

ОПТИКА КЛАСТЕРОВ, АЭРОЗОЛЕЙ И ГИДРОЗОЛЕЙ

УДК 551.510.42

**Оптические и микрофизические свойства  
пиролизного дыма по данным измерений  
4-волновым поляризационным спектрофелометром**

**Р.Ф. Рахимов, В.С. Козлов, А.Г. Тумаков, В.П. Шмаргунов\***

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

Поступила в редакцию 23.05.2013 г.

По данным поляризационных спектрофелометрических измерений изучена динамика оптико-микрофизических свойств пиролизного дыма при его 3-суточном выстаивании в Большой аэрозольной камере ИОА СО РАН (1800 м<sup>3</sup>). Дым формировался при низкотемпературном (~ 400 °С) разложении хвойных сортов древесины. На основе решения обратной задачи исследованы особенности динамики дисперсного состава и комплексного показателя преломления частиц.

Ключевым отличием микрофизики пиролизных дымов от смешанных режимов сгорания лесной биомассы является низкое содержание сильнопоглощающих соединений (сажи) в частицах микродисперсной фракции (радиусами < 150 нм). Этот факт приводит к тому, что дымы являются слабопоглощающими, и значения альбедо однократного рассеяния плотного пиролизного дыма в видимой области спектра (~ 525 нм) на стадии дымообразования близки к единице, уменьшаясь при 3-суточном выстаивании лишь до ~ 0,96.

В распределениях объема частиц по размерам формируются среднелдисперсная ~ 400 нм и крупнодисперсная ~ 850 нм фракции. При старении дыма обе моды сдвигаются в область малых размеров, и для выстоявшегося дыма основной в спектре размеров становится среднелдисперсная фракция. Пиролизный дым, в отличие от смешанных дымов, характеризуется широким спектром размеров – до радиусов около 1500 нм. Вследствие этого при дымообразовании эффективный радиус пиролизных частиц (~ 400 нм) более чем в 2 раза превышает соответствующий смешанным дымам. При старении дыма эффективный радиус уменьшается от 400 до 170 нм.

Получены устойчивые корреляционные связи объемных коэффициентов локационного рассеяния и ослабления, альбедо и эффективного радиуса частиц, выступающие в пользу применимости для пиролизного дыма однопараметрической модели субмикронного аэрозоля.

*Ключевые слова:* пиролизный дым, поляризационная спектрофелометрия, обратная задача, распределение частиц по размерам, комплексный показатель преломления; pyrolysis smoke, polarization spectrophelometry, inverse problem, particle's size distribution, complex index of refraction.

### Введение

Возрастающий интерес к изучению последствий эмиссии продуктов термического разложения лесных горючих материалов (ЛГМ) [1–5] обусловлен их сильным воздействием на радиационные потоки в системе «атмосфера – подстилающая поверхность» [6–8]. Проблема весьма актуальна в связи с расширением площадей лесных возгораний в бореальной климатической зоне. Горение лесных биомасс является основным природным источником поступления в воздух большой массы аэрозоля, содержащего сильнопоглощающий элементный углерод (ЕС, Black Carbon – ВС, сажа) и рассеивающий органический углерод, генерируемые в зонах высокотемпературного

пламенного горения ЛГМ (фронты) и низкотемпературного пиролиза (тления) [2, 4, 5, 9].

Неоднородность состава дымов существенно затрудняет оценку оптических характеристик, в том числе такого важного климатообразующего фактора, как альбедо однократного аэрозольного рассеяния (АОР).

Результаты дымовых экспериментов в Большой аэрозольной камере (БАК) ИОА СО РАН [10–14] показали, что методы поляризационной спектрофелометрии являются высокоинформативным средством для изучения оптико-микрофизических свойств дымов в диапазоне радиусов частиц до 1800 нм и позволяют определять как спектр размеров частиц, так и их комплексный показатель преломления (КПП). В дымовых экспериментах с использованием БАК [2, 4, 5, 9] был исследован ряд особенностей формирования и развития разнородных дисперсных смесей, формируемых из продуктов термического разложения ЛГМ.

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

Настоящая статья является методологическим продолжением отмеченного цикла исследований. В ней с использованием повышенной чувствительности поляризационного спектрофелометра APSN-02 [15] изучается изменение оптико-микрофизических характеристик дыма в ходе его длительной эволюции. Для пиролизного дыма, генерируемого в БАК при низкотемпературном разложении древесины, получены 3-суточные временные ряды спектральных коэффициентов направленного аэрозольного рассеяния  $\beta_s(t)$ . Данные спектрофелометрических измерений использованы для решения обратной задачи и изучения временной динамики распределений дымовых частиц по размерам и значений КПП на различных интервалах шкалы размеров.

Численная экстраполяция микрофизической информации на широкий круг оптических характеристик, выполненная на основе расчетов по теории Ми, позволила исследовать динамику таких радиационно-значимых характеристик, как АОП и коэффициент аэрозольного ослабления, а также рассмотреть корреляционные связи параметров, используемых при решении уравнения лазерной локации [16–19].

## Результаты измерений

Были проанализированы данные эксперимента, в ходе которого дымовой аэрозоль генерировался при термическом разложении ЛГМ в режиме пиролиза в муфельной печи, установленной внутри БАК. Дымовая смесь формировалась из продуктов низкотемпературного пиролиза  $T \sim 400^\circ\text{C}$  хвойных сортов древесины массой  $M = 400$  г.

При термическом разложении древесины в режиме смешанного горения, как известно [10, 12–14], дымовая смесь аэрозольных частиц формируется с доминантой микродисперсной поглощающей фракции. В противоположность этому в режиме пиролиза [11]

в составе дымовой смеси в основном доминируют умереннопоглощающие аэрозольные частицы с характерным размером в области среднелдисперсной фракции ( $r \sim 300\text{--}400$  нм) и относительно малым содержанием микродисперсной поглощающей компоненты.

На рис. 1 представлена временная динамика перпендикулярно поляризованной компоненты коэффициента направленного рассеяния  $\beta_s(\theta = 15^\circ)$  для четырех длин волн. Продолжительность выставления пиролизного дыма в БАК составила более 3 сут ( $t \sim 93$  ч). Нефелометрические измерения продолжались и на стадии откачки дыма из аэрозольной камеры (вентиляции) при  $t \sim 93\text{--}115$  ч. Наблюдаемая нерегулярность изменения временных рядов  $\beta(\lambda_i, \theta_j)$  при удалении дыма из камеры обусловлена различием использованных режимов вентиляции: а) выброса дыма из БАК (93–106 ч), б) наддува камеры внешним атмосферным воздухом (106–115 ч).

При решении обратной задачи по данным спектрофелометрических измерений получена подробная информация о временной изменчивости оптико-микрофизических характеристик пиролизного дыма и аэрозольной смеси при замене дыма атмосферным воздухом. Полученные характеристики дыма и аэрозольной смеси приведены в таблице.

Построчно данные характеризуют временную изменчивость оцениваемых характеристик (время указано во второй колонке). Первая колонка соответствует условному номеру выбранной для обращения временной реализации (точки измерения). В 3–5-й колонках приведены для трех интервалов дисперсности значения КПП частиц  $m = n - i\alpha$  (где  $n$  – действительная, а  $\alpha$  – мнимая части) и указаны границы интервалов дисперсности. В 6–8-й колонках даны значения интегральных характеристик:  $N$  – полной счетной концентрации дымовых частиц, суммарного сечения  $S$  и объема  $V$ . В 9-й колонке приведен оцениваемый по  $V$  и  $S$  эффективный радиус частиц  $r_{\text{эф}}$ .

