

О временной динамике комплексного показателя преломления и микроструктуры частиц по данным спектронефелометрических измерений в смешанных дымах

Р.Ф. Рахимов, В.С. Козлов, В.П. Шмаргунов*

*Институт оптики атмосферы им. В.Е. Зуева СО РАН
634021, г. Томск, пл. Академика Зуева, 1*

Поступила в редакцию 27.12.2010 г.

Изучены особенности динамики комплексного показателя преломления (КПП) для трех фракций частиц при старении смешанных древесных дымов, образованных при одновременной генерации частиц от двух источников в режимах пиролиза и пламенного горения, в течение 2 сут. На начальной стадии формируется дым, в котором показатель поглощения χ уменьшается с ростом крупнодисперсности частиц в среднем в 600 раз. При долговременном старении дыма происходит уменьшение χ микродисперсных сажевых частиц (в 1,2 раза), сопровождаемое ростом его значений для средне- и крупнодисперсных частиц в 1,5 и 4,7 раза соответственно. Это означает, что динамика микрофизического состава дыма на всех стадиях его существования в основном обусловлена проникновением сажи из нанометрового диапазона в область более крупных размеров частиц за счет коагуляции.

Численный эксперимент показал, что для корректного решения обратной задачи при старении смешанных дымов необходимо использовать только соответствующие данному моменту времени значения КПП. Попытки решения обратной задачи при неизменных во времени значениях КПП приводят к возрастанию в несколько раз невязки между измеренными и восстановленными оптическими характеристиками относительно невязки для истинных значений КПП, составляющей 6–10%.

Тестирование трехфракционной методики решения обратной задачи с помощью модельного аэрозоля с известным значением КПП (этиленгликоль) показало, что развиваемый подход обеспечил с высокой точностью восстановление истинного значения КПП оптически активных частиц среднелдисперсного диапазона размеров. Величина невязки при использовании трехфракционной методики снижается в среднем в 2 раза по сравнению с традиционной однофракционной методикой (частицы однородной природы).

Ключевые слова: горение биомассы, смешанные дымы, сажа, спектронефелометрия, обратная оптическая задача, распределение по размерам, комплексный показатель преломления, временная изменчивость; biomass burning, mixed smokes, soot, spectronephelometry, inverse problem, size distribution, complex index of refraction, temporal variability.

Введение

При лесных пожарах в воздух поступает огромное количество аэрозолеобразующих соединений и дымовых частиц, которые, активно воздействуя на радиационные, оптические и экологические свойства атмосферы, могут приводить к климатическим изменениям [1–3]. Исследования [4–9] показывают, что состав аэрозольно-газовых смесей, поступающих в воздух при лесных пожарах, изменяется при переходе от одной зоны эмиссии к другой и зависит от специфики процесса: происходит ли высокотемпературное горение с пламенем (фронты пожаров) или низкотемпературное тление (пиролиз) лесных горючих материалов (ЛГМ)? В итоге дымовые частицы перемешиваются между собой,

создают обширные пространственные задымления атмосферы и формируют дымовые шлейфы, траектории которых отражают региональный и глобальный переносы воздушных масс.

Субмикронный аэрозоль представляет собой оптически наиболее активную часть дымов и имеет продолжительное время жизни в атмосфере (1–1,5 нед). Вследствие этого дымовые аэрозоли переносятся воздушными массами на расстояния в несколько сотен и даже тысяч километров.

Исследования механизмов формирования и временной изменчивости оптико-микрофизических свойств аэрозольно-газовых смесей, образующихся при термической возгонке лесных горючих материалов, представляют значительный интерес для оценки вклада масштабных пожаров в радиационный форсинг атмосферы.

Дымовые эксперименты, проводимые в большой аэрозольной камере (БАК) Института оптики атмосферы им. В.Е. Зуева СО РАН в течение двух

* Рустам Фуатович Рахимов (temur@iao.ru); Валерий Степанович Козлов (vkozlov@iao.ru); Владимир Петрович Шмаргунов (vpsh@iao.ru).

последних десятилетий, обеспечили накопление данных оптических измерений по таким характеристикам, как аэрозольное ослабление, рассеяние и поглощение. Эти исследования были направлены на выявление специфики формирования оптико-микрофизических свойств дымов, образующихся при сгорании различных углеводородных материалов и биомассы в режимах пиролиза, горения с пламенем и смешивания этих двух режимов [2, 4–14]. Аэрозольная камера большого объема (1800 м³) обеспечивает уникальные возможности проведения дымовых экспериментов в контролируемых условиях и, в случае необходимости, неоднократного их повторения.

На первом этапе исследований дымов методами поляризационной нефелометрии с применением активных воздействий на аэрозоль были изучены реакции дымовой смеси на изменение относительной влажности и температуры воздуха. Используя методы решения обратной задачи, а также трассовые измерения коэффициентов аэрозольного рассеяния и поглощения, получили предварительные оценки величины альbedo однократного рассеяния [2, 4, 5]. По результатам экспериментов было установлено, что при режимах низкотемпературного пиролиза (тления) и горения с пламенем генерируются частицы качественно различного химического состава. При пиролизе древесины и других углеводородных материалов образуются слабопоглощающие частицы с высоким содержанием легколетучих соединений, тогда как при пламенном горении – сильнопоглощающие сажеосодержащие частицы. Было установлено, что дисперсный состав дымов также существенно зависит от массы сжигаемого материала и при увеличении плотности задымления характеризуется трехмодальным распределением частиц по размерам.

На втором этапе работы по мере совершенствования методики обращения оптических данных дымовые эксперименты усложнялись, и, в том числе, были проведены детальные исследования смешанных дымов, образующихся при одновременной генерации от двух источников продуктов термического разложения ЛГМ (в режимах пиролиза и пламенного горения) [6–14].

Результаты обращения спектронефелометрических измерений показали, что при смешивании продуктов термического разложения ЛГМ образуются дымы, состоящие в основном из двух аэрозольных компонентов: сильнопоглощающего микродисперсного (радиусами <250 нм) и слабопоглощающего средне- и крупнодисперсного (> 300 нм). Высокая концентрация микродисперсной (тонкодисперсной) сажевой составляющей на стадии дымообразования и ее интенсивное коагуляционное взаимодействие с более крупными частицами приводят к формированию смешанного дыма, в котором наблюдается изменение значений комплексного показателя преломления по диапазонам дисперсности (фракциям).

В настоящей статье обсуждаются результаты тестирования базовой методики обращения спектро-нефелометрических данных, модифицированной для анализа оптико-микрофизических свойств смешанных дымов. Анализируются выявленные устойчивые особенности динамики оптических постоянных частиц при выстаивании в БАК дымов смешанного состава. Рассматриваются результаты численного эксперимента, направленного на оценку влияния выбора комплексного показателя преломления (КПП) трех фракций на величину невязки решения обратной задачи.

1. Методика определения распределения частиц по размерам в приближении трехфракционной модели комплексного показателя преломления частиц

Основу методики оценки микроструктуры дымового аэрозоля определяет традиционный подход [11] к решению обратной задачи, сформулированный И.Э. Наацем и его учениками в работах [15, 16, 18].

