

На правах рукописи

УДК 551.574.1.072

Крюкова Светлана Викторовна

**КВАЗИСТАТИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ НУКЛЕАЦИИ
ПРИ ФАЗОВЫХ ПЕРЕХОДАХ ВОДЫ В АТМОСФЕРЕ**

25.00.30 – МЕТЕОРОЛОГИЯ, КЛИМАТОЛОГИЯ, АГРОМЕТЕОРОЛОГИЯ

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Санкт-Петербург

2011

Работа выполнена на кафедре экспериментальной физики атмосферы
Российского Государственного Гидрометеорологического университета.

Научный руководитель:

доктор физико-математических наук, профессор

Кузнецов Анатолий Дмитриевич

Научный консультант:

кандидат физико-математических наук, доцент

Бекряев Виктор Иванович

Официальные оппоненты:

доктор физико-математических наук, профессор

Ивлев Лев Семенович

кандидат физико-математических наук, доцент

Каишева Лариса Владимировна

Ведущая организация:

Главная геофизическая обсерватория им. А.И.Воейкова.

Защита состоится «21» апреля 2011 г. в 15 часов 30 минут на заседании
диссертационного совета Д212.197.01 в Российском Государственном
Гидрометеорологическом университете по адресу:

195196, г. Санкт-Петербург, Малоохтинский пр., д.98

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке Российского
Государственного Гидрометеорологического университета.

Автореферат разослан «14» марта 2011 г.

Ученый секретарь

Диссертационного совета,

докт. геогр. наук, профессор

А.И. Угрюмов

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы

Среди многочисленных проблем, стоящих в настоящее время перед человечеством и требующих решения, особое место занимает и выделяется своей трудностью проблема активных воздействий на погоду и климат, в частности с помощью аэрозольных частиц. Естественные процессы накопления аэрозолей в атмосфере могут способствовать возникновению ураганов, гроз, катастрофических ливней, туманов и других опасных природных явлений, наносящих ощутимый урон народному хозяйству. Вместе с тем, искусственные воздействия, способствующие улучшению погодных условий, могут оказаться эффективным средством повышения урожаев, улучшения видимости атмосферы, ослабления катастрофических явлений и т.д. Повышение эффективности активных воздействий на погодные процессы с целью обеспечения благоприятных условий для жизнедеятельности людей или предотвращения ущерба от опасных явлений погоды требует более глубокого понимания микрофизики облаков и построение более общих и универсальных математических моделей. Решение этой проблемы является одной из важнейших задач метеорологии.

Среди многочисленных факторов, требующих учета при математическом моделировании активных воздействий на атмосферные процессы, одними из определяющих являются фазовые переходы воды в атмосфере. Особое место среди микрофизических факторов, сопутствующих развитию этих процессов, занимает процесс возникновения зародышей новой фазы – нуклеация. Это - сложный процесс, поэтому изучение нуклеации требует экспериментального исследования с помощью новейших измерительных технологий и детального теоретического описания.

Изучение атмосферных ядер конденсации и кристаллизации, конденсационного и сублимационного роста облачных капель и кристаллов, динамики их столкновения и слияния привели к лучшему пониманию процессов образования атмосферных осадков и возможному искусственному

воздействию на них с целью вызывания осадков, уменьшения интенсивности градобитий и т.д.

Несмотря на то, что в настоящее время физика облаков достигла больших успехов, все еще имеется ряд нерешенных проблем, связанных, в частности, с микрофизикой образования и роста жидких и твердых аэрозольных частиц в атмосфере. Узким местом многочисленных математических моделей облачных процессов являются трудности описания, прежде всего, эффектов нуклеации. Поэтому изучение процессов нуклеации является важным в научном плане и имеет также большое практическое значение с точки зрения реализации возможности искусственных воздействий с помощью аэрозолей на погоду и климат, значимость которых становится все более актуальной.

Цель диссертационной работы заключается в теоретическом исследовании процессов гомогенной и гетерогенной нуклеации и построении математической модели исследуемых процессов.

Для достижения указанной цели в диссертационной работе решались следующие задачи:

1. Анализ теоретических основ гомогенной и гетерогенной нуклеации;
2. Разработка квазистатической модели нуклеации, как альтернативного решения задач гомогенного и гетерогенного ядрообразования;
3. Проведение численного моделирования процессов гомогенной и гетерогенной нуклеации.

Научная новизна работы

Научная новизна диссертационного исследования заключается в разработке нового подхода для решения задач гомогенного и гетерогенного ядрообразования, основанного на предположении о квазистатическом распределения зародышей по размерам при изменении пересыщения или переохлаждения.

Обоснованность и достоверность результатов

Обоснованность и достоверность выводов диссертации подтверждается максимально возможным объемом данных, привлеченных для исследования, современными методами обработки материала, а также сравнением результатов диссертации с закономерностями, установленными в более ранних работах.

Практическая значимость работы

Диссертационная работа выполнялась в рамках научно-исследовательских работ на кафедре экспериментальной физики атмосферы РГГМУ. Результаты диссертационного исследования могут быть использованы при осуществлении численного моделирования микрофизических процессов в облаках, а также в учебном процессе по дисциплине «Воздействия на атмосферные процессы и явления».

Основные положения, выносимые на защиту:

1. Квазистатическая модель гомогенной нуклеации
 - при спонтанной конденсации;
 - при спонтанном образовании ледяных зародышей в пересыщенном паре;
 - при спонтанном образовании ледяных зародышей в переохлажденной воде.
2. Квазистатическая модель нуклеации для некоторых механизмов гетерогенного льдообразования – при осаждении водяного пара на поверхность льдообразующего реагента и при иммерсионном замерзании.

Апробация и публикации

Основные результаты работы докладывались на научных семинарах кафедры экспериментальной физики атмосферы РГГМУ в 2009-2011 г.г., на научно-практической конференции «Составляющие научно-технического прогресса» (2009), на конференции «Современные проблемы науки, образования и производства» (2009).

Материалы диссертации включены в разделы учебного пособия для студентов и аспирантов метеорологических факультетов:

Бекряев В.И. Некоторые вопросы физики облаков и активных воздействий на них. – СПб., изд. РГГМУ, 2007 – 337с.

Основные результаты диссертации опубликованы в 4 научных работах, в том числе 2 - в рецензируемых и рекомендуемых ВАК.

