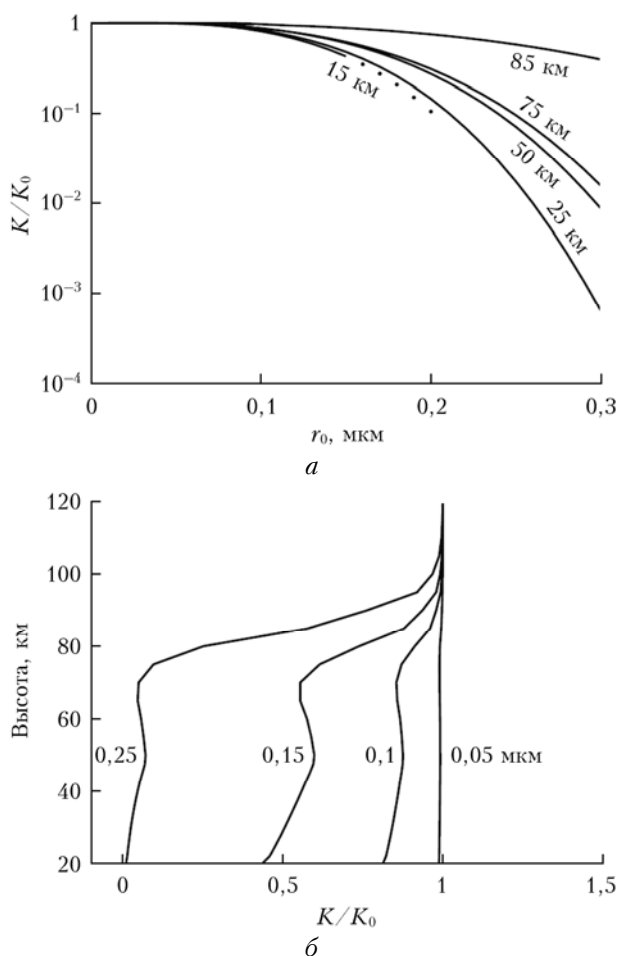


Рис. 4. Отношения констант коагуляции в дневное время, с учетом сил фотофоретического отталкивания, и в условиях темноты в зависимости от размера коагулирующих частиц (а) и высоты над уровнем моря (б). Частицы, подобно частицам сажи, хорошо поглощают видимое и ИК-излучения

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (проект № 13-05-01036 А).

1. *Ивлев Л.С., Довгалюк Ю.А.* Физика атмосферных аэрозольных систем. СПб.: НИИХ СПбГУ, 1999. 194 с.

2. *Otto E., Fissan H.* Brownian coagulation of submicron particles // *Adv. Powder Technol.* 1999. V. 10, N 1. P. 1–20.
3. *Maricq M.M.* Coagulation dynamics of fractal-like soot aggregates // *J. Aerosol Sci.* 2007. V. 38, N 2. P. 141–156.
4. *Фукс Н.А.* Механика аэрозолей. М.: Изд-во АН СССР, 1955. 338 с.
5. *Palaniswamy G., Loyalka S.K.* Direct simulation, Monte Carlo, aerosol dynamics: Coagulation and condensation // *Ann. Nucl. Energy.* 2008. V. 35, N 3. P. 485–494.
6. *Wei J., Kruis F.E.* GPU-accelerated Monte Carlo simulation of particle coagulation based on the inverse method // *J. Comput. Phys.* 2013. V. 249. P. 67–79.
7. *Wei J., Kruis F.E.* A GPU-based parallelized Monte Carlo method for particle coagulation using an acceptance – rejection strategy // *Chem. Eng. Sci.* 2013. V. 104. P. 451–459.
8. *Friedlander S.K.* Smoke, dust, and haze: Fundamentals of aerosol dynamics. N.Y.: Oxford University Press, 2000. 407 p.
9. *Huang D., Seinfeld J.* Fokker–Planck equation solution of aerosol Brownian coagulation with an interparticle potential // *J. Colloid Interf. Sci.* 1990. V. 139, N 1. P. 213–237.
10. *Schmidt-Ott A., Burtscher H.* The effect of van der Waals forces on aerosol coagulation // *J. Colloid Interf. Sci.* 1982. V. 89, N 2. P. 353–357.
11. *Kennedy I.M., Harris S.J.* Direct numerical simulation of aerosol coagulation with van der Waals forces // *J. Colloid Interf. Sci.* 1989. V. 130, N 2. P. 489–497.
12. *Park S.H., Lee K.W., Shimada M., Okuyama K.* Coagulation of bipolarly charged ultrafine aerosol particles // *J. Aerosol Sci.* 2005. V. 36, N 7. P. 830–845.
13. *Delichatsios M.A., Probstein R.F.* Coagulation in turbulent flow: Theory and experiment // *J. Colloid Interf. Sci.* 1975. V. 51, N 3. P. 394–405.
14. *Медников Е.П.* Теория акустической коагуляции аэрозолей // *Докл. АН СССР.* 1968. Т. 193, № 2. С. 382–385.
15. *Reed L.D., Morrison F.A., Jr.* Particle interactions in low knudsen number thermophoresis // *J. Aerosol Sci.* 1975. V. 6, N 5. P. 349–365.
16. *Баканов С.П., Дерягин Б.В., Ролдугин В.И.* Термофорез в газах // *Успехи физ. наук.* 1979. Т. 129, вып. 10. С. 255–278.
17. *Keh H.J., Chen S.H.* Particle interactions in thermophoresis // *Chem. Eng. Sci.* 1995. V. 50, N 21. P. 3395–3407.
18. *Yalovov Y.I., Kutukov V.B., Shchukin E.R.* Theory of the photophoretic motion of the large-size volatile aerosol particle // *J. Colloid Interf. Sci.* 1976. V. 57, N 3. P. 564–571.
19. *Reed L.D.* Low Knudsen number photophoresis // *J. Aerosol Sci.* 1977. V. 8, N 2. P. 123–131.
20. *Cheremisin A.A.* Transfer matrices and solution of the heat-mass transfer problem for aerosol clusters in a rarefied gas medium by the Monte Carlo method // *Russian J. Numer. Anal. Mathemat. Modelling.* 2010. V. 25, N 3. P. 209–233.
21. *Ehrenhaft F.* On the physics of millionths of centimeters // *Zeitschrift für Physik.* 1917. Bd. 18. S. 352–368.
22. *Preining O.* Photophoresis // *Aerosol Science.* Davies C.N., ed. N.Y.: Academic Press, 1966. P. 111–135.
23. *Davis E.J., Schweiger G.* The airborne microparticle: Its physics, chemistry, optics, and transport phenomena. Berlin: Springer-Verlag GmbH, 2002. 833 p.
24. *Cheremisin A.A., Vassilyev Y.V., Horvath H.* Gravito-photophoresis and aerosol stratification in the atmosphere // *J. Aerosol Sci.* 2005. V. 36, N 11. P. 1277–1299.