В рамках базовой методики функция $s(r) = \pi r^2 n(r)$ (мкм·см⁻³), где $n(r) = dN/dr$ – плотность распределения (мкм⁻¹·см⁻³) счетной концентрации частиц по размерам, аппроксимируется ступенчатой функцией (гистограммой) $s^*(r)$ [15], которая определяется на основе минимизации сглаживающего функционала:

$$F_\alpha(S, m) = \sum_j \eta_j \sum_i \left(\sum_l q_{jil} S_l - \beta_{ji} \right)^2 + \alpha \left[p_0 \sum_l S_l^2 + p_1 \sum_l (\Delta S_{l+1,l})^2 \right], \quad (1)$$

где $\beta_{ji} = \beta(\theta_j, \lambda_i)$ – измеряемые спектронефелометром значения коэффициента направленного рассеяния (КНР) под углами θ_j ($j = 1, 2, \dots, 5$) для длин волн λ_i ($i = 1, 2, \dots, 9$); α – параметр регуляризации; q_{jil} – элементы матрицы, рассчитываемые на основе квадратур [15] по значениям фактора эффективности коэффициентов направленного рассеяния $K(m, r, \theta_j, \lambda_i)$ аэрозольной частицы радиуса r для фиксированной сетки значений r_l ($l = 1, 2, \dots, k$), длины волны излучения ($i = 1, 2, \dots, 9$) и углов рассеяния θ_j ; $m = n - i\chi$ – комплексный показатель преломления частиц; p_0 и p_1 – масштабные коэффициенты; η_j – весовые множители.

Компоненты вектора решения S_l представляют собой суммарное геометрическое сечение частиц на интервалах Δ_l с границами

$$r_l' = (r_{l-1} + r_l)/2; \quad r_l'' = (r_{l+1} + r_l)/2; \\ r_1' = (R_1 + r_1)/2 \quad \text{и} \quad r_k'' = (R_2 + r_k)/2.$$

Левая граница R_1 интервала решения R выбиралась априори из области значений 10–30 нм. Правая граница R_2 находилась по модифицированной в [16] методике, предложенной в [15]. Значение ступенчатой функции $s^*(r)$ на интервале Δ_l определяется отношением S_l/Δ_l . Величина параметра регуляризации выбиралась по критерию «квазиоптимального» значения [17] на основе анализа поведения нормы отклонения между двумя последовательными регуляризованными решениями для убывающей совокупности значений α .

Базовый подход к решению обратной задачи исходит из предположения, что оптические постоянные вещества частиц внутри дисперсной смеси неизменны, постоянны по всему спектру размеров частиц, т.е. аэрозольная среда в первом приближении считается однородной по своему химическому составу.

Свойства дымов, полученных в режиме низкотемпературного пиролиза, таковы, что для решения обратной задачи достаточно оценки лишь одного обобщенного для всех частиц значения КПП. Этот факт свидетельствует о диэлектрической однородности состава частиц. Как следствие, базовая («однофракционная») методика обращения успешно использовалась при анализе микроструктуры дымов пиролиза. При этом достигаемая невязка решения обратной задачи составляла 7–14%.

Применение базовой методики для анализа более сложных дымовых смесей (пиролиз + горение) показало, что традиционная методика работает недостаточно хорошо. В силу объективной неоднородности состава смешанных дымов применение традиционной методики ведет к существенному возрастанию невязки (до 60–80%) и как следствие к существенному искажению искомого спектра размеров дымовых частиц.

Поскольку результаты измерений содержания сажи аэталометром [2, 4, 5] уверенно указывают на наличие в дымах пламенного горения большого количества сажевых частиц, тогда как в пиролизных дымах большинство частиц умеренно поглощающие, было решено модифицировать базовую методику. С этой целью при решении обратной задачи шкала размеров была разбита на два подынтервала, в которых использовались разные значения КПП.

Была реализована серия численных экспериментов, в которых обращение данных спектрофелометрических измерений проводилось с использованием одновременно двух (а затем и трех) значений КПП, изменяющихся по шкале размеров. В частности, в интервале малых размеров ($r < 300$ нм) дымовые частицы рассматривались как сильнопоглощающие (сажевые) с $m_1 \sim 1,8 - 0,7i$, а более крупные, как умеренно поглощающие, с $m_2 \sim 1,550 - 0,005i$. Использование нового подхода позволило кардинально снизить норму отклонений (относительную невязку) между измеренными и восстановленными значениями КНР в 3–4 раза до значений 15–28%.

Модифицированная методика открыла дополнительные возможности для уточнения конкретных значений m_1 и m_2 и оценки границы между двумя интервалами на шкале размеров. С целью оптимального решения обратной задачи поиск минимума невязки выполняется за счет последовательности численных оценок (итераций) в двухкоординатной сетке мнимых и действительных значений m_1 и m_2 , равномерно охватывающих области точек вокруг их «исходных» значений. Используя последовательно окрестность значений вокруг m_2^* (при фиксированном исходном значении m_1^*), а затем вокруг m_1^* (при фиксированном m_2^* , найденном при проведении первой итерации), искомые величины m_1 и m_2 уточнялись при каждой итерации. В результате численных экспериментов невязка удается снизить еще в 2–3 раза и достичь минимальной ее величины в 9–12%.

В ходе численных оценок центр окрестности двухкоординатной сетки (m_1, m_2) сдвигается в область минимума невязки и постепенно снижается величина шага Δm . Общая схема процедуры определения КПП частиц и параметров их микроструктуры при этом оставалась близкой к схеме, приведенной в [15, 18]. В предположении независимости КПП от размера частиц находится первое приближение $s_1^*(r)$ и m^* . На следующем шаге предполагается, что полученная оценка m^* соответствует средне- и крупнодисперсному аэрозолю и находится новое приближение $s_2^*(r)$ на всем интервале дисперсности дымовых частиц из условия минимума функционала (1) и уточненная оценка m_t^* – для тонкодисперсной фракции частиц из условия минимума невязки по параметру m_t . При найденном значении m_t^* по аналогичной схеме находится новое приближение $s_3^*(r)$ и оценка $m_{сд}^*$ – для среднедисперсной, и при необходимости $s_4^*(r)$ и $m_{кд}^*$ – для крупнодисперсной фракции. Границы фракций определяются по фактически восстановленным распределениям $s^*(r)$.

В итоге удается получить отдельные для каждой фракции частиц значения КПП и распределений частиц по размерам. При этом получаемые в результате численных экспериментов регуляризованные решения $s^*(r)$ последовательно использовались для уточнения исходных значений $m_{1,2,3}$ по отдельным дисперсным интервалам из условия минимума невязки (1).

Предложенный модифицированный подход к решению обратной задачи, развитый на основе базовой методики [15, 16, 18], позволил выполнить анализ спектрофелометрических измерений как для однородных по химическому составу дымов пиролиза, так и для явно неоднородных по химическому составу – многокомпонентных дымов смешанного состава, генерируемых при одновременном воздействии двух источников дымообразования в режимах пиролиза и горения.