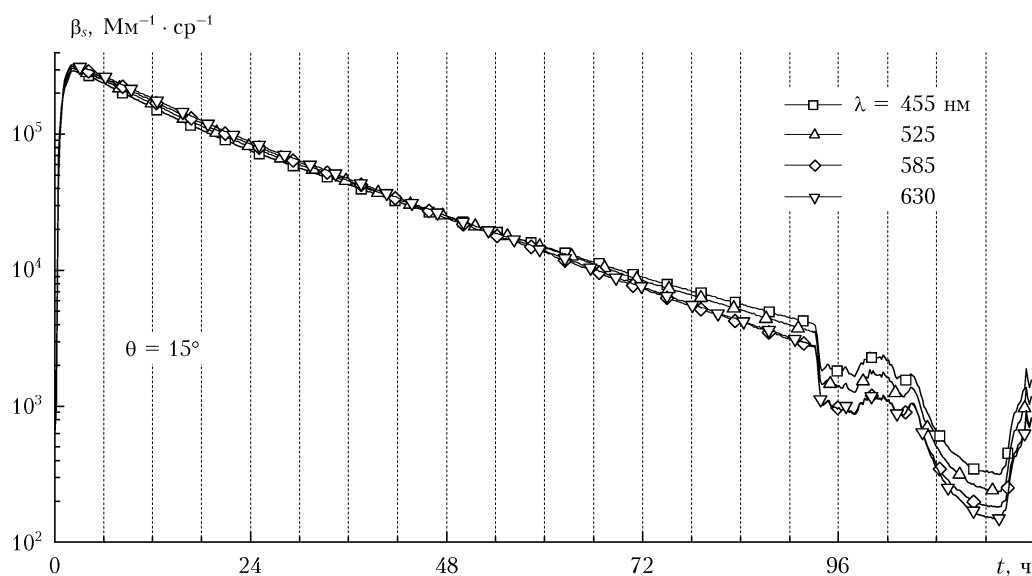


Рис. 1. Временная динамика перпендикулярно поляризованной компоненты коэффициента направленного рассеяния  $\beta_s(\lambda_i, \theta = 15^\circ)$  на четырех длинах волн для пиролизного дыма

