«Оптика атмосферы и океана», **13**, № 6–7 (2000)

УДК 533.72 + 541.18

Д.Д. Рывкин, С.А. Береснев

Оценка влияния броуновской диффузии при термофоретическом осаждении аэрозоля на поверхность

Уральский государственный университет, г. Екатеринбург

Поступила в редакцию 9.02.2000 г.

Рассматривается явление броуновской диффузии аэрозольных частиц вблизи поверхности осаждения. Вводится и рассчитывается обобщенный коэффициент броуновской диффузии, зависящий от геометрии задачи, чисел Кнудсена, коэффициентов аккомодации молекул газа. На примере термофоретического механизма осаждения анализируется зависимость диффузионной составляющей скорости макроскопического дрейфа частиц к поверхности при различных значениях характерных определяющих параметров.

Введение

В настоящее время можно считать достаточно полно разработанной микрофизическую теорию процессов переноса и эволюции аэрозолей (термо-, диффузо- и фотофорез, коагуляция) в безграничной слабонеравновесной газовой среде [1, 2]. Между тем имеются существенные пробелы в понимании механизмов и количественном описании процессов осаждения аэрозолей из газовой среды на поверхность. Осаждение (или предотвращение осаждения) играет определяющую роль во многих технологических процессах, в частности при изготовлении высококачественных оптических волокон в аэрозольных реакторах, осаждении частиц в плоскопараллельных и круглых каналах (с целью создания высокоэффективных газоочистных устройств) и т.д. Иногда, наоборот, требуется предотвратить осаждение частиц на поверхности из потоков запыленного газа (такая ситуация возможна при производстве кремниевых пластин-заготовок для микроэлектроники, в различных нанотехнологиях, при движении запыленного газа по трубопроводам).

Становится достаточно очевидным, что математическое моделирование такого рода прикладных проблем и тем более надежные количественные предсказания величин эффектов невозможны без подробного газокинетического анализа проблемы. Вместе с тем надо учитывать и наиболее существенные механизмы не газокинетической природы, сопутствующие осаждению аэрозольных частиц. Из них, в первую очередь, заслуживают внимания и анализа ван-дер-ваальсовы силы притяжения между частицей и поверхностью при очень малых расстояниях между ними, а также броуновская диффузия частиц, которая очень значима при нормальных атмосферных условиях для частиц микронных и субмикронных размеров, находящихся вблизи поверхности осаждения.

В данной статье рассматривается явление броуновской диффузии на примере термофоретического осаждения. Оценивается значимость этого явления для различных режимов течения и тепловых свойств частицы и газа.

1. Обобщенный коэффициент броуновской диффузии

В соответствии с первым законом Фика поток частиц через поверхность, перпендикулярную оси OZ, записывается в виде $j = -D\partial c/\partial z$, где D – коэффициент броуновской диффузии; c – концентрация частиц. Согласно второму закону Фика, если считать, что в пространстве концентрация меняется только вдоль оси OZ, то $\partial c/\partial t = D\partial^2 c/\partial z^2$. Коэффициент броуновской диффузии можно рассчитать следующим образом. Пусть диффузия происходит вдоль направления OZ. Рассмотрим прямой цилиндр, площадь сечения которого равна единице, ось параллельна OZ, одно основание имеет координату z, другое – $z + \Delta z$. Таким образом, объем цилиндра равен Δz. Диффузия частиц в цилиндре порождает осмотические силы, действующие на его основания. Осмотическое давление растворенного вещества в растворителе (т.е. в нашем случае частиц в газе) есть $p = ckT$, где k – постоянная Больцмана; T – температура. Считая температуру в пределах цилиндра постоянной, запишем градиент давления в виде $\partial p/\partial z = kTdc/dz$. Этот градиент давления с обратным знаком равен осмотической силе, действующей на все частицы в объеме цилиндра, отнесенной к единице объема, т.е. $-F_{\text{osm}}/\Delta z$. С другой стороны, осмотическая сила равна силе сопротивления, действующей на каждую частицу в объеме, умноженную на число частиц: $F_{\text{osm}} = F_z^D c\Delta z$. Запишем силу сопротивления, действующую со стороны газа на частицу, движущуюся со скоростью U, в виде $F_z^D = \beta U$, где β учитывает геометрию задачи, режим течения по числу Кнудсена, степень аккомодации молекул газа на поверхности. Тогда $\partial p/\partial z = kT\partial c/\partial z = -\beta cU$. Но $J = cU$ есть диффузионный поток вдоль оси OZ, откуда по первому закону Фика получаем коэффициент броуновской диффузии

$$D = kT/\beta. \quad (1)$$

2. Скорость диффузионого осаждения

Рассмотрим стационарную диффузию из зоны с постояной концентрацией $c = c_0$ к стенке, на поверхности которой $c = 0$. В соответствии с первым законом Фика поток осаждающихся частиц к стенке будет равен $J = Dc_0/a$, где a – расстояние от зоны с постоянной концентрацией до стенки. Таким образом, *скорость стационарного диффузионного осаждения частицы* можно оценить как

$$U_{\text{dif}} = D/a. \tag{2}$$

Для нестационарной диффузии, используя второй закон Фика с соответствующими начальными и граничными условиями, получим для частицы вблизи стенки при $t > 0$ *нестационарную диффузионную скорость*:

$$U_{\text{dif}}(a, t) = \left(\frac{D}{\pi t}\right)^{1/2} \exp\left(-\frac{a^2}{4Dt}\right) \Big/ \text{erf}\left(-\frac{a}{(4Dt)^{1/2}}\right). \tag{3}$$