2. Результаты определения микрофизических характеристик для однородной модельной дисперсной смеси и древесных дымов смешанного состава

2.1. Тестирование методики решения обратной задачи и спектронефелометрических измерений в дымах смешанного состава

Поскольку наши исследования в целом опираются не только на теоретические, но и на экспериментальные результаты, представляет значительный интерес тестирование развиваемого подхода на аэрозольных средах с известным микрофизическим составом. В общем случае это позволяет проверить не только методику решения обратной задачи, но и качество исходного измерительного материала, полученного на основе соответствующей методики измерений коэффициента направленного рассеяния спектронефелометром, в том числе и калибровку самого прибора.

Не подвергая сомнению результаты ранее проведенных экспериментов в смешанных дымах [10–14], у авторов появилась техническая возможность выполнения тестирования с помощью источника аэрозольных частиц ANTARI-Z800-II, генерирующего однородную аэрозольную смесь посредством диспергирования этиленгликоля $\text{HO}-\text{CH}_2-\text{CH}_2-\text{OH}$ с априорно известным значением КПП в видимой области спектра. Использование такой модельной аэрозольной среды позволяет оценить корректность определения КПП по крайней мере для оптически

активных частиц среднедисперсного диапазона размеров на основе использования трехфракционной модели КПП.

На первой стадии исследований в большой аэрозольной камере ИОА СО РАН был выполнен специальный цикл спектронефелометрических измерений. Модельной дисперсной средой заполнялась аэрозольная камера, и с помощью поляризационного спектронефелометра [6] выполнялись измерения коэффициента направленного аэрозольного рассеяния $\beta(\theta_j, \lambda_i)$ на углах рассеяния $\theta_j = 15, 45, 110, 135, 165^\circ$ для 9 длин волн λ_i в интервале 440–690 нм.

Поскольку нефелометрические измерения проводятся в режиме последовательных измерений коэффициентов направленного рассеяния $\beta(\theta_j, \lambda_i)$, то при обработке данных необходимо проведение синхронизации всей совокупности данных (по различным поляризациям, длинам волн и углам рассеяния – 90 разовых измерений на один полный цикл). Синхронизация всех разовых измерений выполнялась с помощью полиномиальной аппроксимации. Моменты времени, для которых делаются выборки синхронизованных данных $\beta(\theta_j, \lambda_i)$, могут следовать с различным, в том числе переменным, интервалом.

На основе полученных синхронизованных данных решалась обратная задача в приближении 3-фракционной модели КПП и оценивались микрофизические параметры аэрозольной среды.

На рис. 1 представлена временная динамика вертикально поляризованной компоненты коэффициента направленного аэрозольного рассеяния $\beta(\lambda_i = 530 \text{ нм})$ для 5 углов рассеяния. Значки на кривых соответствуют временным моментам, для которых решалась обратная задача.

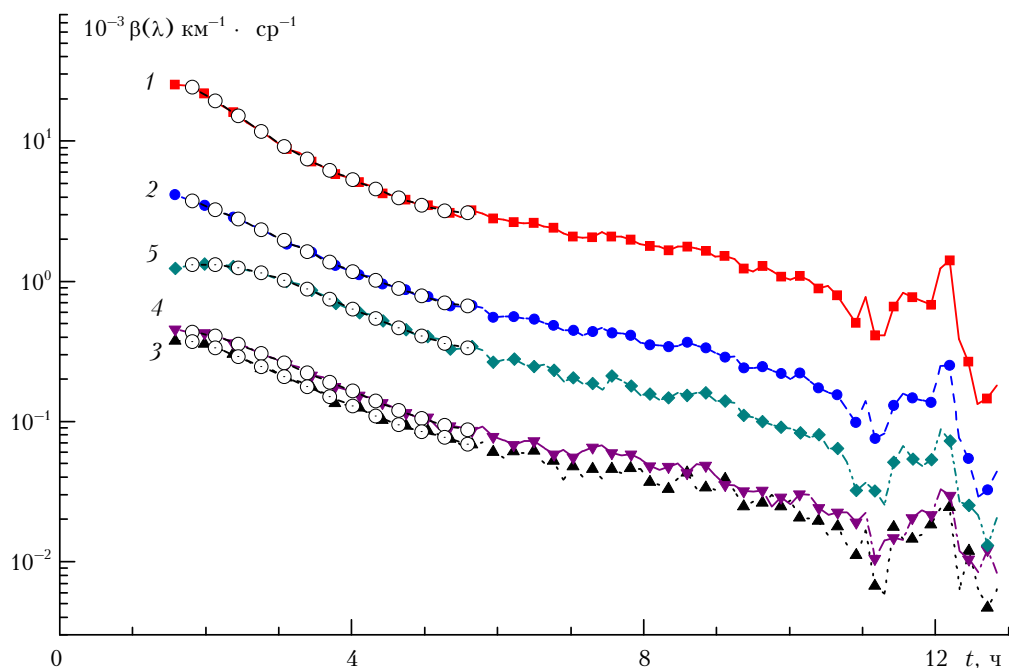


Рис. 1. Временная изменчивость вертикально поляризованной компоненты коэффициента направленного аэрозольного рассеяния модельного аэрозоля $\beta(530 \text{ нм})$ для углов $\theta_j = 15; 45; 110; 135; 165^\circ$ соответственно

Рис. 2 иллюстрирует по результатам решения обратной задачи изменчивость распределения частиц по размерам при выстаивании аэрозольной среды в БАК в течение 9–11 ч.

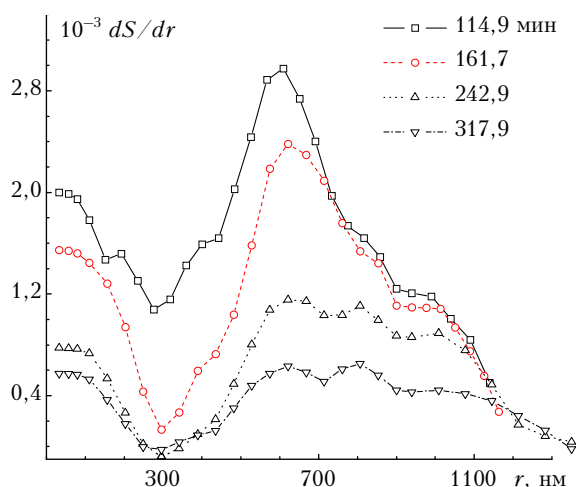


Рис. 2. Восстановленные распределения геометрического сечения частиц по размерам для модельного аэрозоля, образующегося при диспергировании этиленгликоля генератором ANTARI-Z800-II

Оценки КПП для анализируемой дисперсной смеси оказались следующими: $m_1 = 1,629 - i \cdot 0,01$ — для тонкодисперсных частиц ($r \sim 30 \div 170$ нм); $m_2 = 1,442 - i \cdot 10^{-4}$ — для среднедисперсных ($r \sim 170 \div 910$ нм) и $m_3 = 1,393 - i \cdot 0,0034$ — для крупнодисперсных частиц ($r \sim 911$ нм и более).