**Таблица пофракционного изменения КПИ дымовых частиц и других параметров пиролизного дыма во времени (01.03.2012)**

№ точки	t, ч	I интервал, нм (микро-)		II интервал, нм (средне-)		III интервал, нм (крупно-)		$N \cdot 10^{-3}, \text{см}^{-3}$	$S \cdot 10^{-3}, \text{мкм}^2 \cdot \text{см}^{-3}$	$V \cdot 10^{-2}, \text{мкм}^3 \cdot \text{см}^{-3}$	$r_{\text{эф}}, \text{нм}$	$\beta_c \cdot 10^{-3}, \text{Мм}^{-1}$	$\beta_k \cdot 10^{-3}, \text{Мм}^{-1}$	$\phi$
		$r_{\text{н}}$	$r_{\text{к}}$	$r_{\text{н}}$	$r_{\text{к}}$	$r_{\text{н}}$	$r_{\text{к}}$							
1	2	3		4		5		6	7	8	9	10	11	12
12	2,1	$r_{\text{н}} = 30$ $n = 1,54$	$r_{\text{к}} = 132$ $\alpha = 75e-5$	$r_{\text{н}} = 132$ $n = 1,54$	$r_{\text{к}} = 1712$ $\alpha = 22e-6$	$r_{\text{н}} = 1712$ $n = 1,54$	$r_{\text{к}} = 1783$ $\alpha = 23e-6$	323	121	164	407	69,9	74,6	0,999
20	3,8	$r_{\text{н}} = 30$ $n = 1,54$	$r_{\text{к}} = 142$ $\alpha = 75e-5$	$r_{\text{н}} = 142$ $n = 1,54$	$r_{\text{к}} = 1200$ $\alpha = 35e-6$	$r_{\text{н}} = 1200$ $n = 1,53$	$r_{\text{к}} = 1778$ $\alpha = 70e-7$	281	111	148	401	65,3	67,2	0,989
36	7,1	$r_{\text{н}} = 30$ $n = 1,56$	$r_{\text{к}} = 132$ $\alpha = 13e-4$	$r_{\text{н}} = 132$ $n = 1,54$	$r_{\text{к}} = 1173$ $\alpha = 40e-5$	$r_{\text{н}} = 1173$ $n = 1,56$	$r_{\text{к}} = 16683$ $\alpha = 40e-5$	265	85,4	108	379	52,5	50,0	0,980
64	12,9	$r_{\text{н}} = 30$ $n = 1,56$	$r_{\text{к}} = 146$ $\alpha = 2e-5$	$r_{\text{н}} = 146$ $n = 1,55$	$r_{\text{к}} = 873$ $\alpha = 12e-4$	$r_{\text{н}} = 873$ $n = 1,57$	$r_{\text{к}} = 1221$ $\alpha = 39e-6$	151	53,8	65,9	368	34,9	30,9	0,982
96	19,6	$r_{\text{н}} = 30$ $n = 1,58$	$r_{\text{к}} = 144$ $\alpha = 75e-6$	$r_{\text{н}} = 144$ $n = 1,55$	$r_{\text{к}} = 723$ $\alpha = 81e-5$	$r_{\text{н}} = 723$ $n = 1,54$	$r_{\text{к}} = 1073$ $\alpha = 23e-6$	117	33,5	38,5	345	22,4	17,8	0,995
160	32,9	$r_{\text{н}} = 30$ $n = 1,58$	$r_{\text{к}} = 147$ $\alpha = 7e-6$	$r_{\text{н}} = 147$ $n = 1,55$	$r_{\text{к}} = 723$ $\alpha = 18e-4$	$r_{\text{н}} = 723$ $n = 1,57$	$r_{\text{к}} = 1007$ $\alpha = 13e-6$	53,6	16,3	16,7	309	11,1	6,76	0,989
224	46,3	$r_{\text{н}} = 30$ $n = 1,56$	$r_{\text{к}} = 206$ $\alpha = 14e-4$	$r_{\text{н}} = 206$ $n = 1,55$	$r_{\text{к}} = 630$ $\alpha = 25e-4$	$r_{\text{н}} = 630$ $n = 1,65$	$r_{\text{к}} = 1052$ $\alpha = 12e-3$	39,9	9,08	9,02	309	5,9	3,15	0,983
296	61,3	$r_{\text{н}} = 30$ $n = 1,58$	$r_{\text{к}} = 286$ $\alpha = 37e-4$	$r_{\text{н}} = 286$ $n = 1,55$	$r_{\text{к}} = 500$ $\alpha = 33e-4$	$r_{\text{н}} = 500$ $n = 1,50$	$r_{\text{к}} = 704$ $\alpha = 47e-4$	26,5	4,65	3,66	236	3,0	1,03	0,981
372	77,1	$r_{\text{н}} = 30$ $n = 1,58$	$r_{\text{к}} = 166$ $\alpha = 63e-4$	$r_{\text{н}} = 166$ $n = 1,58$	$r_{\text{к}} = 473$ $\alpha = 57e-4$	$r_{\text{н}} = 473$ $n = 1,50$	$r_{\text{к}} = 490$ $\alpha = 51e-4$	17,6	2,61	1,75	201	1,54	0,422	0,973
444	92,1	$r_{\text{н}} = 30$ $n = 1,60$	$r_{\text{к}} = 100$ $\alpha = 48e-4$	$r_{\text{н}} = 100$ $n = 1,59$	$r_{\text{к}} = 387$ $\alpha = 90e-4$	$r_{\text{н}} = 387$ $n = 1,52$	$r_{\text{к}} = 491$ $\alpha = 10e-5$	23,7	1,73	0,991	171	0,876	0,200	0,963
448	92,9	$r_{\text{н}} = 30$ $n = 1,59$	$r_{\text{к}} = 106$ $\alpha = 70e-5$	$r_{\text{н}} = 106$ $n = 1,59$	$r_{\text{к}} = 361$ $\alpha = 78e-4$	$r_{\text{н}} = 361$ $n = 1,53$	$r_{\text{к}} = 480$ $\alpha = 51e-5$	26,5	1,70	0,930	164	0,804	0,187	0,969
452	93,8	$r_{\text{н}} = 30$ $n = 1,57$	$r_{\text{к}} = 165$ $\alpha = 23e-4$	$r_{\text{н}} = 165$ $n = 1,59$	$r_{\text{к}} = 331$ $\alpha = 24e-3$	$r_{\text{н}} = 331$ $n = 1,51$	$r_{\text{к}} = 488$ $\alpha = 11e-5$	43,9	1,80	0,648	108	0,416	0,088	0,944
457	94,8	$r_{\text{н}} = 30$ $n = 1,59$	$r_{\text{к}} = 99$ $\alpha = 10e-4$	$r_{\text{н}} = 99$ $n = 1,57$	$r_{\text{к}} = 353$ $\alpha = 29e-3$	$r_{\text{н}} = 353$ $n = 1,47$	$r_{\text{к}} = 473$ $\alpha = 40e-4$	52,2	1,89	0,689	109	0,466	0,096	0,895
471	97,7	$r_{\text{н}} = 30$ $n = 1,57$	$r_{\text{к}} = 150$ $\alpha = 13e-4$	$r_{\text{н}} = 150$ $n = 1,57$	$r_{\text{к}} = 340$ $\alpha = 27e-3$	$r_{\text{н}} = 340$ $n = 1,50$	$r_{\text{к}} = 468$ $\alpha = 8e-4$	50,0	1,99	0,673	102	0,396	0,086	0,933
480	99,6	$r_{\text{н}} = 30$ $n = 1,59$	$r_{\text{к}} = 99$ $\alpha = 11e-4$	$r_{\text{н}} = 99$ $n = 1,57$	$r_{\text{к}} = 333$ $\alpha = 16e-3$	$r_{\text{н}} = 333$ $n = 1,50$	$r_{\text{к}} = 478$ $\alpha = 4e-4$	60,8	2,25	0,820	109	0,548	0,126	0,939
501	104,0	$r_{\text{н}} = 30$ $n = 1,57$	$r_{\text{к}} = 111$ $\alpha = 13e-4$	$r_{\text{н}} = 111$ $n = 1,55$	$r_{\text{к}} = 340$ $\alpha = 20e-3$	$r_{\text{н}} = 340$ $n = 1,59$	$r_{\text{к}} = 468$ $\alpha = 2e-4$	36,4	1,52	0,553	109	0,331	0,110	0,996
506	104,6	$r_{\text{н}} = 30$ $n = 1,90$	$r_{\text{к}} = 86$ $\alpha = 26e-5$	$r_{\text{н}} = 86$ $n = 1,54$	$r_{\text{к}} = 345$ $\alpha = 20e-3$	$r_{\text{н}} = 345$ $n = 1,60$	$r_{\text{к}} = 658$ $\alpha = 51e-5$	27,3	1,48	0,685	138	0,417	0,200	0,918
512	106,3	$r_{\text{н}} = 30$ $n = 1,90$	$r_{\text{к}} = 91$ $\alpha = 26e-5$	$r_{\text{н}} = 91$ $n = 1,56$	$r_{\text{к}} = 347$ $\alpha = 25e-3$	$r_{\text{н}} = 347$ $n = 1,58$	$r_{\text{к}} = 615$ $\alpha = 75e-5$	16,7	0,884	0,374	127	0,256	0,081	0,898
522	108,4	$r_{\text{н}} = 30$ $n = 1,89$	$r_{\text{к}} = 96$ $\alpha = 2e-5$	$r_{\text{н}} = 96$ $n = 1,57$	$r_{\text{к}} = 370$ $\alpha = 29e-3$	$r_{\text{н}} = 370$ $n = 1,54$	$r_{\text{к}} = 575$ $\alpha = 25e-6$	9,36	0,484	0,192	119	0,138	0,031	0,896
556	115,4	$r_{\text{н}} = 30$ $n = 1,83$	$r_{\text{к}} = 103$ $\alpha = 3e-5$	$r_{\text{н}} = 103$ $n = 1,56$	$r_{\text{к}} = 372$ $\alpha = 26-3$	$r_{\text{н}} = 372$ $n = 1,54$	$r_{\text{к}} = 464$ $\alpha = 28e-6$	5,37	0,276	0,106	115	0,076	0,015	0,903
562	116,7	$r_{\text{н}} = 30$ $n = 1,85$	$r_{\text{к}} = 103$ $\alpha = 2e-5$	$r_{\text{н}} = 103$ $n = 1,56$	$r_{\text{к}} = 370$ $\alpha = 13e-3$	$r_{\text{н}} = 370$ $n = 1,50$	$r_{\text{к}} = 492$ $\alpha = 32e-6$	8,17	0,422	0,164	117	0,118	0,027	0,950
566	117,5	$r_{\text{н}} = 30$ $n = 1,77$	$r_{\text{к}} = 98$ $\alpha = 2e-5$	$r_{\text{н}} = 983$ $n = 1,56$	$r_{\text{к}} = 370$ $\alpha = 83e-4$	$r_{\text{н}} = 370$ $n = 1,43$	$r_{\text{к}} = 509$ $\alpha = 32e-6$	15,2	0,759	0,288	114	0,198	0,044	0,967
570	118,6	$r_{\text{н}} = 30$ $n = 1,77$	$r_{\text{к}} = 98$ $\alpha = 2e-5$	$r_{\text{н}} = 98$ $n = 1,57$	$r_{\text{к}} = 370$ $\alpha = 83e-4$	$r_{\text{н}} = 370$ $n = 1,43$	$r_{\text{к}} = 511$ $\alpha = 31e-6$	18,0	0,909	0,346	114	0,240	0,054	0,966

В 10-й и 11-й колонках таблицы указаны рассчитанные по теории Ми объемный коэффициент ослабления  $\beta_e(t)$  и объемный коэффициент обратного рассеяния  $\beta_p(t)$  соответственно. В 12-й колонке даны рассчитанные по значениям объемных коэффициентов рассеяния и ослабления значения альbedo однократного рассеяния  $\omega(t)$  на длине волны 525 нм.