Структура и объем работы

Диссертация состоит из введения, трех глав, заключения и списка литературы, содержащего 142 наименования. Главы делятся на разделы. Общий объем работы составляет 104 страницы машинописного текста, включая 10 рисунков.

СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении обоснована актуальность темы диссертации, сформулированы цели и задачи исследования, приведены основные положения, выносимые на защиту, теоретическая новизна и практическая значимость работы, а также кратко излагается содержание диссертации.

В первой главе содержится обзор существующих подходов по теории нуклеации. Рассматривается классическая теория нуклеации, созданная усилиями ряда ученых, начиная с Дж.Гиббса, термодинамические результаты которого, являются составной частью классической теории. Феноменологическая теория Гиббса удовлетворительно описывает процесс нуклеации в стационарных квазиравновесных условиях.

Классическая теория нуклеации в метастабильной фазе, даже в усовершенствованных вариантах последних десятилетий, построена в предположении, что концентрация мономеров метастабильной фазы остается постоянной во времени, поскольку расход этих молекул на формирование зародышей компенсируется непрерывным притоком таких же молекул извне. Как следствие, при достаточно больших скоростях образования зародышей этот приток должен осуществляться с огромной скоростью, что при

значительных пересыщениях дает расходимость рассчитанных значений скорости нуклеации с экспериментальными данными на несколько порядков.

Фактически классическая теория нуклеации позволяет описывать лишь начальную стадию спонтанной конденсации, для которой она и разрабатывалась.

Теоретически возможно гомогенное образование зародышевых ледяных кристаллов в пересыщенном паре. В реальных условиях будут образовываться зародыши той фазы, для которой будет больше скорость нуклеации. Эксперименты в облачной камере расширения подтверждают, что единственным механизмом нуклеации, ответственным за процесс фазового перехода в лед является нуклеация жидких капель, которые в свою очередь сформировались благодаря конденсации водяного пара. Из этого следует, что ледяная фаза должна быть результатом последующего замерзания переохлажденных капель.

Классическая теория гомогенной нуклеации льда постулирует, что величина энергетического барьера между переохлажденной, метастабильной жидкостью и термодинамически стабильной кристаллической фазой рассчитывается при предположении, что микроскопический ледяной зародыш формируется внутри переохлажденной жидкости. За многие годы исследования процесса гомогенной нуклеации льда стало очевидно, что скорости нуклеации, рассчитанные по классической теории плохо согласовывались с данными лабораторных и натуральных экспериментов. Недостаток классической теории заключается в использовании макроскопической термодинамики и предположении, что основная часть значений для сложных параметров, таких, как поверхностное натяжение, плотность льда, скрытая теплота таяния льда может быть использована для микроскопических фаз, связанных с теорией нуклеации.

Гетерогенная нуклеация льда происходит в нижней и средней тропосфере при наличии так называемых ядер кристаллизации, в качестве которых выступают различные аэрозольные частицы. В физике облаков выделяют четыре различных механизма формирования ледяных зародышей и соответствующие им четыре вида льдообразующих ядер: ядра осаждения,

конденсационные ядра замерзания, иммерсионные и контактные ядра замерзания.

Параметризация гетерогенного замерзания намного сложнее гомогенного замерзания, так как факторы, контролирующие гетерогенную нуклеацию не до конца изучены как экспериментально, так и теоретически. Поскольку подходящая теория гетерогенной нуклеации отсутствует, исследователи разрабатывали и усовершенствовали классическую теорию гомогенной нуклеации, в основе которой лежат представления об образовании ледяного зародыша сферической формы на поверхности инородной частицы, находящейся в объеме капли. Однако классическая теория не предполагает зависимости от свойств поверхности инородной частицы. Все модели использовали или классическую теорию нуклеации или различные эмпирические параметризации гетерогенной нуклеации льда.

Во второй главе описывается сформулированная автором диссертации квазистатическая модель гомогенной нуклеации. Предлагается другой подход к решению задачи. Он, как и классическая теория, базируется на представлении о том, что в материнской фазе всегда существуют зародыши новой фазы как результат непрерывно действующих механизмов их образования и разрушения. Отличие предлагаемой модели от классической заключается в следующем. В результате динамического равновесия между процессами возникновения и разрушения зародышей формируется статически устойчивое распределение их по размерам. При этом в образовании зародышей участвуют все реально существующие молекулы материнской фазы. Предполагается, что спектр зародышей остается постоянным (квазистатическим) при изменении пересыщения или переохлаждения. Если материнская фаза переходит в метастабильное состояние, то размеры крупных зародышей оказываются больше критического. Эти зародыши становятся жизнеспособными. Задавая вид функции распределения зародышей по размерам, можно рассчитать скорость нуклеации. В модели не учитывается как уменьшение числа молекул материнской фазы, связанное с ростом жизнеспособных зародышей, так и возможное восстановление их спектра.

В разделе 2.1 рассматривается процесс спонтанной конденсации. приведены формулы для расчета концентрации и скорости образования зародышей при спонтанной конденсации

Число зародышей, становящихся жизнеспособными при температуре T

$$N_{B,T} = N_{0,B} \frac{0,5 - F\left(\sqrt{2b_B r_{B,T}^*}\right)}{0,5 - F\left(\sqrt{2b_B r^{\circ}}\right)}, \quad (1)$$

где $N_{0,B} = \frac{3}{2\sqrt{\pi}} \frac{\rho_{\text{п}}}{\rho_B} \frac{b_B^{3/2}}{\left(b_B r^{\circ 2} + 1\right)} \frac{\left(0,5 - F\left(\sqrt{2b_B r^{\circ}}\right)\right)}{\exp\left(-b_B r^{\circ 2}\right)}$ – общая концентрация

зародышевых капель в пересыщенном паре, r° – радиус молекулы воды, $r_{B,T}^*$ – размер жизнеспособного зародыша r_B^* при произвольной температуре T ,

$F(\)$ – функция Лапласа, $b_B = \frac{4}{3} \frac{\pi \gamma \sigma_{\text{п-в}}}{kT}$, $\sigma_{\text{п-в}}$ – энергия поверхностного натяжения на границе пар-вода, γ – множитель, $0 < \gamma \leq 1$.