Согласно табличным данным, для аэрозольных частиц из этиленгликоля КПП в видимой области спектра $m_a \sim 1,431 - i \cdot 0,0$ (ГОСТ 19710-83). Таким образом, для фракции среднедисперсных частиц, дающей основной вклад в оптические характеристики аэрозоля, значение m_2 близко к известному табличному значению оптических постоянных вещества этиленгликоля m_a . Это свидетельствует о корректности оценок КПП модельного аэрозоля с помощью трехфракционной модели, а также о хорошем качестве измеренных спектрально-угловых характеристик, использованных для обращения.

Наряду с этим методика позволила получить и дополнительные данные об оптических постоянных микро- и крупнодисперсной фракций частиц. Эта информация не является принципиальной для задачи проведенного тестирования, и авторы, не подвергая сомнению достоверность полученных оценок, посчитали возможным ограничиться лишь представлением для этих фракций полученных значений КПП и кратких комментариев.

Так, некоторое превышение, по сравнению с m_a , значения m_1 тонкодисперсной фракции, по нашему мнению, можно связывать с неполной очисткой БАК от остатков микродисперсных частиц на стенках камеры в предыдущих дымовых экспериментах. При подготовке камеры к очередным экспериментам обычно производится ее длительная (несколько часов) прокачка сравнительно чистым наружным воздухом. При этом возникающие воз-

душные потоки, вероятно, способны сорвать некоторые из частиц со стенок и вернуть их в воздушную среду. В свою очередь, наблюдаемое при образовании аэрозольной смеси более низкое по сравнению с m_a значение m_3 крупнодисперсных частиц с $r > 911$ нм, возможно, связано с повышением способности сохранения воды в составе крупной частицы при уменьшении кривизны ее поверхности.

Изменения дисперсного состава модельной аэрозольной смеси (см. рис. 2) показывают, что основной по массовому содержанию и оптически активной является среднедисперсная фракция частиц размерами 200–1000 нм, имеющая хорошо выраженный максимум распределения dS/dr в окрестности $r_m \sim 600$ нм. Именно для этого интервала размеров полученные оценки КПП практически совпадают со стандартными значениями для этиленгликоля.

Поскольку аэрозольная смесь образовывалась при диспергировании однородной жидкости на основе этиленгликоля, то полученные оценки для основной фракции частиц соответствуют веществу определенного химического состава и не обнаруживают существенных изменений КПП при выстаивании аэрозольной среды в течение 5–6 ч.

Таким образом, тестовый эксперимент показал, что модифицированная методика и алгоритм обращения спектрофелометрических данных позволяют корректно определить значение КПП для фракции оптически активных среднедисперсных частиц. Из оценок следует, что использование трехфракционной модели КПП позволило уменьшить относительную невязку восстановленных и измеренных оптических характеристик по сравнению с однофракционным приближением почти вдвое — от 10–12 до 4–7%.

2.2. Результаты определения микрофизических характеристик древесных дымов смешанного состава

В смешанных дымах с появлением в дисперсной смеси аэрозольных частиц, образующихся в процессе пламенного горения, ситуация с динамикой оптико-микрофизических параметров кардинально меняется. В дымах, формируемых за счет смешивания в БАК аэрозолей, генерированных в режимах пламенного горения и тления, в результате диффузии и коагуляции частиц возникает неоднородная дисперсная смесь. Высокая концентрация частиц тонкодисперсной фракции в процессе коагуляционных столкновений ведет к их «проникновению» в структуру более крупных частиц. Поскольку ранее выполненные оценки [3, 4] показывают, что в составе дымов горения наблюдается повышенное содержание сильнопоглощающих частиц, приближающихся по своим поглощающим свойствам к саже, то их взаимодействие на стадии дымообразования с умеренно поглощающими частицами пиролизного дыма ведет к заметной изменчивости КПП по спектру размеров.

В настоящей статье основное внимание уделено выявлению особенностей динамики оптических

постоянных и дисперсного состава частиц на стадии их трансформации в процессе старения дыма. Рассмотрим на примере одного из проведенных дымовых экспериментов типичные особенности изменчивости оптико-микрофизических параметров частиц при выстаивании древесного дыма в БАК в течение 1,5 сут. Для образования смешанного дыма в качестве ЛГМ были использованы образцы древесины из сосны. Пиролиз образца массой $M_1 \sim 600$ г реализовывался при температуре $T_{\text{п}} \cong 400$ °С в первой муфельной печи с объемом камеры термического разложения (КТР) $\sim V_{\text{КТР}} = 10$ л. Режим пламенного горения образца массой $M_2 \sim 400$ г. происходил при $T_{\text{п}} \cong 690$ °С во второй муфельной печи ($V_{\text{КТР}} \sim 4$ л). Печи в аэрозольной камере были установлены на удалении 15 м друг от друга. Процессы сжигания древесных образцов в обеих печах начинались одновременно, продукты термического разложения поступали в БАК, где и перемешивались в режиме свободной диффузии. Высота камеры составляет 10 м. Дым сначала поступал в ее верхнюю часть и примерно через 1 ч равномерно распределялся по всему объему камеры. Дымы выстаивались в БАК в течение 1–2 сут после образования. В этот период времени с помощью спектрофелометра непрерывно измерялись спектральные значения коэффициента направленного аэрозольного рассеяния дыма.

На рис. 3 представлена временная развертка вертикально поляризованной компоненты коэффициента направленного аэрозольного рассеяния β (530 нм) для 5 углов рассеяния. По особенностям временной динамики кривые хорошо соответствуют экспоненциальному уменьшению значений при выстаивании дымовой смеси.

Для рассматриваемого дыма были выбраны 5 временных моментов от начала дымообразования: $t = 1,9; 4,2; 8,6; 12,7; 16,9$ ч. В таблице для указанных моментов времени приведены восстановленные значения КПП для трех интервалов дисперсности, там же указаны характерные границы размеров при осреднении значений действительной и мнимой частей КПП.

В последних четырех столбцах таблицы приведены рассчитанные по восстановленным распределениям dS/dr интегральные значения счетной концентрации N , сечения S и объема V дымовых частиц. В последнем столбце даны оцененные по S и V значения среднеэффективного радиуса $r_{\text{эф}}$ дымовых частиц, иллюстрирующие динамику крупнодисперсности дыма во времени.

Из таблицы видно, что в смешанном дыме значения оптических постоянных вещества частиц подвержены значительным изменениям по интервалам дисперсных фракций.