Асимптотика этого выражения при $t \to \infty$ имеет вид $U_{\text{dif}} = D/a(1 - a^2/4Dt)$, что соответствует оценке (2). Уравнение диффузии аэрозольных частиц, находящихся между двумя стенками, расположенными на расстоянии L друг от друга, при тех же начальных и граничных условиях имеет решение [3]:

$$c(z, t) = \frac{4c_0}{\pi} \sum_{n=0}^{\infty} \exp\left(-\frac{(2n+1)^2 \pi^2 Dt}{L^2}\right) \frac{1}{2n+1} \times$$

$$\times \sin\left[(2n+1)\frac{\pi z}{L}\right].$$

При $t \to \infty$ решающую роль играет первый член ряда $c^{(0)}(z, t) = \frac{4c_0}{\pi} \exp\left(-\frac{\pi^2 Dt}{L^2}\right) \sin\left(\frac{\pi z}{L}\right)$ и диффузионный поток на расстоянии a от стенки $z = 0$ равен

$$J^{(0)}(a, t) = \frac{4Dc_0}{L} \exp\left(-\frac{\pi^2 Dt}{L^2}\right) \cos\left(\frac{\pi a}{L}\right), \tag{4}$$

откуда диффузионная скорость аэрозольной частицы между пластинами

$$U_{\text{dif}}(a) = \left(\frac{\pi D}{L}\right) \text{ctg}\left(\frac{\pi a}{L}\right). \tag{5}$$

При $a \ll L$ это выражение переходит в (2), т.е. соответствует стационарному случаю при наличии одной пластины.

3. Основные выводы

Выражение (1) для коэффициента броуновской диффузии содержит коэффициент β, учитывающий зависимость силы сопротивления от расстояния между частицей и плоскостью, размера частицы, режима течения, аккомодационных свойств. Для оценки значимости броуновской диффузии интерес представляет величина $\gamma = U_{\text{dif}}/U_T$ – отношение скоростей диффузионного и термофоретического осаждения. В частности, в вязком со скольжением режиме, используя результаты, например, [4], получаем

$$\gamma = \frac{kT_0}{a} \frac{\rho T_0 (2 + \Lambda)}{9\pi\eta^2 2R |\nabla T|} \frac{1}{\Psi(\alpha, \Lambda)}, \tag{6}$$

где $a/R = \text{ch}\,\alpha$; η – вязкость газа; ρ – плотность газа; Λ – отношение теплопроводностей частицы и газа; $|\nabla T|$ – модуль внешнего градиента температуры; $\Psi(\alpha, \Lambda)$ – функция, затабулированная в [4]. Видно, что с ростом давления, температуры, молекулярной массы газа и уменьшением его вязкости роль броуновской диффузии возрастает.

Более существенна броуновская диффузия для мелких (субмикронных) частиц при их приближении к поверхности ($a \sim R$). Рассмотрим пример. Пусть $T_0 = 300$ К, $\rho = 1$ кг/м^3, $\eta = 10^{-3}$ кг/(м·с), $|\nabla T| = 10^3$ К/м, $R = 0{,}1$ мкм, $a = 2R$. Тогда $\gamma = 2{,}2\,(2 + \Lambda)/[\Psi(\Lambda, \alpha \approx 1{,}25)]$. Для частиц таких размеров скорость броуновской диффузии частиц к поверхности намного превышает скорость термофоретического осаждения вблизи стенки.

В свободномолекулярном режиме [5] коэффициент

$$\gamma = \frac{kT_0}{a} \frac{15}{32R^2 \lambda_g |\nabla T|} \left(\frac{8kT}{\pi m}\right)^{1/2}. \tag{7}$$

Здесь λ_g – теплопроводность газа; m – масса газовой молекулы. Возьмем для оценки $T_0 = 300$ К, $\lambda_g = 10^{-2}$ Вт/(м·К), $|\nabla T| = 10^3$ К/м, $R = 0{,}1$ мкм, $a = 100R$. Тогда для газа с молярной массой $M = 0{,}016$ кг/моль получаем $\gamma \approx 4$. Таким образом, и в свободномолекулярном режиме на достаточном удалении от стенки броуновская диффузия играет существенную роль для субмикронных частиц. Однако поскольку $\gamma \approx 1/r^2$, то с ростом радиуса частицы влияние диффузии быстро убывает и практически исчезает для $R \approx 1$ мкм.

1. *Hidy G.M., Brock J.R.* The dynamics of aerocolloidal systems. Oxford: Pergamon Press, 1970. 379 p.
2. *Williams M.M.R., Loyalka S.K.* Aerosol science. Theory and practice. Oxford: Pergamon Press, 1991. 446 p.
3. *Карслоу Е., Егер Д.* Теплопроводность твердых тел. М.: Наука, 1964.
4. *Williams M.M.R.* Thermophoretic force between a sphere and a plane surface // J. Colloid Interface Sci. 1988. V. 122. N 1. P. 110–119.
5. *Beresnev S., Ryvkin D.* Thermophoresis of spherical particles between two flat plates // J. Aerosol Sci. 1999. V. 30. Suppl. 1. P. S327–S328.

D.D. Ryvkin, S.A. Beresnev. **Estimate of Brownian diffusion influence on thermophoretic deposition of aerosols.**

The Brownian diffusion of aerosol particles in the neighborhood of deposition surface is considered. Generalized Brownian diffusion coefficient is introduced and calculated as a function of geometry of the problem, Knudsen numbers, and accommodation coefficients of gas molecules. With the thermophoretic deposition mechanism taken as the example, the diffusion part of macroscopic drift velocity of a particle toward the surface is analyzed at different values of relevant parameters.