Принимая в первом приближении $N_{0,B}$ не зависящими от температуры, выражение (1) можно использовать для расчета числа жизнеспособных водяных зародышей, образующихся в единице объема пара при понижении температуры от T_1 до T . Перейдем от величины $N_{B,T}$ к скорости нуклеации $J_B(T)$

$$J_B = \frac{dN_{B,T}}{d\tau} = \frac{dN_{B,T}}{dT} \frac{dT}{d\tau} = \frac{dN_{B,T}}{dT} \cdot \dot{T},$$

$$J_B = \frac{N_{0,B} \dot{T}}{0,5 - F\left(\sqrt{2b_B r^{\circ}}\right)} \cdot \sqrt{\frac{b_B}{\pi}} \cdot \frac{l_B T_1}{(T_1 - T)^2} \exp\left(-b_B l_B^2 \left(\frac{T_1}{T_1 - T}\right)^2\right), \quad (2)$$

где $l_B = \frac{2\sigma_{\text{п-в}}}{\rho_B L_{\text{п-в}}}$, $L_{\text{п-в}}$ – теплота фазового превращения пар-вода, \dot{T} – скорость охлаждения.

Классическая формула скорости нуклеации водяных зародышей в пересыщенном паре имеет вид

$$J_B = 10^{29} \left(\frac{e}{E_0} \right)^2 \exp \left(\frac{-16 \pi \sigma_{\text{П-В}}^3}{3 k \rho_B^2 R_{\text{П}}^2 T^3 \ln^2 f_B} \right),$$

где f_B - относительная влажность, $f_B = e / E_s(T)$, $e = 6,1$ гПа.

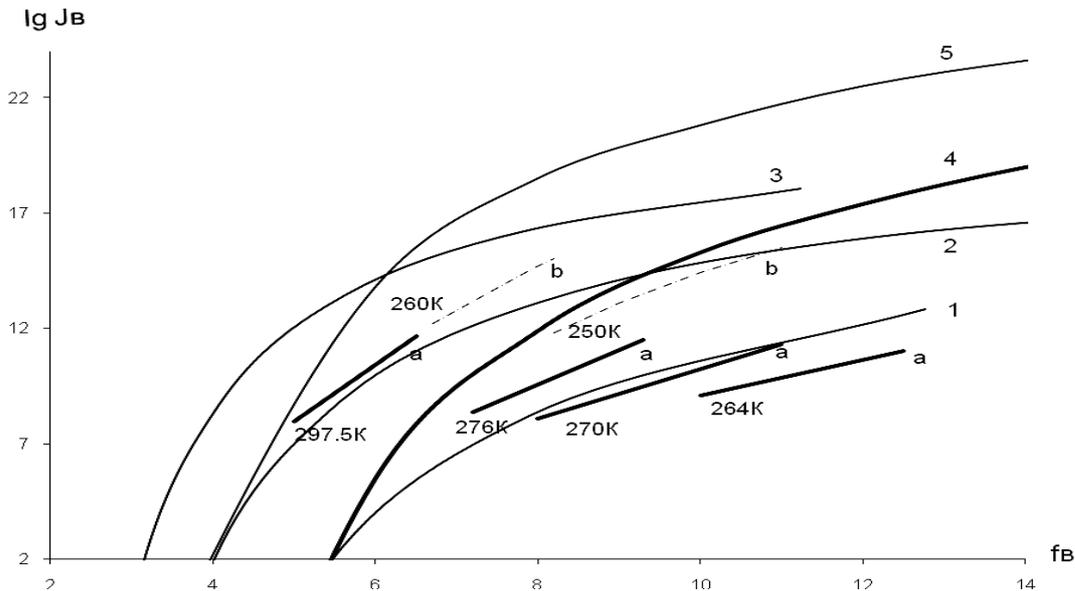


Рисунок 1.

Зависимость скорости нуклеации J_B от относительной влажности f_B .

Результаты расчетов $J_B(f_B)$ при $\gamma = 1$: кривые 1, 2, 3 - расчет по формуле (2) при исходных температурах 253, 273, 293К соответственно; кривые 4, 5 – расчет по формуле классической теории нуклеации при исходных температурах 253, 273К соответственно; экспериментальные данные: а, б.

J_B в $\text{М}^{-3} \cdot \text{С}^{-1}$

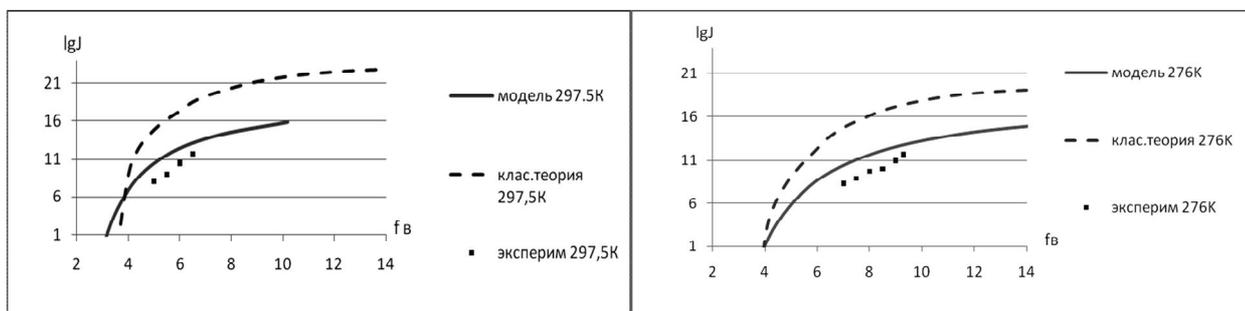


Рисунок 2.

Зависимость скорости нуклеации J_B от относительной влажности f_B .

На рисунке 2 более подробно представлены зависимости скорости нуклеации от влажности при разных начальных температурах, при которых проводились эксперименты. Эксперименты проводились в камерах расширения при различных исходных температурах. Из анализа рисунков 2 и 3 видно, что скорости, рассчитанные по предлагаемой модели, хорошо согласуются с экспериментальными данными. Расчеты по классической модели дают завышенные значения скорости нуклеации.

В разделе 2.2 рассматривается возможность непосредственного образования ледяных зародышей в пересыщенном паре. Согласно классической теории, вероятность фазового превращения пар-лед мала по сравнению с вероятностью превращения пар-вода. Для оценки возможности непосредственного образования ледяных зародышей в пересыщенном паре достаточно найти отношение $N_{в,Т} / N_{л|п,Т}$. Если это отношение существенно больше единицы, то в пересыщенном паре будут образовываться водяные зародыши.