25. *Cheremisin A.A., Vassilyev Y.V., Kushnarenko A.V.* Photophoretic forces for bispherical aerosol particles // Proc. SPIE. 2003. V. 5027. P. 21–32.
26. *Черемисин А.А., Новиков П.В., Шнипов И.С., Бычков В.В., Швецов Б.М.* Лидарные наблюдения и механизм формирования структуры аэрозольных слоев в стратосфере и мезосфере над Камчаткой // Геомагнетизм и аэрон. 2012. Т. 52, № 5. С. 690–700.
27. *Cheremisin A.A., Shnipov I.S., Horvath H., Rohatschek H.* The global picture of aerosol layers formation in the stratosphere and in the mesosphere under the influence of gravito-photophoretic and magneto-photophoretic forces // J. Geophys. Res. A. 2011. V. 116. D19204. DOI: 10.1029/2011JD015958.
28. *Черемисин А.А., Кушнарченко А.В.* Оценка фотофоретического взаимодействия аэрозольных частиц в стратосфере // Оптика атмосф. и океана. 2010. Т. 23, № 6. С. 475–479.
29. *Cheremisin A.A., Kushnarenko A.V.* Photophoretic interaction of aerosol particles and its effect on coagulation in rarefied gas medium // J. Aerosol Sci. 2013. V. 62. P. 26–39.
30. *Rohatschek H.* Semi-empirical model of photophoretic forces for the entire range of pressures // J. Aerosol Sci. 1995. V. 26, N 5. P. 717–734.
31. *Wurm G., Krauss O.* Experiments on negative photophoresis and application to the atmosphere // Atmos. Environ. 2008. V. 42, N 11. P. 2682–2690.
32. *Береснев С.А., Ковалёв Ф.Д., Кочнева Л.Б., Рунков В.А., Суетин П.Е., Черемисин А.А.* О возможности фотофоретической левитации частиц в стратосфере // Оптика атмосф. и океана. 2003. Т. 16, № 1. С. 52–57.
33. *Public Domain Aeronautical Software.* URL: <http://www.pdas.com/atmos.html> (дата обращения: 29 октября 2013).
34. *Cheremisin A.A., Vassilyev Y.V.* Numerical calculation gravito-photophoretic movement for aerosol aggregates // A. Deepak Publishing, 2006. V. 148. P. 131–135.
35. *Bohren C.F., Huffman D.R.* Absorption and scattering of light by small particles. N.Y.: John Wiley and Sons, 1983. 544 p.
36. *Rohatschek H.* Levitation of stratospheric and mesospheric aerosols by gravito-photophoresis // J. Aerosol Sci. 1996. V. 27, N 3. P. 467–475.

A.A. Cheremisin, A.V. Kushnarenko. **Photophoretic interaction of aerosol particles and its effect on coagulation in the atmosphere.**

The paper presents results of an investigation of photophoretic interaction between spherical aerosol particles depending on the atmospheric altitude and particle size. The photophoretic interaction is shown to decrease the coagulation constant of submicron particles strongly absorbing solar radiation in the daytime by orders of magnitude as compared to the constant in darkness.