Временной ход коэффициентов аэрозольного рассеяния  $\beta_s(t)$  для угла рассеяния  $15^\circ$  (рис. 1) показывает, что при выстаивании пиролизного дыма в БАК происходит изменение этих величин в зависимости от длины волны. Тенденция возрастания

значений  $\beta_s$  с ростом длины волны  $\lambda_i$  на начальной стадии эволюции дыма сменяется на заключительной стадии на тенденцию уменьшения  $\beta_s$  с ростом длины волны. Отмеченная динамика зависимостей  $\beta_s(\lambda)$  обусловлена особенностями временной изменчивости распределений дымовых частиц по размерам и значений КПП по различным интервалам дисперсности.

Рис. 2 иллюстрирует временной ход значений перпендикулярно поляризованной компоненты  $\beta_s(t)$  на длине волны  $\lambda = 525$  нм для 5 углов рассеяния  $\theta = 15, 45, 110, 135, 165^\circ$  и пяти периодов измерений.

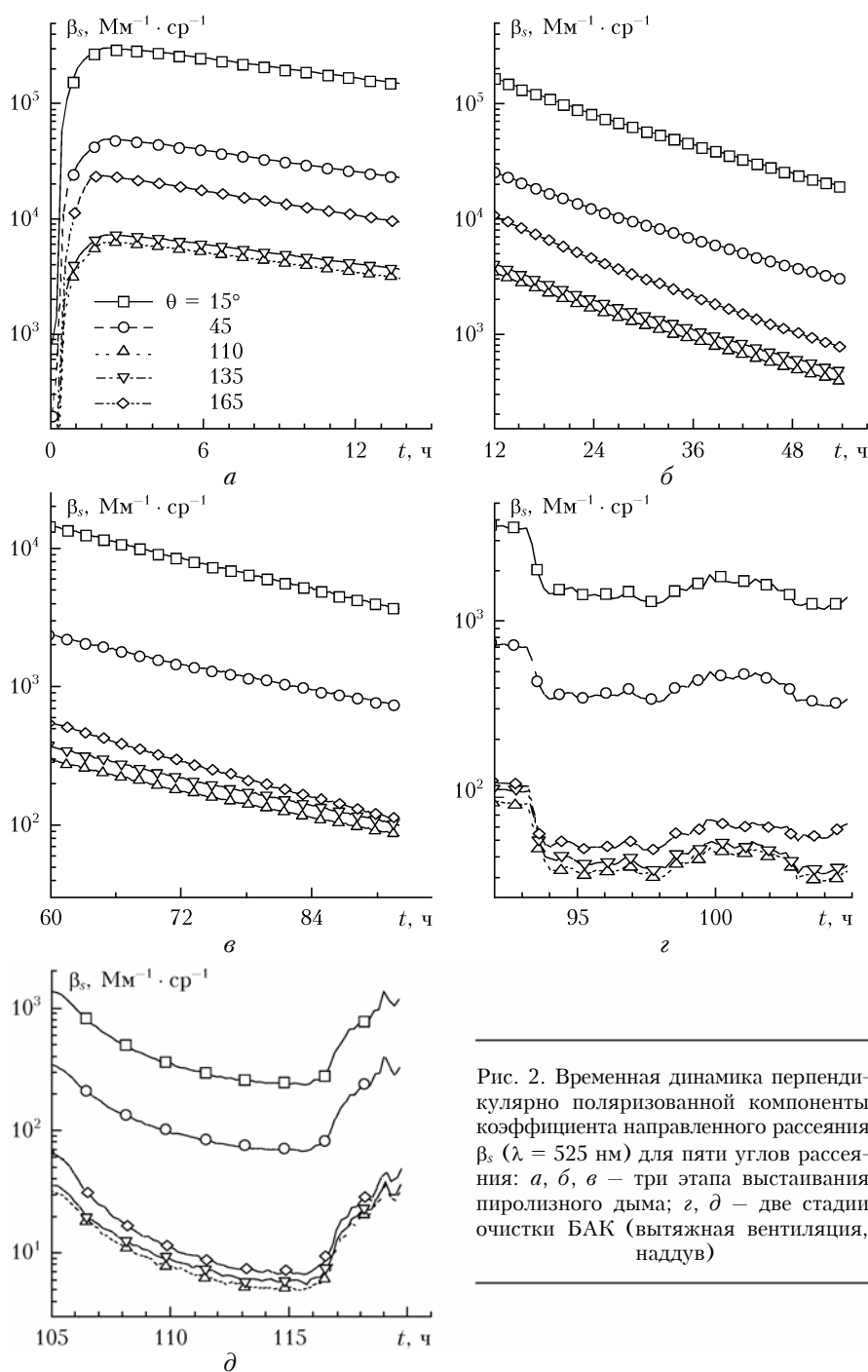


Рис. 2. Временная динамика перпендикулярно поляризованной компоненты коэффициента направленного рассеяния  $\beta_s$  ( $\lambda = 525$  нм) для пяти углов рассеяния: а, б, в — три этапа выстаивания пиролизного дыма; г, д — две стадии очистки БАК (вытяжная вентиляция, наддув)

Как видно, значения  $\beta_s$  сильно варьируют в зависимости от  $\theta$  (в среднем на 2 порядка величины) и обнаруживают разные темпы изменения (наклон характеристик) во времени. Рис. 2, а иллюстрирует временную динамику значений коэффициента направленного рассеяния под разными углами на начальном этапе заполнения БАК дымом. В этом случае для разных углов рассеяния наклоны временных разверток сравнительно близки между собой. Значительная изменчивость  $\beta_s(t)$  проявляется на поздних стадиях эволюции пиролизного дыма (рис. 2, б, в), особенно для  $\theta = 165^\circ$ . Так, например, если при формировании дыма (рис. 2, а) значения  $\beta_s(t, \theta = 165^\circ)$  существенно превышают соответствующие значения для углов  $\theta = 110$  и  $135^\circ$ , то на заключительной стадии (рис. 2, в) эти различия существенно уменьшаются.

Из вышеотмеченного следует, что индикатриса рассеяния пиролизного дыма на начальной стадии имеет значительную вытянутость в направлении локационных углов рассеяния, характеризуемую параметром вытянутости назад — отношением коэффициентов рассеяния под углами  $\theta = 165$  и  $110^\circ$ . Однако на заключительных стадиях параметр вытянутости индикатрисы назад уменьшается. Отметим, что, согласно известным модельным оценкам, повышенная вытянутость индикатрисы в локационных углах является определенным показателем слабого поглощения дымовых частиц, что далее подтверждается для пиролизного дыма результатами решения обратной задачи.

Данные нефелометрических измерений (см. рис. 1) показывают, что процесс очистки БАК от пиролизного дыма, вследствие большого объема камеры ( $\sim 1800 \text{ м}^3$ ), длится достаточно долго —  $t \sim 93\text{--}115$  ч (рис. 2, з, д). Очистка проводилась сначала ( $t \sim 93\text{--}106$  ч) за счет выброса задымленного воздуха из БАК, а затем за счет наддува и прокачки камеры наружным атмосферным воздухом ( $106\text{--}115$  ч). Рис. 2, д показывает, что коэффициент направленного рассеяния при выбросе остатков дыма снижался в 15 раз и максимальный уровень очистки по величине коэффициента ослабления на длине волны 525 нм составил  $76 \text{ Мм}^{-1}$ . Продолжение наддува воздуха в камеру ( $t > 115$  ч) привело к росту величины коэффициента углового рассеяния, что уже определяется изменчивостью содержания аэрозоля в атмосферном воздухе.