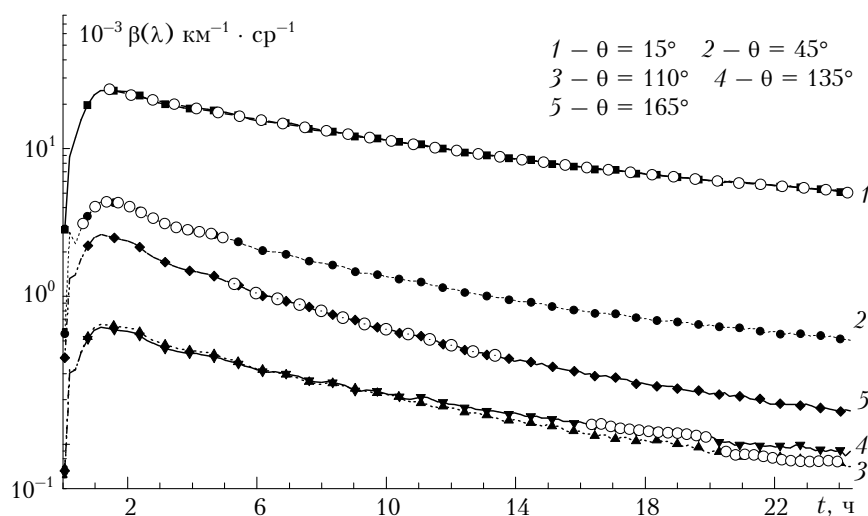


Рис. 3. Временная изменчивость вертикально поляризованной компоненты коэффициента направленного аэрозольного рассеяния смешанного дыма на длине волны 530 нм для 5 углов рассеяния

Интегральные параметры дисперсного состава и значения КПП для микро-, средне- и крупнодисперсных фракций смешанного дыма (сосна), полученные по результатам обращения спектрофелометрических данных на БАК, 17.09.2010

$t, \text{ч}$	I интервал, нм		II интервал, нм		III интервал, нм		$N \cdot 10^{-4}, \text{см}^{-3}$	$S \cdot 10^{-3}, \text{мкм}^2 \cdot \text{см}^{-3}$	$V \cdot 10^{-2}, \text{мкм}^3 \cdot \text{см}^{-3}$	$r_{\text{эф}}, \text{нм}$
1,9	$r_{\text{н}}$ 30 n 2,311	$r_{\text{к}}$ 100 χ 1,930	$r_{\text{н}}$ 101 n 1,973	$r_{\text{к}}$ 412 χ 0,492	$r_{\text{н}}$ 413 n 1,582	$r_{\text{к}}$ 1920 χ 0,003	12,0	17,4	32,2	556
4,2	$r_{\text{н}}$ 30 n 2,275	$r_{\text{к}}$ 98 χ 1,720	$r_{\text{н}}$ 99 n 1,961	$r_{\text{к}}$ 419 χ 0,564	$r_{\text{н}}$ 420 n 1,585	$r_{\text{к}}$ 1540 χ 0,007	9,37	13,2	22,7	517
8,6	$r_{\text{н}}$ 30 n 2,185	$r_{\text{к}}$ 97 χ 1,720	$r_{\text{н}}$ 98 n 1,855	$r_{\text{к}}$ 423 χ 0,681	$r_{\text{н}}$ 424 n 1,582	$r_{\text{к}}$ 1540 χ 0,012	6,91	8,90	13,2	445
12,7	$r_{\text{н}}$ 30 n 2,091	$r_{\text{к}}$ 100 χ 1,700	$r_{\text{н}}$ 101 n 1,866	$r_{\text{к}}$ 445 χ 0,700	$r_{\text{н}}$ 446 n 1,559	$r_{\text{к}}$ 1540 χ 0,014	5,64	6,69	8,71	391
16,9	$r_{\text{н}}$ 30 n 2,073	$r_{\text{к}}$ 109 χ 1,600	$r_{\text{н}}$ 110 n 1,809	$r_{\text{к}}$ 440 χ 0,730	$r_{\text{н}}$ 441 n 1,565	$r_{\text{к}}$ 1140 χ 0,014	4,67	5,21	5,94	342

Так, дымовая смесь содержит одновременно в своем составе как существенно поглощающие видимое излучение частицы ($\chi \sim 0,5 \div 1,9$), так и немалую долю слабо- и умереннопоглощающих частиц ($\chi \sim 0,003 \div 0,014$). Причем влияние сильнопоглощающей сажевой компоненты наиболее значительно проявляется в составе частиц $r < 450$ нм. Следует считать, что на стадии образования смешанного дыма микродисперсная фракция сильнопоглощающих сажевых частиц горения ($\chi \sim 1,6 \div 1,9$, $r \sim 30\text{--}100$ нм) проникает за счет коагуляции в состав более крупных слабопоглощающих пиролизных частиц и формирует дымовую смесь с монотонным убыванием (в 600–700 раз) показателя поглощения χ с ростом размера частиц.

Анализ особенностей временной трансформации оптических постоянных частиц показал, что при выстаивании дымов смешанного состава происходят существенные изменения значений КПП внутри отдельных фракций. Видно, что при старении дыма в течение суток для тонкодисперсной фракции ($r < 100$ нм) значение χ уменьшается в 1,2 раза. Однако для дымовых частиц среднелдисперсного диапазона (100–400 нм) показатель поглощения вещества частиц χ возрастает в 1,5 раза. Для крупнодисперсных частиц (400–1500 нм) значения χ невелики, однако при старении дыма его величина испытывает наиболее сильные относительные изменения, возрастая в 4,7 раза.

Отметим, что полученные значения показателя поглощения вещества микродисперсных дымовых частиц χ превышают значения, приведенные в литературе для сажевых частиц (см., например, [19]). Этот вопрос требует проведения дополнительных исследований и пока является дискуссионным. У авторов не вызывают сомнения полученные

оценки оптических постоянных частиц, однако не исключено, что завышенная оценка обусловлена методическими неопределенностями. Так, отметим, что сильнопоглощающие микродисперсные частицы обладают низкой оптической активностью в светорассеянии. Это, вероятно, при решении обратной задачи на основе характеристик светорассеяния может приводить к неопределенности в определении значений χ .

Не исключено, что привлечение дополнительно для измерений других методов, более чувствительных к характеристикам тонкодисперсных частиц, например диффузионных счетчиков, измеряющих распределения микродисперсных частиц по размерам, позволит повысить информативность эксперимента и объяснить возникшую неопределенность.

По результатам решения обратной задачи с учетом полученных пофракционных значений КПП для смешанного дыма (см. таблицу) были определены распределения по размерам геометрического сечения частиц dS/dr , представленные на рис. 4.

В целом распределения по размерам характеризуются трехмодальной структурой частиц. Динамика интегральных аэрозольных концентраций и среднеэффективного размера частиц при выстаивании дыма проявляется в уменьшении этих параметров. Максимальное уменьшение наблюдается для суммарного объема частиц V (почти в 5 раз). Это происходит за счет перестройки спектра размеров при коагуляции и возможной гетерогенной конденсации частиц, а также их осаждении на стенки камеры. Отмечена также значительная перестройка формы распределения частиц по размерам (рис. 4), что проявляется в значительном уменьшении концентрации тонкодисперсных частиц при $r < 250$ нм, в формировании максимума среднелдисперсной