При сравнении эффективностей спонтанного образования капель воды и ледяных зародышей при одинаковых условиях, то есть при понижении температуры от $T_1 = 273K$ до температуры T видно, что отношение $\frac{N_{в,Т}}{N_{л|п,Т}}$ быстро уменьшается с понижением температуры, оставаясь, однако, в диапазоне представленных температур много больше единицы. Это свидетельствует о преимущественном образовании водяных зародышей в пересыщенном паре.

В разделе 2.3 распространяется подход, используемый при оценке скорости образования водяных капель в пересыщенном паре, на процесс образования ледяных зародышей в переохлажденной воде. В качестве исходной температуры для этого процесса удобно принять температуру фазового равновесия вода-лед, так что $T_1 = T_0 = 273 K$.

Число ледяных зародышей, превышающих критический размер $r_{л|в}^*$, при понижении температуры от T_0 до T составляет

$$N_{л|в,T} = N_{0,л|в} \cdot \frac{0,5 - F\left(\sqrt{2b_{л|в}} \cdot r_{л|в,T}^*\right)}{0,5 - F\left(\sqrt{2b_{л|в}} \cdot r\right)}, \quad (3)$$

где $r_{л|в,T}^* = \frac{2\sigma_{в-л}}{\rho_{л} L_{в-л} \ln \frac{T_0}{T}}$, $N_{0,л|в} = \frac{3}{2\pi} \cdot \frac{\rho_{в}}{\rho_{л}} \cdot \frac{b_{л|в}^2}{B_{л|в} \left(b_{л|в} r^2 + 1\right)}$ – общее число ледяных

зародышей, $b_{л|в}$ и $B_{л|в}$ – параметры распределения.

Индекс л|в означает, что ледяная фаза образуется непосредственно из воды.

Однако не каждый зародыш с радиусом $r_{л|в} > r_{л|в}^*$ становится жизнеспособным. Это связано с тем, что при переходе молекул из воды в лед разрушаются водородные связи в воде и формируются связи, соответствующие кристаллической решетке льда. Энергетический барьер, возникающий при таком переходе, в классической теории выражается полуэмпирическими соотношениями, учитывающими энергию активации $\Delta_{акт.}$, которая может быть задана, например, формулой

$$\Delta_{акт.} = [3.6 - 0,073(T - T_0)] \cdot 10^{-20} \quad (4)$$

Необходимость учета энергии активации, являющейся функцией температуры, не позволяет получить выражение для $J_{л|в}$ непосредственно дифференцированием выражения (3). Поэтому рассчитаем сначала условную скорость нуклеации $J_{л|в}^{(y)}$ без учета энергии активации

$$J_{л|в}^{(y)} = \frac{dN_{л|в,T}}{dT} \cdot T.$$

Чтобы получить действительную скорость нуклеации, следует величину $J_{л|в}^{(y)}$ умножить на коэффициент, отражающий вероятность перехода молекул из воды в лед. Обычно его задают в виде множителя $\exp\left(-\frac{\Delta_{акт.}}{kT}\right)$. Однако распределение зародышей по размерам построено в предположении формирования их при температуре T_0 . Поэтому

представляется логичным, оценивая скорость нуклеации, учитывать только изменение энергии активации, связанное с понижением температуры ниже T_0 . Таким образом, приращение энергии активации составляет

$$\delta_{\text{акт.}} = \Delta_{\text{акт.}} - \Delta_{\text{акт.,}T_0} = -0,073 \cdot 10^{-20} (T - T_0). \quad (5)$$

Тогда действительная скорость нуклеации

$$J_{\text{л|в}}(T) = J_{\text{л|в}}^{(y)} \cdot \exp\left(-\frac{\delta_{\text{акт.}}}{kT}\right). \quad (6)$$

Окончательная формула для скорости нуклеации имеет вид

$$J_{\text{л|в}} = \frac{N_{0,\text{л|в}} \cdot \dot{T}}{0,5-F\left(\sqrt{2b_{\text{л|в}}} \cdot r\right)} \cdot \sqrt{\frac{b_{\text{л|в}}}{\pi}} \cdot \frac{l_{\text{л|в}} T_0}{(T_0 - T)^2} \cdot \exp\left(-b_{\text{л|в}} l_{\text{л|в}}^2 \left(\frac{T_0}{T_0 - T}\right)^2\right) \cdot \exp\left(-\frac{\delta_{\text{акт.}}}{kT}\right), \quad (7)$$

где $l_{\text{л|в}} = \frac{2\sigma_{\text{в-л}}}{\rho_{\text{л}} L_{\text{в-л}}}$, $b_{\text{л|в}} = \frac{4\pi\gamma_{\text{л|в}} \sigma_{\text{л|в}}}{3kT}$, $\gamma_{\text{л|в}}$ - множитель, $0 < \gamma \leq 1$.

На рисунке 3 представлены результаты расчета скорости нуклеации при разных значениях энергии активации. Кривая 2 рассчитана по формуле (7), то есть с учетом приращения энергии активации, задаваемой выражением (5). Для сравнения даны кривые 1 и 3, рассчитанные также по формуле (7), но при полном учете (формула (4)) и без учета энергии активации ($\Delta_{\text{акт.}} = 0$) соответственно. Расчет кривых 1,2,3 производился при $\gamma_{\text{л|в}} = 0,5$. Влияние множителя $\gamma_{\text{л|в}}$ можно оценить, сравнивая кривые 2 и 4. Последняя рассчитана, как и кривая 2, по формуле (7), но при $\gamma_{\text{л|в}} = 1$. На рисунке символами представлены экспериментальные данные разных авторов, а также расчет по классической модели. Видно, что кривая 1 дает явно заниженные значения $J_{\text{л|в}}(T)$, а кривая 3 дает завышенные значения $J_{\text{л|в}}(T)$. Скорости нуклеации, рассчитанные по предлагаемой модели (кривая 2), хорошо согласуются с общепринятыми представлениями об экстремальной зависимости $J_{\text{л|в}}(T)$ и с экспериментальными данными. Расчет $J_{\text{л|в}}(T)$ по формуле (7) можно уточнить, изменяя значения $\gamma_{\text{л|в}}$ и $\delta_{\text{акт.}}$, однако для этого необходимы экспериментальные данные в широком диапазоне температур.