## Результаты обращения

Рис. 3 иллюстрирует временную динамику распределений по размерам суммарного сечения и объема дымовых частиц на начальной стадии выстаивания пиролизного дыма непосредственно после достижения максимальной плотности задымления БАК (при  $t \sim 1,15$  ч) продуктами пиролизного разложения древесины. Обращает на себя внимание тот факт, что основную массу дымового аэрозоля, генерируемого в режиме пиролиза, составляют частицы среднедисперсной фракции радиусами  $r \sim 200\text{--}700$  нм, а также крупнодисперсные аэрозольные частицы,  $r$  от  $\sim 900$  до 1500 нм.

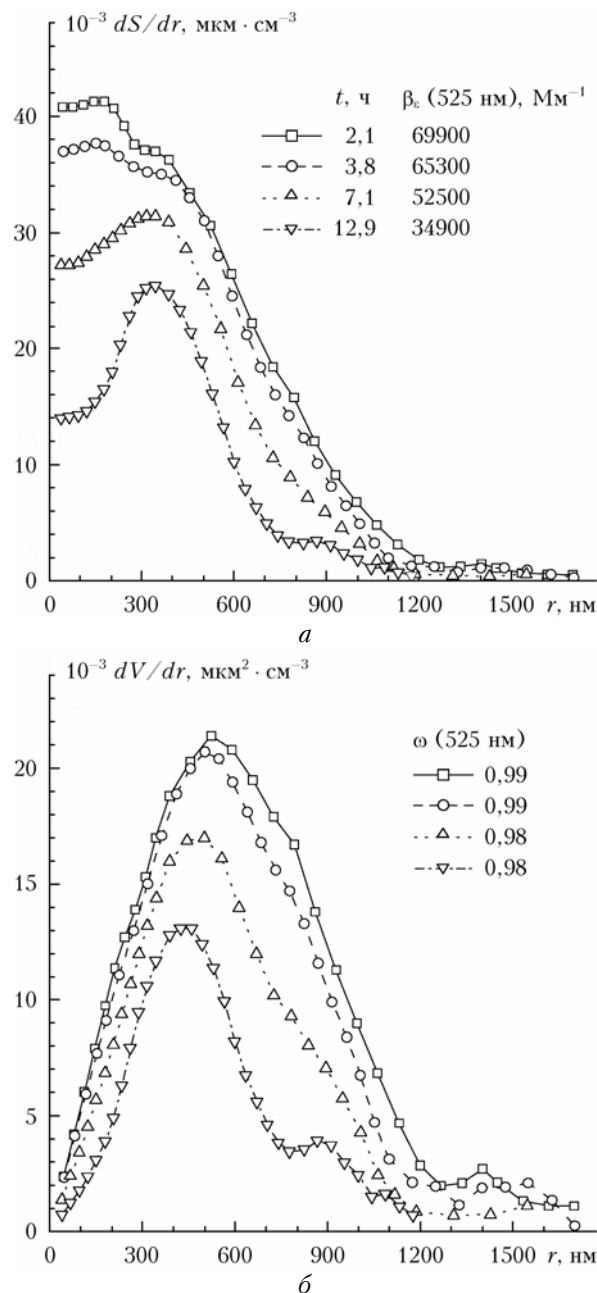


Рис. 3. Распределения по размерам сечения и объема частиц пиролизного дыма. Начальная стадия формирования дыма

По сравнению со смешанными дымами горения [14] объемное содержание частиц микродисперсной фракции  $r < 150$  нм в дымах пиролиза сравнительно невелико (рис. 3, б), причем для них, по данным обращения, характерен достаточно эффективный сток. В результате этого в распределениях  $dS/dr$  и  $dV/dr$  формируются хорошо выраженная среднедисперсная фракция дыма с максимальным  $r_m \sim 400$  нм и повышенное содержание крупнодисперсных частиц  $r_m \sim 850$  нм. Высокое содержание крупнодисперсных частиц в спектре размеров ( $r$  до 1500 нм) является отличительной чертой пиролизных дымов по сравнению со смешанными дымами. Эффективность и специфика стока мелких частиц в пиролизном дыме таковы, что обе

отмеченные моды постепенно сдвигаются в область меньших размеров.

Аналогичные особенности временной трансформации дисперсного состава прослеживаются и на средней стадии выстаивания дыма от 12 до 66 ч (рис. 4). Отметим, что распределение  $dS/dr$  вырождается в одномодальное с  $r_m \sim 300$  нм, тогда как для объема частиц (рис. 4, б) сохраняется двухмодальное распределение по размерам. Если на начальном этапе выстаивания значение объемного коэффициента аэрозольного ослабления  $\beta_e(t)$  на длине волны 525 нм уменьшается вдвое — от  $\sim 69900$  до  $34900$   $\text{Мм}^{-1}$ , то на средней временной стадии на порядок величины — до  $\sim 5900$   $\text{Мм}^{-1}$  (см. таблицу).

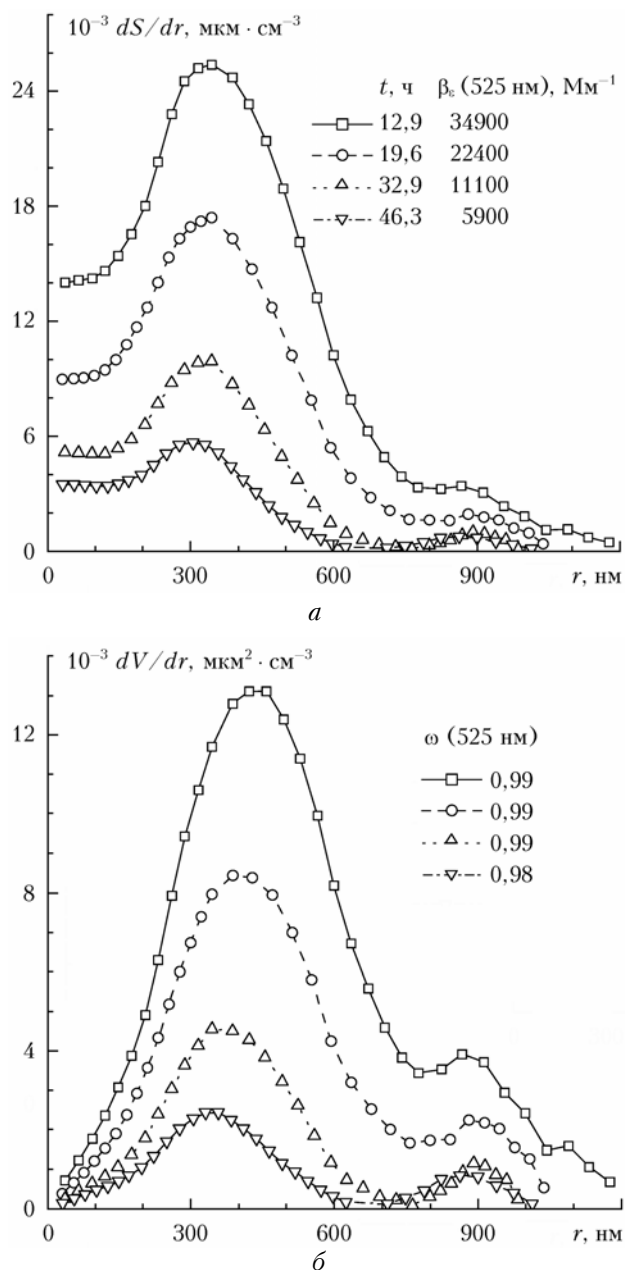


Рис. 4. Распределения по размерам сечения и объема частиц пиролизного дыма. Средняя стадия выстаивания

На заключительном этапе выстаивания дыма — от 65 до 93 ч (рис. 5) — частицы крупнодисперсной фракции ( $r > 600$  нм) в спектре размеров уже не прослеживаются, эффективность стока микродисперсной фракции замедляется и формируется асимметричное относительно основной моды ( $r_m \sim 270$  нм) распределение дымовых частиц по размерам (рис. 5, а). Оптическая плотность пиролизного дыма на этой стадии убывает до  $\beta_e \sim 900$   $\text{Мм}^{-1}$ .