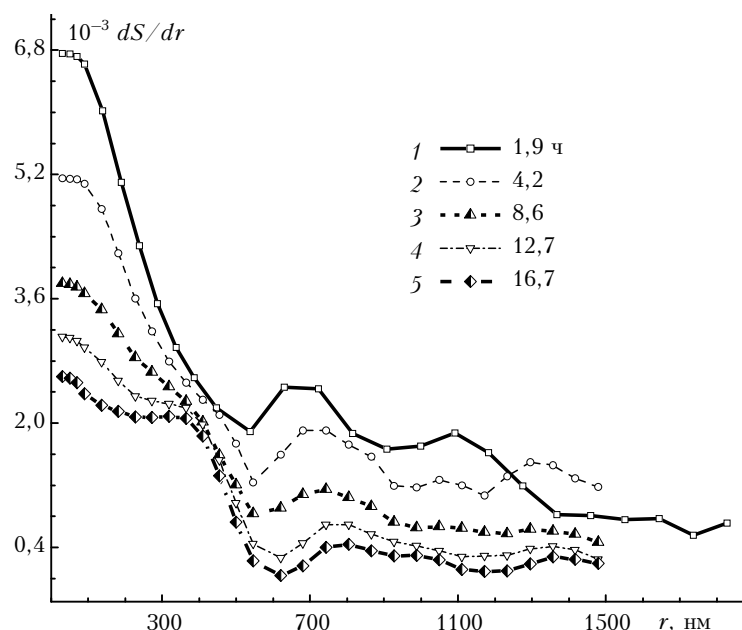


Рис. 4. Распределения геометрического сечения частиц по размерам для смешанного древесного дыма, восстановленные на основе трехфракционной модели распределения КПП по фракциям. Кривые соответствуют пяти указанным в таблице моментам времени

фракции с модой при 400 нм, а также в смещении в сторону больших размеров максимума крупнодисперсных частиц радиуса 700–800 нм. Отметим, что, несмотря на резкое уменьшение концентраций микро- и среднедисперсных частиц, происходит и некоторое уменьшение крупнодисперсности частиц дыма. Это проявляется в убывании значения $r_{эф}$ от 517 до 342 нм.

Установленные особенности временной динамики значений КПП для различных фракций (см. таблицу) и трансформации распределения по размерам dS/dr (см. рис. 4) служат убедительным основанием для вывода об активной миграции микродисперсных сажевых частиц по всему спектру размеров и их проникновении в состав средне- и крупнодисперсных частиц на стадии старения смешанного дыма.

Нами также были выполнены специальные численные эксперименты, основной целью которых являлось изучение необходимости (при старении смешанного дыма) использовать для определения распределения частиц по размерам только соответствующие оцененные значения КПП для каждой фракции частиц. Действительно, возникает вопрос: нельзя ли для определения с приемлемой точностью дисперсного состава частиц при старении дыма выбрать некоторые неизменные во времени значения КПП для каждой из трех фракций и использовать их для полного временного периода измерений? Без сомнения, такая возможность упростила бы решение обратной задачи при изучении старения смешанных дымов лесных пожаров.

Такие оценки нами были проведены. В качестве «точных» решений обратной задачи будем рассматривать восстановленные «точные» спектры размеров, приведенные на рис. 4, для получения которых были использованы соответствующие выбранным моментам времени значения КПП фракций из таблицы.

Суть численного эксперимента состояла в том, что по данным таблицы последовательно фиксировались, в качестве постоянных при старении дыма, каждые из приведенных для 5 моментов времени значения КПП трех фракций, и для них решалась обратная задача по определению «модельных» распределений частиц по размерам для всех временных моментов. Затем для каждого момента времени проводилось сравнение полученных модельных распределений частиц по размерам с «точными» решениями.

При численном моделировании на рис. 5–7 рассмотрены моменты времени $t = 1,9$; 8,6 и 16,7 ч соответственно. На рис. 5 приведены результаты определения спектров размеров, когда в качестве «точного» решения использовались значения КПП фракций, соответствующие начальному моменту времени $t = 1,9$ ч (кривая 1). Сравнение кривых 3 ($t = 8,6$ ч) и 5 ($t = 16,7$ ч) с кривой 1 показывает, что «модельные» спектры размеров существенно отличаются от «точного» спектра (см. рис. 4). В основном различия проявляются в интервалах размеров микро- и крупнодисперсной фракций частиц.

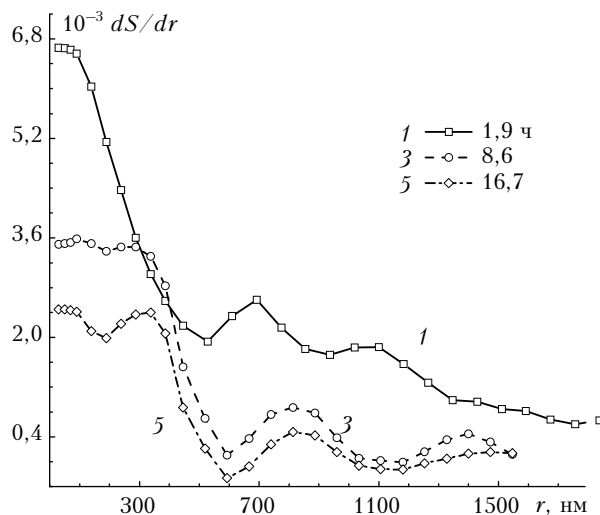


Рис. 5. Распределения геометрического сечения частиц по размерам для смешанного древесного дыма, восстановленные на основе трехфракционной модели при значениях КПП, соответствующих начальному моменту времени $t = 1,9$ ч. Нумерация кривых соответствует рис. 4

На рис. 6 в качестве «точного» рассмотрен промежуточный момент времени $t = 8,6$ ч (кривая 3).

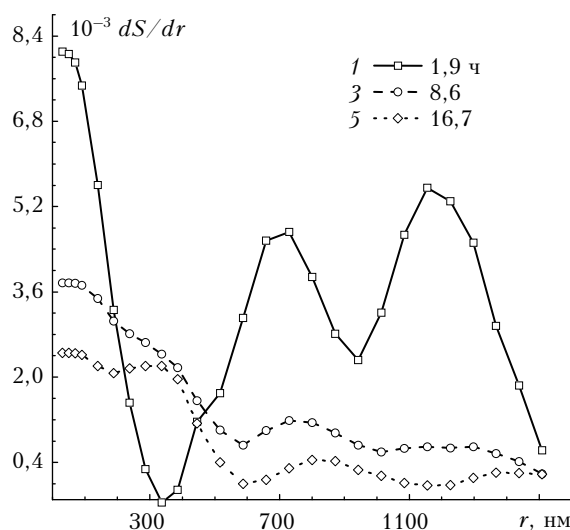


Рис. 6. Распределения геометрического сечения частиц по размерам для смешанного древесного дыма, восстановленные на основе трехфракционной модели при значениях КПП, соответствующих среднему моменту времени $t = 8,6$ ч. Нумерация кривых соответствует рис. 4

Из приведенных данных следует, что использование значения КПП, отличного от «точного» значения, ведет к искажению «модельных» распределений на всех интервалах дисперсности. Так, спектр размеров, восстановленный для $t = 1,9$ ч (кривая 1), кардинально отличается от «точного» распределения частиц. В нем существенно выше содержание частиц каждой из трех фракций и, кроме того, распределение становится неустойчивым с ростом радиуса частиц.

Отличия «модельных» спектров размеров от «точного» спектра наиболее значительны, если при

решении обратной задачи «точным» взято значение КПП, соответствующее поздней стадии существования смешанного дыма $t = 16,7$ ч (см. рис. 7).