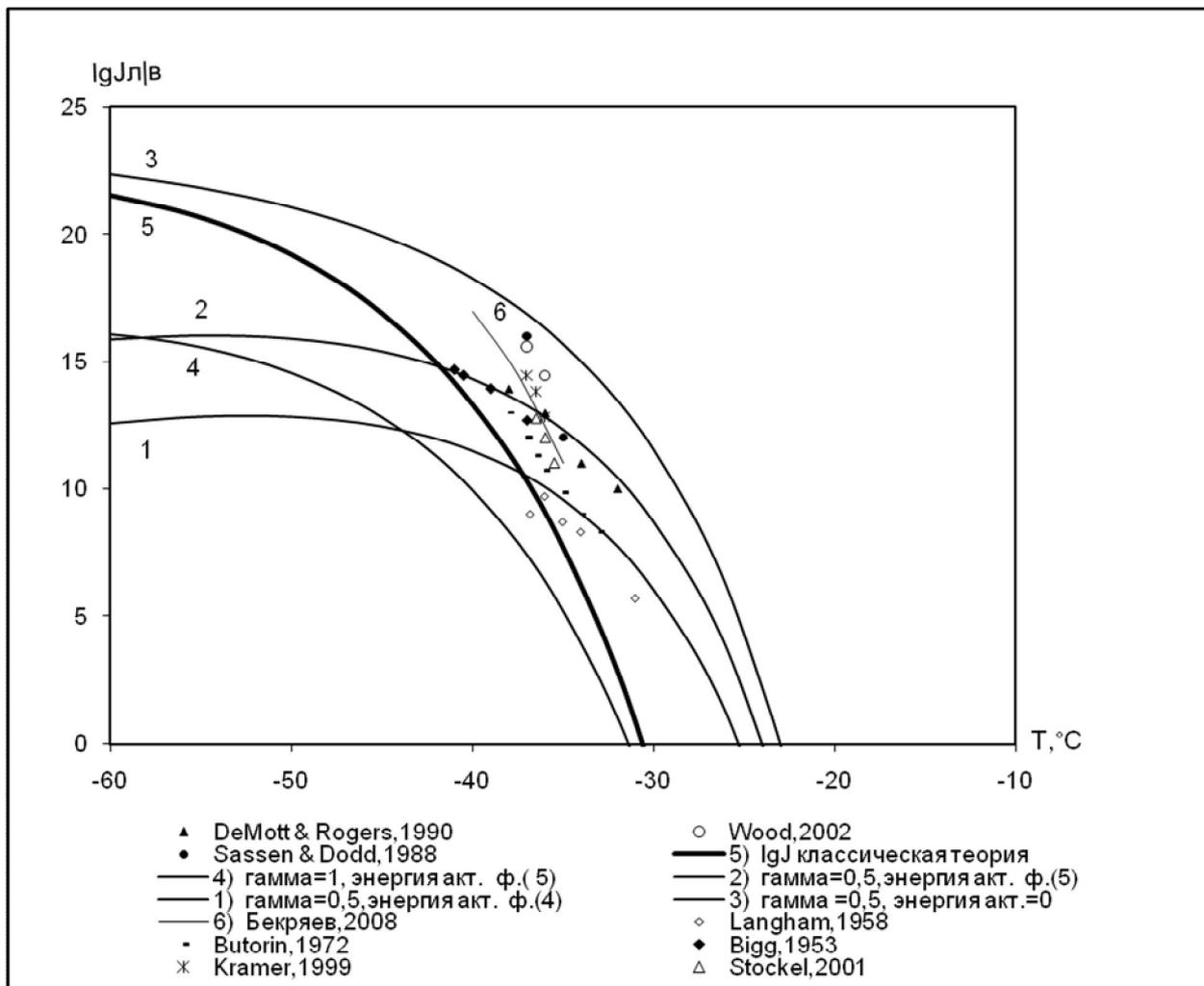


Рисунок 3.

Скорость нуклеации ледяных зародышей в переохлажденной воде при различных вариантах учета энергии активации. J_v в $\text{м}^{-3} \cdot \text{с}^{-1}$

В третьей главе рассматриваются результаты применения квазистатической модели нуклеации для описания некоторых способов гетерогенного льдообразования. Гетерогенная нуклеация льда характеризуется числом и скоростью образования зародышей на единичной поверхности инородных частиц, например, льдообразующих реагентов. Для оценки этих величин используется тот же подход, который был предложен при исследовании гомогенной нуклеации. Суть этого подхода состоит в предположении того, что в метастабильной материнской фазе существует квазистатическое распределение зародышей новой (стабильной) фазы. Распределение их по размерам является квазистатическим в том смысле, что

устанавливается динамическое равновесие между зародышами возникающими и разрушающимися. При увеличении пересыщения или переохлаждения уменьшается критический размер зародышей. Те из них, чьи размеры оказываются больше критического, становятся жизнеспособными. Задача заключается в том, чтобы оценить число и скорость образования таких зародышей.

В разделе 3.1 рассматривается один из механизмов гетерогенной нуклеации льда – непосредственное осаждение пара на поверхность льдообразующего ядра (ЛОЯ). Предполагается, что на поверхности инородного ядра, окруженного водяным паром, образуются ледяные зародыши различного размера. Общее число зародышей, содержащихся на единичной поверхности ЛОЯ

$$N_{0,l|n,T}^{\nabla} = \frac{3}{2\sqrt{\pi}} \frac{\rho_{\text{л}}^{\nabla}}{\rho_{\text{л}}} \frac{(b_{\text{л|л}}^{\nabla})^{3/2}}{\Psi_{\text{л|л}} \left(b_{\text{л|л}}^{\nabla} r^{\circ 2} + 1 \right)} \cdot \frac{\left(0,5 - F \left(\sqrt{2b_{\text{л|л}}^{\nabla} r^{\circ}} \right) \right)}{\exp \left(-b_{\text{л|л}}^{\nabla} r^{\circ 2} \right)}, \quad (8)$$