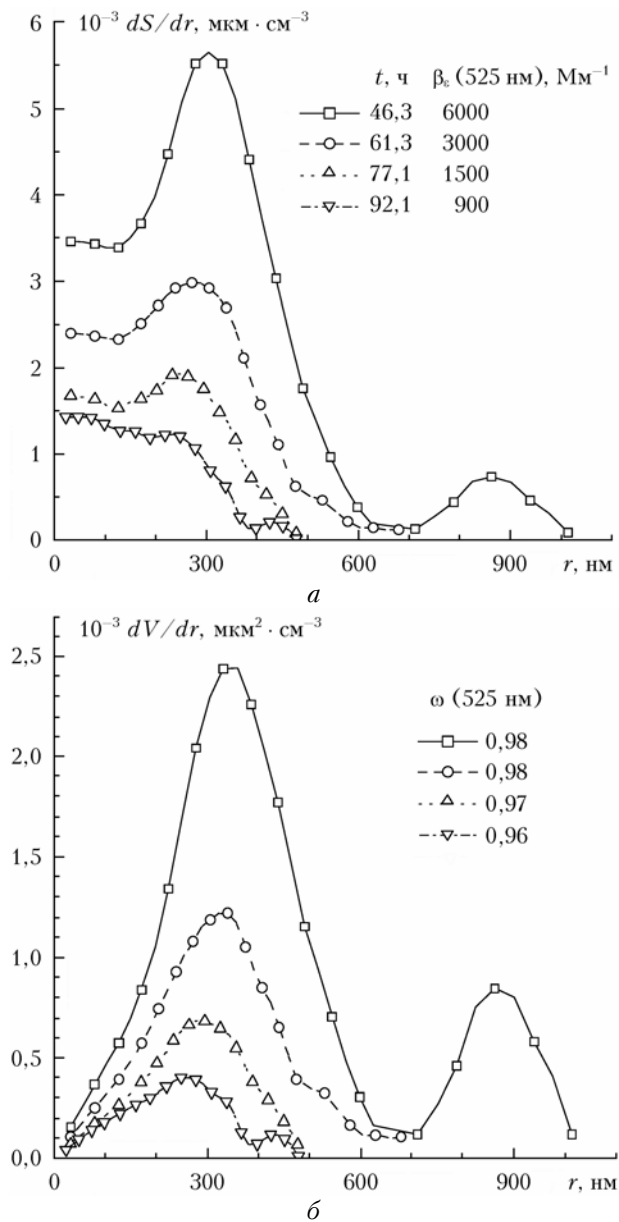


Рис. 5. Распределения по размерам сечения и объема частиц пиролизного дыма. Заключительная стадия выстаивания

Из таблицы следует, что на всех стадиях эволюции пиролизного дыма для всех интервалов дисперсности частицы являются слабопоглощающими —  $\alpha < 0,01$ , а на стадии  $t < 30$  ч значения показателя поглощения частиц  $\alpha$  еще меньше и варьируют в диапазоне  $10^{-5} - 10^{-3}$ . Пределы изменения показателя преломления частиц  $n$  сравнительно невелики — 1,50–1,60,

возрастая при выстаивании дыма для микро- и среднодисперсных частиц. Таким образом, пиролизные дымы состоят из частиц с невысокими, по сравнению с сажей  $m = 1,83 - i \cdot 0,74$  [20], значениями оптических постоянных вещества и, следовательно, характеризуются очень низким относительным содержанием сажи в частицах. Значения мнимой части КПП для частиц дымов пиролиза существенно ниже обычно наблюдаемых  $\omega$  для смешанных дымов [14], особенно для микродисперсной фракции частиц.

Как следствие, значения альbedo однократного рассеяния плотного пиролизного дыма в видимой области спектра  $\omega$  (0,525 нм) на стадии дымообразования очень близки к единице. Важной особенностью для пиролизных дымов является то, что значения альbedo остаются высокими, немного уменьшаясь при выстаивании дыма в течение 3 сут (см. рис. 3–5). Так, для выстоявшегося дыма ( $t \sim 93$  ч) эти значения снижаются лишь до  $\omega \sim 0,96$ .

Рис. 6 иллюстрирует временную динамику интегральных характеристик дисперсного состава дымов. Как видно, при выстаивании пиролизного дыма в течение 93 ч наиболее значительно изменяется суммарный объем пиролизных частиц — на 2 порядка величины, сечение в 70 раз, счетная концентрация частиц в 18 раз. Сопоставление с соответствующими данными [14] показало, что на стадии дымообразования счетная концентрация частиц в пиролизном дыме почти на порядок меньше, чем в смешанных дымах, однако суммарный объем меньше лишь на 20%. На стадии дымообразования эффективный радиус частиц пиролизного дыма составляет  $r_{эф} \sim 407$  нм (рис. 6), превышая более чем в 2 раза соответствующий эффективный радиус частиц смешанных дымов  $r_{эф} \sim 180$  нм [14].

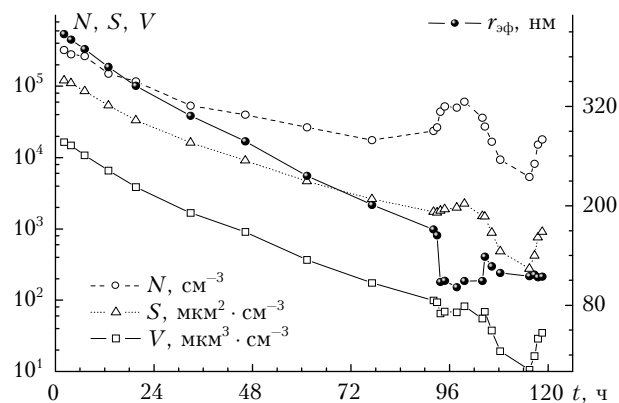


Рис. 6. Временной ход интегральных характеристик пиролизных дымов  $N$ ,  $S$ ,  $V$  и  $r_{эф}$  на стадиях выстаивания дыма и удаления его остатков из БАК

Важной отличительной особенностью пиролизных дымов, по сравнению со смешанными, является качественно иной характер изменения эффективного радиуса дымовых частиц при выстаивании дыма. При «старении» дымов пиролиза  $r_{эф}$  устойчиво уменьшается в 2,4 раза — примерно от 407 до 170 нм (рис. 6). Однако в смешанных дымах при эволюции дыма проявляется обратная тенденция — эф-

фективный радиус частиц возрастает в среднем в 1,5–1,7 раза.