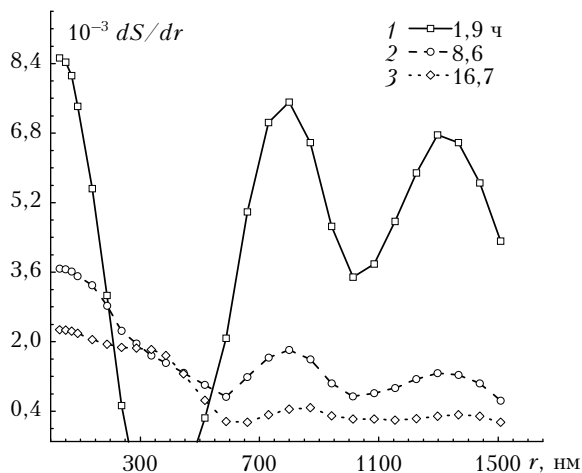


Рис. 7. Распределения геометрического сечения частиц по размерам для смешанного древесного дыма, восстановленные на основе трехфракционной модели при значениях КПП, соответствующих конечному моменту времени $t = 16,7$ ч. Нумерация кривых соответствует рис. 4

Таким образом, результаты численного эксперимента убедительно показали, что при решении обратной задачи в ходе временной динамики смешанных дымов необходимо использовать только строго оцененные для каждого момента времени значения КПП. Попытка использовать средние и иные фиксированные значения КПП приводит к существенным искажениям восстановленных распределений частиц по размерам и, как следствие, к росту невязки между измеренными и восстановленными значениями коэффициента аэрозольного рассеяния. Оценки показали, что в этом случае относительная невязка может возрастать в несколько раз по сравнению с невязкой для «точных» оценок, которая в приближении трехфракционной модели КПП составляла около 6–10%.

Результаты, представленные в статье, и данные других авторов [20, 21] свидетельствуют о важной роли дымов лесных пожаров в динамике оптических свойств атмосферного воздуха в общем и в поступлении сажи в атмосферу в частности. Отметим, что сажа, являясь важным аэрозольным компонентом, определяет поглощающие свойства атмосферного аэрозоля в коротковолновом диапазоне длин волн и вариации такой радиационно-значимой характеристики, как альbedo однократного аэрозольного рассеяния, используемой при оценке аэрозольного радиационного форсинга. Результаты выполненных исследований показали, что основным генератором поступления сажи в атмосферу при лесных пожарах являются процессы пламенного высокотемпературного горения древесины и других лесных горючих материалов.

Следует также отметить, что полученные нами результаты исследований смешанных дымов при

сгорании биомассы находятся в качественном согласии с данными импакторных измерений массовых концентраций аэрозоля и сажи в приземном атмосферном аэрозоле в диапазоне диаметров частиц $10\text{--}10^4$ нм в г. Вена в 2001 г. [22].

По данным указанных импакторных измерений нам удалось установить, что относительное содержание сажи в аэрозоле, пропорциональное в приближении присутствия сажи в частицах в качестве внутренней смеси показателю поглощения вещества частиц χ , монотонно уменьшается с ростом размера частиц и эта зависимость удовлетворительно описывается экспоненциальной функцией [23]. Этот вывод свидетельствует о том, что поглощающая способность аэрозольных частиц в атмосферном аэрозоле непостоянна по спектру размеров и уменьшается с укрупнением частиц, что согласуется с результатами, представленными в настоящей статье.

Действительно, в смешанных дымах лесных пожаров, как показано нами, реализуется близкая картина распределения сажи по спектру размеров. Отмеченный факт дает основания полагать, что поглощающие свойства атмосферного аэрозоля во многом формируются в ходе физико-химических процессов, близких по своему характеру процессам, протекающим в смешанных дымах лесных пожаров при сгорании биомассы. При этом сажа, генерируемая совокупностью природных и антропогенных процессов высокотемпературного горения углеводородных материалов (биомасса, топлива и т.п.), мигрирует из микродисперсного диапазона частиц и неоднородно распределяется по всему спектру размеров.

Заключение

Итак, нами выявлены основные особенности изменения КПП для каждой фракции частиц при выстаивании смешанного дыма. Установлено, что при старении дыма в течение суток для микродисперсной фракции значение χ уменьшается в 1,2 раза, однако для средне- и крупнодисперсной фракций оно возрастает в 1,5 и в 4,7 раза соответственно. Такой характер изменения КПП свидетельствует о том, что долговременная динамика микрофизического состава дыма в значительной степени обусловлена действием коагуляционного механизма перераспределения сажи по размерам за счет проникновения микродисперсной сажи в более крупные частицы. Сильная относительная временная изменчивость поглощения крупнодисперсными частицами связана с тем, что начальные значения показателя поглощения таких частиц невелики по абсолютной величине и равны примерно 0,003.

Результаты численного эксперимента показали, что при решении обратной задачи для корректного определения распределений частиц по размерам на различных стадиях старения дыма необходимо использовать значения КПП трех фракций частиц, строго соответствующие определенному моменту времени, для которого выполняются оценки. В этом

случае достигается приемлемая величина относительной невязки между измеренными и восстановленными значениями оптических характеристик, составляющая 6–10%. Попытки использования для решения обратной задачи некоторых неизменных при старении дыма значений КПП для каждой фракции (средних и др.) приводят лишь к ухудшению точности решения. В этом случае, т.е. без учета динамики КПП во времени, значения относительной невязки возрастают в 2–3 раза.

Результаты проведенных экспериментов для смешанных дымов лесных пожаров дополнительно подтвердили ранее сделанный авторами вывод о том, что на начальной стадии формирования дыма образуется неоднородная дисперсная смесь с сильным изменением КПП по трем дисперсным фракциям, что следует объяснять протеканием процесса интенсивной коагуляции тонкодисперсной сажи с более крупными частицами.

С помощью модельного аэрозоля с известным значением КПП (этиленгликоль) проведено экспериментальное тестирование, которое позволило проверить в совокупности не только методику обращения в приближении трехфракционной модели КПП, но и качество измерений коэффициента направленного аэрозольного рассеяния спектрофелометром, в том числе калибровку прибора. Полученная по результатам тестирования оценка КПП для среднедисперсной фракции частиц, дающей основной вклад в измеряемые оптические характеристики, близка к известному значению для этиленгликоля. Из этого следуют выводы об адекватности результатов, получаемых с помощью развитой методики обращения; о хорошем качестве измеряемых спектрально-угловых характеристик, используемых в качестве исходных данных для решения обратной задачи. Оценки с тестовым аэрозолем показали, что использование трехфракционной модели КПП позволяет уменьшить относительную невязку восстановленных и измеренных оптических характеристик по сравнению с однофракционным приближением решения обратной задачи почти вдвое – от 10–12 до 4–7%.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант № 09-05-00064).