где индекс л|л означает, что ледяная фаза образуется непосредственно из пара, верхний индекс ∇ здесь и далее обозначает гетерогенный процесс;

$$F(\sqrt{2b_{\text{л|л}}^{\nabla} r^{\circ}}) - \text{функция Лапласа, параметр } b_{\text{л|л}}^{\nabla} = \frac{4\pi\gamma\sigma_{\text{л-л}}\Psi_{\text{л|л}}(\Theta_{\text{ос}})}{3kT}, \quad \Theta_{\text{ос}} -$$

контактный параметр для механизма осаждения, γ - множитель, $0 < \gamma \leq 1$, r° - радиус объема, приходящегося на одну молекулу H_2O ,

$$\Psi(\Theta_{\text{ос}}) = (2 + \Theta_{\text{ос}}) \cdot (1 - \Theta_{\text{ос}})^2 / 4, \text{ поверхностная плотность пара } \rho_{\text{л}}^{\nabla} = \left(\frac{e}{kT} \right)^{2/3} \cdot \frac{\mu}{N_A},$$

где e - парциальное давление водяного пара, N_A - число Авогадро, μ - молярная масса воды.

Механизм осаждения проявляется, если водяной пар пересыщен относительно льда $f_{\text{л}} > 1$, но не пересыщен относительно воды $f_{\text{в}} \leq 1$. Предельное значение влажности надо льдом, ограничивающее возможность превращения пар-лед на поверхности ЛОЯ, составляет $f_{\text{л},T_2} = E_{\text{в},T_2} / E_{\text{л},T_2}$, где T_2 - температура, при которой $E_{\text{л},T_1} = E_{\text{в},T_2}$. Выражение для максимального

числа ледяных зародышей, образующихся на единичной площади ЛОЯ при понижении температуры от T_1 до T_2 , имеет вид

$$N_{л|п,T_2}^{\nabla} = N_{0,л|п,T_1}^{\nabla} \cdot \frac{\left(0,5 - F\left(\sqrt{2b_{л|п}^{\nabla}} \cdot r_{л|п,T_2}^{\nabla}\right)\right)}{\left(0,5 - F\left(\sqrt{2b_{л|п}^{\nabla}} \cdot r\right)\right)}, \quad (9)$$

где $r_{л,T_2}^{\nabla} = \frac{2\sigma_{п-л}}{\rho_{л}R_{п}T_1 \cdot 0,011(T_0 - T_1)}$

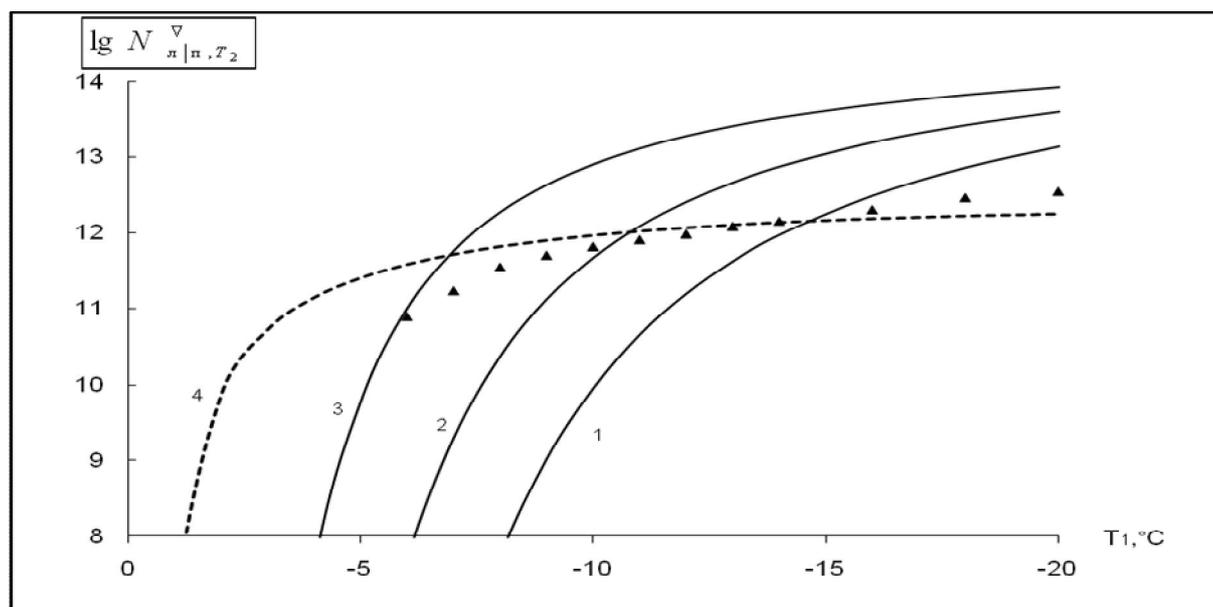


Рисунок 4.

Плотность жизнеспособных зародышей, образующихся в результате осаждения водяного пара на ЛОЯ при различных значениях контактного параметра Θ_{oc} : 1. $\Theta_{oc} = 0.96$; 2. $\Theta_{oc} = 0.97$; 3. $\Theta_{oc} = 0.98$; 4. $\Theta_{oc} = \Theta_{oc}(T)$;

\blacktriangle - экспериментальные данные. $N_{л|п,T_2}^{\nabla}$ в $1/м^2$

На рисунке 4 приведены зависимости поверхностной плотности $N_{л|п,T_2}^{\nabla}$ от исходной температуры T_1 для различных значений контактного параметра Θ_{oc} , при $\gamma=0,5$. Контактный параметр Θ_{oc} является обобщающей характеристикой ЛОЯ и льда. Для активных льдообразующих ядер $\sigma_{л-я}$ существенно меньше $\sigma_{п-я}$. В свою очередь $\sigma_{п-я}$ близко к $\sigma_{п-л}$. Таким образом, значение Θ_{oc} должно быть близким к единице, но меньше ее. Для оценки правдоподобия теоретической модели на рисунке 4 приведены также

экспериментальные данные ДеМотт (DeMott). Он исследовал температурную зависимость поверхностной плотности активных мест при депозиционном механизме замерзания на аэрозольных частицах AgI-AgCl-4NaCl. Кривая, отражающая экспериментальные данные, пересекается с кривыми 1, 2, 3. Имея в виду, что значение контактного параметра Θ_{oc} уменьшается с понижением температуры, была рассчитана кривая 4 при $\Theta_{oc} = \Theta_{oc}(T)$. При учете зависимости контактного параметра от температуры соответствие теории эксперименту можно признать убедительным.