Существенное уменьшение крупнодисперсности пиролизного дыма при выстаивании следует объяснять тем, что определяющую роль во временной динамике дисперсного состава таких дымов играет трансформация среднодисперсной фракции за счет седиментации сравнительно крупных частиц в правой ветви распределения по размерам, тогда как вклад укрупнения за счет коагуляции мелкодисперсных частиц не столь значителен.

Анализ динамики свойств пиролизных дымов (см. рис. 3–6) показал, что в целом спектры размеров частиц весьма динамичны как по форме (изменение пропорций между фракциями), так и по составу (вариации мнимой и действительной частей КПП по интервалам дисперсности). Кроме того, при оценках эффективных значений  $m_{эф}$  варьируют и границы размерных интервалов.

Однако анализ взаимной изменчивости объемных коэффициентов ослабления и обратного рассеяния для полной совокупности данных, включая стадии очистки БАК от остатков дыма ( $N_x = 23$  строки в таблице), показал, что между этими параметрами существует устойчивая корреляционная связь в форме степенной зависимости (рис. 7, а):

$$\beta_{\pi}(\text{Мм}^{-1}) = 0,33\beta_{\epsilon}(\text{Мм}^{-1})^{1,25}. \quad (1)$$

Коэффициент линейной корреляции  $R$  между логарифмами этих характеристик очень высок и составляет 0,99. Отметим, что для периода 3-суточного выстаивания дыма (первые 10 строк в таблице) коэффициент корреляции  $R \sim 1$  и формула (1) принимают следующий вид:

$$\beta_{\pi}(\text{Мм}^{-1}) = 0,25\beta_{\epsilon}(\text{Мм}^{-1})^{1,35}. \quad (2)$$

Тесная линейная корреляционная связь свидетельствует о том, что в пиролизном дыме следует ожидать применимости однопараметрической модели типа разработанной ранее для описания связи оптических и микрофизических характеристик субмикронного аэрозоля приземных дымок [21, 22]. Известно, что корреляционные связи оптических и микрофизических характеристик в рамках этой модели во многом обязаны определяющей роли субмикронной фракции аэрозольных частиц в формировании и трансформации свойств атмосферного аэрозоля.

Взаимосвязь указанных оптических параметров, используемых, как известно, в лидарном уравнении [16–19], можно также представить в форме линейной аппроксимации, используя так называемое лидарное отношение:

$$\beta_{\pi}(\text{Мм}^{-1}) = 0,23\beta_{\epsilon}(\text{Мм}^{-1}) + 16. \quad (3)$$

При 3-суточном выстаивании пиролизного дыма определенная линейная корреляционная связь прослеживается (коэффициент корреляции  $R = 0,80$ ) и между вариациями альbedo однократного рассеяния  $\omega(t)$  и эффективного радиуса дымовых частиц  $r_{эф}(t)$  (рис. 7, б):

$$\omega(t) = 0,12r_{эф}(\text{нм}) + 0,95. \quad (4)$$

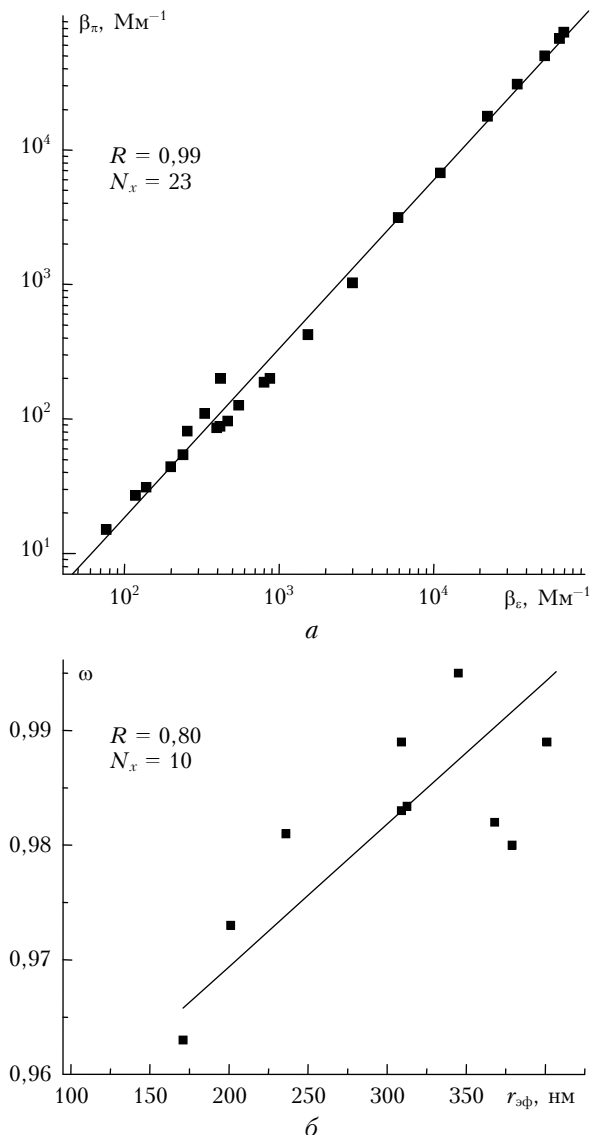


Рис. 7. Диаграммы корреляционной связи оптических и микрофизических характеристик пиролизного дыма: *a* – между  $\beta_s(t)$  и  $\beta_\pi(t)$ ; *б* – между  $\omega(t)$  и  $r_{\text{эф}}(t)$

### Заключение

Ключевое отличие микрофизики пиролизных дымов от дымов открытого горения и смешанных дымов проявляется в низких значениях показателя поглощения частиц по всему спектру размеров и в пониженном содержании микродисперсной компоненты. Эти факторы оказывают определяющее влияние на формирование светорассеивающих свойств и, в первую очередь, на пределы вариаций альbedo однократного рассеяния аэрозоля в видимой области спектра.

В дымах пиролиза по сравнению с дымами горения относительное объемное содержание частиц микродисперсной фракции ( $r < 150$  нм) сравнительно невелико, причем для них характерен достаточно эффективный сток на стенки БАК, в результате которого в распределениях  $dS/dr$  и  $dV/dr$  формиру-

ются две хорошо выраженные моды: среднедисперсная с  $r_1 \sim 400$  нм и крупнодисперсная с  $r_2 \sim 850$  нм. Эффективность и специфика коагуляционно-седиментационного стока дымовых частиц такова, что обе моды при старении дыма постепенно сдвигаются в область малых размеров.

Характерной особенностью дисперсного состава дымов пиролиза является широкий спектр размеров – верхняя граница объемного распределения может достигать радиусов около 1500 нм. Вследствие этого при дымообразовании эффективный радиус пиролизного дыма ( $\sim 400$  нм) более чем в 2 раза превышает соответствующий смешанным дымам ( $r_{\text{эф}} \sim 180$  нм). При старении пиролизного дыма эффективный радиус частиц уменьшается в течение 3 сут от  $\sim 400$  до  $\sim 170$  нм.