1. Кондратьев К.Я., Григорьев А.А. Лесные пожары как компонент природной экодинамики // Оптика атмосфер. и океана. 2004. Т. 17, № 4. С. 279–290.
2. Kozlov V.S., Panchenko M.V., Yausheva E.P. Mass fraction of Black Carbon in submicron aerosol as an indicator of influence of smokes from remote forest fires in Siberia // Atmos. Environ. 2008. V. 42, N 11. P. 2611–2620.
3. Горчаков Г.И., Семутникова Е.Г., Исаков А.А., Копейкин В.М., Колесникова А.Б., Лезина Е.А., Пономарева Т.Я., Байкова Е.С., Задорожная О.С., Соколов А.В. Аэрозольное и газовое загрязнение задымленной атмосферы Московского региона летом 2010 г. // XVII Рабочая группа «Аэрозоли Сибири»: Тезисы докл. 2010. С. 69–70.
4. Козлов В.С., Панченко М.В., Тумаков А.Г. Влияние режимов горения углеводородных топлив на оптические свойства дымовых аэрозолей // Оптика атмосфер. и океана. 1993. Т. 6, № 10. С. 1278–1288.
5. Kozlov V.S., Panchenko M.V. Investigation of optical characteristics and particle-size distribution of wood-smoke aerosols // Combust. Expl. Shock Waves. 1996. V. 32, N 5. P. 577–588.
6. Рахимов Р.Ф., Козлов В.С., Макиенко Э.В., Шмаргунов В.П. Оптико-микрофизические свойства пиролизных дымов по данным поляризационной спектрофелометрии // Оптика атмосфер. и океана. 2002. Т. 15, № 4. С. 328–336.
7. Рахимов Р.Ф., Козлов В.С., Макиенко Э.В. Некоторые особенности формирования дисперсной структуры дымовых аэрозолей при термическом разложении хвойной древесины. 1. Вариации массы сжигаемых образцов // Оптика атмосфер. и океана. 2008. Т. 21, № 3. С. 218–222.
8. Рахимов Р.Ф., Макиенко Э.В., Козлов В.С. Некоторые особенности формирования дисперсной структуры дымовых аэрозолей при термическом разложении хвойной древесины. 2. Вариации температуры // Оптика атмосфер. и океана. 2008. Т. 21, № 4. С. 288–293.
9. Рахимов Р.Ф., Макиенко Э.В., Козлов В.С. Некоторые особенности формирования дисперсной структуры дымовых аэрозолей при термическом разложении хвойной древесины. 3. Дожигание неразложившихся остатков // Оптика атмосфер. и океана. 2008. Т. 21, № 5. С. 386–392.
10. Козлов В.С., Панченко М.В., Шмаргунов В.П., Рахимов Р.Ф. Влияние режима горения на изменчивость концентраций субмикронного аэрозоля и сажи в древесных дымах в аэрозольной камере большого объема // Изв. вузов. Физ. 2009. № 2/2. С. 128–132.
11. Рахимов Р.Ф., Макиенко Э.В. Некоторые методические дополнения к решению обратной задачи для восстановления параметров дисперсной структуры дымов смешанного состава // Оптика атмосфер. и океана. 2010. Т. 23, № 3. С. 183–190.
12. Рахимов Р.Ф., Макиенко Э.В., Шмаргунов В.П. Вариации оптических постоянных и спектра размеров дымовых аэрозолей, образованных при термическом разложении разносортных древесных материалов // Оптика атмосфер. и океана. 2010. Т. 23, № 4. С. 248–258.
13. Рахимов Р.Ф., Макиенко Э.В., Козлов В.С. Влияние коры древесных материалов на оптико-микрофизические свойства пиролизных дымов // Оптика атмосфер. и океана. 2010. Т. 23, № 5. С. 412–418.
14. Рахимов Р.Ф., Макиенко Э.В., Панченко М.В. Оптико-микрофизические свойства смешанных дымов от нескольких разнесенных источников // Оптика атмосфер. и океана. 2010. Т. 23, № 8. С. 675–684.
15. Зуев В.Е., Наац И.Э. Обратные задачи лазерного зондирования атмосферы. Новосибирск: Наука, 1982. 195 с.
16. Веретенников В.В. Интерпретация модели спектрального ослабления дымки морского прибрежного района // Оптика атмосфер. 1990. Т. 3, № 10. С. 1026–1033.
17. Тихонов А.Н., Арсенин В.Я. Методы решения некорректных обратных задач. М.: Наука, 1974. 224 с.
18. Макиенко Э.В., Наац Э.В. Обратные задачи аэрозольного светорассеяния применительно к лазерной локализации атмосферных загрязнений приземного слоя // Проблемы дистанционного зондирования атмосферы. Томск. Изд-е ИОА СО АН СССР, 1976. С. 42–51.

19. *Bond T.C., Bergstrom R.W.* Light absorption by carbonaceous particles: an investigative review // *Aer. Sci. and Technol.* 2006. V. 40, N 1. P. 27–67.
20. *Сакерин С.М., Веретенников В.В., Журавлева Т.Б., Кабанов Д.М., Насртдинов И.М.* Сравнительный анализ радиационных характеристик аэрозоля в ситуациях дымов пожаров и обычных условиях // *Оптика атмосфер. и океана.* 2010. Т. 23, № 6. С. 451–461.
21. *Самсонов Ю.Н., Беленко О.А., Иванов В.А.* Дисперсные и морфологические характеристики дымовой аэрозольной эмиссии от пожаров в бореальных лесах Сибири // *Оптика атмосфер. и океана.* 2010. Т. 23, № 6. С. 423–431.
22. *Hitzenberger R., Tohno S.* Comparison of black carbon (BC) aerosols in two urban areas – concentrations and size distributions // *Atmos. Environ.* 2001. V. 35. P. 2153–2167.
23. *Козлов В.С., Тертузова С.А., Панченко М.В., Якушева Е.П., Докукина Т.А.* Корреляционные оценки распределения сажи по размерам в приземном аэрозоле в Западной Сибири // *Аэрозоли Сибири. XVI Рабочая группа: Тезисы докл. Томск: Изд-е ИОА СО РАН, 2009. С. 6.*

R.F. Rakhimov, V.S. Kozlov, V.P. Shmargunov. **On temporal dynamics of the complex refractive index and microstructure of particles according to the spectral nephelometric measurements in mixed smokes.**

The features of dynamics of the complex refractive index (CRI) for three particle fractions during two days aging of the mixed wood smoke were studied. Smokes were generated due to simultaneous emissions of particles from the two sources in the regimes of pyrolysis and flaming combustion. At the initial stage the imaginary refractive index of the particles χ decreases of about 600 times with transition from micro- to coarse-dispersed particles. In the long-term aging of smoke (1–2 days) χ decreases for micro-dispersed soot particles (by 1.2 times), but is increased for middle- and coarse-dispersed particles by 1.5 and 4.7 times, respectively. This means that the microphysical dynamics of mixed smokes at all stages of its existence is determined by the penetration of soot from the ultra-fine size range to the region of larger particle sizes due to coagulation.

Numerical experiment has shown that for correct solution of the inverse problem during the aging of mixed smokes one must use only CRI values corresponding exactly to each fixed time moment. Attempts to solve the inverse problem using some constant CRI values over all time period lead to an increase of the discrepancy between the measured and the reconstructed optical characteristics by about several times with respect to the residual of about 6–10% corresponding to the true values of CRI.

Verification of the 3-fractional approach to solution of the inverse problem was carried out by using dispersed aerosol with a known CRI value (ethylene glycol). This testing showed that the technique developed provides the accurate reconstruction of the value of CRI for the main optically active fraction of middle-dispersed particles. Use of the 3-fractional method has allowed one to reduce the inverse problem residuals on average by a half compared to the traditional 1-fractional method for homogeneous particles.