В разделе 3.2 рассматривается еще один механизм гетерогенного льдообразования - иммерсионная нуклеация льда - образование ледяных зародышей на поверхности льдообразующих ядер, полностью погруженных в воду. Отличия иммерсионной нуклеации от механизма осаждения заключаются в необходимости уточнения ряда величин. При определении контактного параметра $\Theta_{им}$ следует учитывать поверхностное натяжение на границах вода-ядро и вода-лед. В модели иммерсионной нуклеации необходимо учесть энергию активации превращения вода-лед. Как и при гомогенной нуклеации льда, здесь используется только приращение энергии активации $\delta_{акт.}$, связанное с отклонением температуры от равновесной $T_0 = 273$ К. Тогда при произвольной температуре T

$$\delta_{акт.} = 0,073(T_0 - T) \cdot 10^{-20} .$$

Число зародышей, приходящихся на единицу поверхности ЛОЯ

$$N_{0,лв}^{\nabla} = \frac{3}{2\sqrt{\pi}} \cdot \frac{\rho_{в}^{\nabla}}{\rho_{л}} \cdot \frac{(b_{л|в}^{\nabla})^{3/2}}{\Psi_{л|в}(\Theta_{им}) \left(b_{л|в}^{\nabla} r^{\circ 2} + 1 \right)} \cdot \frac{\left(0,5 - F\left(\sqrt{2b_{л|в}^{\nabla} r^{\circ}} \right) \right)}{\exp\left(-b_{л|в}^{\nabla} r^{\circ 2} \right)} , \quad (10)$$

где $\rho_{в}^{\nabla} = \rho_{в}^{2/3} \left(\frac{\mu}{N_A} \right)^{1/3} h$ - поверхностная плотность молекул, участвующих в образовании зародышей, h - число молекулярных слоев.

Условное число зародышей, становящихся жизнеспособными при произвольной температуре $T < T_0$, без учета энергии активации

$$N_{л|в,T}^{\nabla(y)} = N_{0,л|в}^{\nabla} \cdot \frac{\left(0,5 - F\left(\sqrt{2b_{л|в}^{\nabla}} \cdot r_{л|в,T}^{\nabla}\right)\right)}{\left(0,5 - F\left(\sqrt{2b_{л|в}^{\nabla}} \cdot r\right)\right)}. \quad (11)$$

Размер жизнеспособного зародыша

$$r_{л|в,T}^{\nabla} = \frac{2\sigma_{в-л}}{\rho_{л} L_{в-л} \ln \frac{T_0}{T}} \approx l_{л|в}^{\nabla} \cdot \frac{T_0}{(T_0 - T)}, \quad (12)$$

где $L_{в-л}$ - теплота фазового перехода вода-лед, $l_{л|в}^{\nabla} = \frac{2\sigma_{в-л}}{\rho_{л} L_{в-л}}$.

Условную скорость нуклеации (без учета энергии активации) запишем в виде

$$J_{л|в}^{\nabla(y)} = \frac{N_{0,л|в}^{\nabla} T}{\left(0,5 - F\left(\sqrt{2b_{л|в}^{\nabla}} \cdot r\right)\right)} \cdot \sqrt{\frac{b_{л|в}^{\nabla}}{\pi}} \cdot l_{л|в}^{\nabla} \cdot \frac{T_0}{(T_0 - T)^2} \exp\left(-b_{л|в}^{\nabla} \cdot l_{л|в}^{\nabla 2} \left(\frac{T_0}{T_0 - T}\right)^2\right), \quad (13)$$

где \dot{T} – скорость охлаждения.

Действительную скорость нуклеации найдем как

$$J_{л|в}^{\nabla}(T) = J_{л|в}^{\nabla(y)} \cdot \exp\left(-\frac{\delta_{акт}}{kT}\right). \quad (14)$$

Теперь, чтобы найти действительное число ледяных жизнеспособных зародышей, следует проинтегрировать выражение для скорости нуклеации по времени

$$N_{л|в,T}^{\nabla} = \int_0^{\tau} J_{л|в}^{\nabla}(T) d\tau, \quad (15)$$

либо, возвращаясь к переменной T ,

$$N_{л|в,T}^{\nabla} = \int_{T_0}^T \frac{N_{0,л|в}^{\nabla}}{\left(0,5 - F\left(\sqrt{2b_{л|в}^{\nabla}} \cdot r\right)\right)} \cdot \sqrt{\frac{b_{л|в}^{\nabla}}{\pi}} \cdot l_{л|в}^{\nabla} \cdot \frac{T_0}{(T_0 - T)^2} \exp\left(-b_{л|в}^{\nabla} \cdot l_{л|в}^{\nabla 2} \left(\frac{T_0}{T_0 - T}\right)^2\right) \cdot \exp\left(-\frac{\delta_{акт}}{kT}\right) dT. \quad (16)$$