Значения альbedo однократного рассеяния для пиролизных дымов в видимой области спектра значительно превышают наблюдаемые для смешанных дымов. Они близки к единице на стадии дымообразования и слабо уменьшаются при старении дыма. Устойчивое содержание в составе пиролизных дымов крупных частиц предопределяет близкий к нейтральному спектральный ход таких оптических характеристик, как объемные коэффициенты ослабления и рассеяния.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант № 12-05-00395).

1. Гришин А.М. Математическое моделирование лесных пожаров и новые способы борьбы с ними. Новосибирск: Наука, 1992. 408 с.
2. Конев Э.В. Физические основы горения растительных материалов. Новосибирск: Наука, 1977. 237 с.
3. Кондратьев К.Я., Григорьев Ал.А. Лесные пожары как компонент природной экодинамики // Оптика атмосф. и океана. 2004. Т. 17, № 4. С. 279–292.
4. Самсонов Ю.Н., Беленко О.А., Иванов В.А. Дисперсные и морфологические характеристики дымовой аэрозольной эмиссии от пожаров в бореальных лесах Сибири // Оптика атмосф. и океана. 2010. Т. 23, № 6. С. 423–431.
5. Kozlov V.S., Panchenko M.V., Yausheva E.P. Mass fraction of Black Carbon in submicron aerosol as an indicator of influence of smokes fires from remote forest fires in Siberia // Atmos. Environ. 2008. V. 42, N 11. P. 2611–2620.
6. Аэрозоль и климат / Под ред. К.Я. Кондратьева. Л.: Гидрометеоздат, 1991. 542 с.
7. Розенберг Г.В. Тонкодисперсный аэрозоль и климат // Изв. АН СССР. Физ. атмосф. и океана. 1982. Т. 18, № 11. С. 92–98.
8. Jacobson M.Z. Strong radiative heating due to the mixing state of black carbon in atmospheric aerosols // Nature (Gr. Brit.). 2001. V. 409. P. 695–697.
9. Bond T.C., Bergstrom R.W. Light absorption by carbonaceous particles: an investigative review // Aerosol Sci. and Technol. 2006. V. 40, N 1. P. 27–67.
10. Рахимов Р.Ф., Макиенко Э.В. Некоторые методические дополнения к решению обратной задачи для восстановления параметров дисперсной структуры дымов смешанного состава // Оптика атмосф. и океана. 2010. Т. 23, № 3. С. 183–190.
11. Рахимов Р.Ф., Макиенко Э.В., Козлов В.С. Влияние коры древесных материалов на оптико-микрофизические свойства пиролизных дымов // Оптика атмосф. и океана. 2010. Т. 23, № 5. С. 412–418.
12. Рахимов Р.Ф., Макиенко Э.В., Панченко М.В. Оптико-микрофизические свойства смешанных дымов от не-



- скольких разнесенных источников // Оптика атмосф. и океана. 2010. Т. 23, № 8. С. 675–684.
13. 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 атмосф. и океана. 2010. Т. 23, № 4. С. 248–258.
  14. Рахимов Р.Ф., Козлов В.С., Шмаргунов В.П. О временной динамике комплексного показателя преломления и микроструктуры частиц по данным спектронефелометрических измерений в смешанных дымах // Оптика атмосф. и океана. 2011. Т. 24, № 10. С. 887–897.
  15. Козлов В.С., Шмаргунов В.П., Тумаков А.Г., Панченко М.В., Рахимов Р.Ф. Угловой поляризационный спектронефелометр APSN-02 для изучения оптико-микроразличительных свойств атмосферного субмикронного аэрозоля // Аэрозоли Сибири. XVIII Рабочая группа: Тезисы докл. Томск: Изд-е ИОА СО РАН, 2011. С. 78.
  16. Самойлова С.В., Балин Ю.С., Коханенко Г.П., Пеннер И.Э. Исследование вертикального распределения тропосферных аэрозольных слоев по данным многочастотного лазерного зондирования. Часть 3. Спектральные особенности вертикального распределения оптических характеристик аэрозоля // Оптика атмосф. и океана. 2011. Т. 24, № 3. С. 216–223.
  17. Бычков В.В., Пережогин А.С., Пережогин А.С., Шевцов Б.М., Маричев В.Н., Матвиенко Г.Г., Белов А.С., Черемисин А.А. Лидарные наблюдения появления аэрозолей в средней атмосфере Камчатки в 2007–2011 гг. // Оптика атмосф. и океана. 2012. Т. 25, № 1. С. 87–93.
  18. Матвиенко Г.Г., Погодаев В.А. Оптика атмосферы и океана – неоконченный урок взаимодействия оптического излучения со средой распространения // Оптика атмосф. и океана. 2012. Т. 25, № 1. С. 5–10.
  19. Креков Г.М., Матвиенко Г.Г. Развитие лазерных технологий в проблеме дистанционного зондирования атмосферы // Оптика атмосф. и океана. 2010. Т. 23, № 10. С. 835–844.
  20. Зуев В.Е., Креков Г.М. Оптические модели атмосферы. Современные проблемы атмосферной оптики. Т. 2. Л.: Гидрометеоиздат, 1986. 256 с.
  21. Горчаков Г.И., Емиленко А.С., Свириденков М.А. Однопараметрическая модель приземного аэрозоля // Изв. АН СССР. Физ. атмосф. и океана. 1981. Т. 17, № 1. С. 39–49.
  22. Веретенников В.В., Кабанов М.В., Панченко М.В., Фадеев В.Я. Применение однопараметрической модели дымки в задачах лазерного зондирования // Оптика атмосф. 1988. Т. 1, № 2. С. 25–32.

*R.F. Rakhimov, V.S. Kozlov, A.G. Tumakov, V.P. Shmargunov. Optical and microphysical properties of the pyrolysis smoke from measurements by the use of the 4-wavelength polarization spectronephelometer.*

Data of polarization spectronephelometric measurements have been used to study the dynamics of optical-microphysical properties of pyrolysis smoke during three days of smoke aging in the Large Aerosol Chamber of IAO SB RAS (1800 m<sup>3</sup>). The smoke was formed from low-temperature (~ 400 °C) decomposition of wood of coniferous trees (pine). The inverse problem was solved to study peculiarities in the disperse composition and the complex refractive index of smoke particles.

A key difference of the microphysics of pyrolysis smokes from mixed regimes of forest biomass burning is the low content of strongly absorbing compounds (black carbon) in ultra-fine particles (radius < 150 nm). As a result, the smokes are weakly absorbing, and the single scattering albedo of dense pyrolysis smoke in the visible spectral region (~ 525 nm) at the stage of smoke formation is close to 1 and decreases after 3-day storage down to only ~ 0.96.

In the size distribution of particles, the medium (~ 400 nm) and coarse (~ 850 nm) fractions are formed. At the smoke aging, the both modes shift toward smaller sizes, and for the aged smoke the medium fraction becomes the main mode in the size spectrum. The pyrolysis smoke, in contrast to mixed smokes, is characterized by the wide size spectrum up to radii of about 1500 nm. As a consequence, the effective radius of pyrolysis particles (~ 400 nm) at the smoke formation is more than twice as large as that of mixed smokes. At the smoke aging, the effective radius decreases from 400 to 170 nm.

Stable correlations have been found between the volume coefficients of lidar scattering and extinction, albedo and effective radius of particles. These correlations count in favor of applicability of the single-parameter model of submicron aerosol for the pyrolysis smoke.