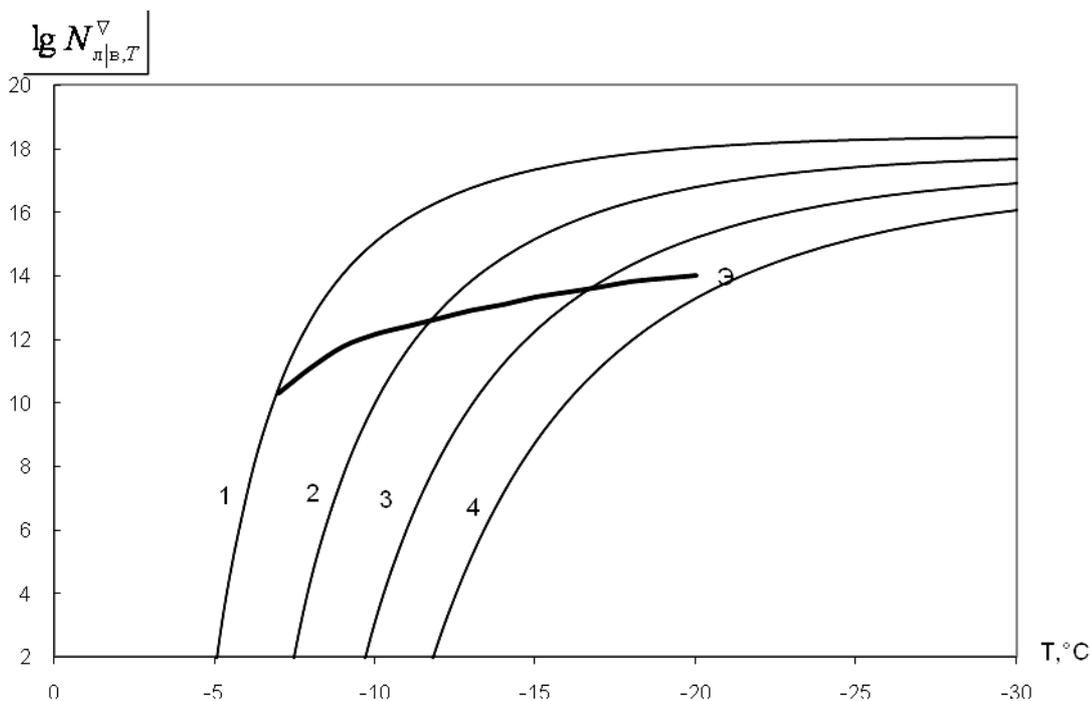


Рисунок 5.

Плотность жизнеспособных ледяных зародышей, образующихся в результате иммерсионного механизма нуклеации на ЛОЯ при различных значениях контактного параметра $\Theta_{им.}$: 1. $\Theta_{им.}=0,8$; 2. $\Theta_{им.}=0,7$; 3. $\Theta_{им.}=0,6$; 4. $\Theta_{им.}=0,5$; Э – экспериментальные данные. $N_{л|в,Т}^{\nabla}$ в $1/м^2$.

Результаты расчетов поверхностной плотности $N_{л|в,Т}^{\nabla}$ как функции температуры T приведены на рисунке 5. Расчеты выполнены при различных значениях $\Theta_{им.}$ при $h=100$ и $\gamma=0,5$. Для сравнения теории и эксперимента снова использованы данные опытов ДеМотт (DeMott), приведенные в работе [Young, 1993]. В этих опытах оценивалась поверхностная плотность активных мест при иммерсионном замерзании. Отмечается, что экспериментальные данные отражают не средние, а скорее, минимальные значения поверхностной плотности активных мест. Кривая 'э' пересекает расчетные кривые для интервала контактного параметра $\Theta_{им.}$ от 0,8 до 0,5. К сожалению, действительные значения $\Theta_{им.}$ неизвестны. Если с понижением температуры, как можно ожидать, $\Theta_{им.}$ уменьшается, то согласие теории с экспериментом представляется вполне удовлетворительным.

Для практического использования модели гетерогенной нуклеации льда требуется уточнение параметров Θ , h и γ , а также их зависимостей от температуры.

В заключении сформулированы основные выводы и результаты работы.

При проведении исследования процессов гомогенной нуклеации получены следующие результаты:

- осуществлен анализ экспериментальных данных по спонтанной конденсации водяного пара, спонтанному образованию ледяных зародышей в переохлажденной воде;

- представлен обзор состояния проблемы гомогенных фазовых переходов: рассматривается классическая теория нуклеации, спонтанная конденсация, спонтанное образование ледяных зародышей в пересыщенном паре, гомогенное замерзание чистой воды;

- разработана математическая модель гомогенной нуклеации при спонтанной конденсации, при спонтанном образовании ледяных зародышей в пересыщенном паре, при спонтанном образовании ледяных зародышей в переохлажденной воде;

- с помощью предложенной модели осуществлены расчеты скоростей гомогенной конденсации водяного пара и гомогенного замерзания чистой воды. Проведено сопоставление полученных результатов с данными экспериментов;

- полученные результаты расчетов скоростей спонтанной конденсации водяного пара, гомогенной нуклеации ледяных зародышей с достаточной для практики точностью описывают данные экспериментов.

При исследовании процессов гетерогенной нуклеации получены следующие результаты:

- осуществлен анализ экспериментальных данных по гетерогенной нуклеации льда в атмосфере при различных режимах льдообразования;

- представлен обзор состояния проблемы гетерогенной нуклеации: рассматриваются разные способы формирования ледяных зародышей – осаждение водяного пара на поверхность инородных частиц, гетерогенная конденсация, иммерсионное замерзание, контактная нуклеация, а также различные аэрозоли, выступающие в роли льдообразующих ядер;
- показано, что не существует универсальной теории нуклеации льда на аэрозольных частицах;
- разработанная модель квазистатической нуклеации применяется для двух способов льдообразования – депозиции водяного пара и иммерсионного замерзания;
- с помощью предложенной модели произведены расчеты концентрации ледяных зародышей при осаждении водяного пара на поверхность льдообразующего реагента и при иммерсионном механизме замерзания.
- Основываясь на выводах, полученных в результате исследований процессов гомогенной и гетерогенной нуклеации в облаках, представленной в настоящей работе, планируется дальнейшее усовершенствование модели, применение результатов моделирования в облачных моделях с целью исследования и разработки методов управления атмосферными процессами путем активного воздействия.

Публикации по теме диссертации

1. Бекряев В.И., Крюкова С.В. Возможность применения квазистатической модели к гетерогенной нуклеации льда. // Составляющие научно-технического прогресса. Сборник материалов 5-ой Международной заочной научно-практической конференции: 29-30 апреля 2009 г. - Тамбов, изд. ТАМБОВПРИНТ. - 2009. – С.45-46.
2. Бекряев В.И., Крюкова С.В. К вопросу о гомогенной нуклеации при фазовых превращениях воды в атмосфере. // Современные проблемы науки, образования и производства. Материалы Международной научно-практической конференции студентов, аспирантов, специалистов,

преподавателей и молодых ученых: 29 мая 2009г. - Нижний Новгород: НФ УРАО. – 2009. - том.2. - С.418-419.

3. Бекряев В.И., Крюкова С.В. Квазистатическая модель нуклеации. Часть 1. Гомогенная нуклеация. // Метеорология и гидрология. - 2009. - №10. - С.37-44.

4. Бекряев В.И., Крюкова С.В. Квазистатическая модель нуклеации. Часть 2. Возможность применения модели для некоторых механизмов льдообразования. // Метеорология и гидрология. - 2009. - №11. - С.30-36.