

İS (SİYAH KARBON) TOPAKLANMALARINDA YAPISAL DURUMLARIN IŞINIM ÖZELLİKLERİNE ETKİLERİ

*Nimeti DÖNER**

Alınma: 27.09.2016; kabul: 10.03.2017

Öz: Yanma ürünü olan is (siyah karbon) parçacıkları topaklanarak atmosfere yayılırlar. Kanserojene yol açan (PAH) molekül içermeleri nedeniyle toksikolojik etkilere sahiptirler ve ışınım özelliklerinin artması nedeniyle global ısınmaya güçlü etkilerinin olduğu bilinmektedir. Bu çalışmada, siyah karbon topaklanmalarının ışınım özelliklerine topaklanma yapısının ve büyüklüğünün etkileri, Discrete Dipole Approximation (DDA) yöntemi ile analiz edilmiştir. $N = 200$ parçacıktan oluşan iki ayrı yapıdaki topaklanma örneği 0.532 ve 1.064 μm dalga boylarında ışınım saçılımı açısından incelenmiştir. Her iki topaklanma yapısı, üç farklı yapısal durumda yani parçacıklar nokta temaslı, iç içe geçmiş ve topaklanmanın hacimsel büyütülmüş durumları için topaklanmaların ışınım özellikleri hesaplanmıştır. Yapılan analizlerden, is topaklanmalarının ışınım özelliklerinin topaklanma hacim eşdeğer yarıçapları ve incelenen dalga boyundan oldukça etkilendiği görülmüştür. Parçacık temaslı topaklanma genişlemesi ile parçacıkları iç içe geçen topaklanmaların ışınım özelliklerinin aynı değerlere sahip olduğu saptanmıştır.

Anahtar kelimeler: ışınım özellikleri, siyah karbon, is topaklanmaları, polarizasyon, DDA

Effects of Morphology on the Radiative Properties of Fractal Soot Aggregates

Abstract: The soot (black carbon) particles which are produced by combustion emits into atmosphere in forms of aggregates. The aggregates contain of PAH molecules that are causing carcinogens have toxicological effects. It is well known that soot aggregates which are enlarged of radiative properties effect on global warming. In this study, the impact of morphology on the radiative properties of fractal soot aggregates was investigated using the discrete dipole approximation (DDA). The radiative properties of aggregates of $N = 200$ primary particles were numerically evaluated at 0.532 and 1.064 μm wavelength. The radiative properties of three different cases, formed by point-touching, overlapping and aggregate expansion for soot aggregates were calculated. The effects of radiative properties of soot aggregates vary strongly with the volume equivalent radius a_{eff} and wavelength. It was found that the expansion of aggregates has the same effect on radiative properties as overlapping.

Keywords: Radiative properties, black carbon, fractal soot aggregates, polarization, DDA

1. GİRİŞ

Yanma işlemi sonunda doğal bir ürün olan aerosoller üretilir. Monomerler olarak da isimlendirilen aerosoller farklı büyüklüklerde ve yapıdadır. Hava kirleticiler olarak bilinen siyah karbon (soot) aerosolleri fosil yakıtlar ve bio gazın tam yanamamasından oluşur. Yanan maddenin katı, sıvı veya gaz oluşu ve yanmanın tipi (alevli ya da alevsiz) ya da yanma işleminin stokiyometresi yani oksijenle zenginleştirmeden yakıtla zenginleştirme durumlarına kadar tüm faktörler siyah karbonun yapısını (morfolojisini) ve ışınım özelliklerini etkiler (Adachi vd. 2010).

Yanma ürünü aerosoller kümeler halinde topaklanır ve her bir topaklanma 10 ile 100 arasında değişen sayıda, küçük çaplı parçacıklardan oluşmaktadır. Siyah karbon parçacıkları küresel parçacıklar olarak kabul edilir ve topaklanma yapısı topaklanma kütlesi M , parçacık

* Nimeti Döner Dumlupınar Üniversitesi, Mühendislik Fakültesi, Makine Mühendisliği Bölümü, 43270 Kütahya
Correspondence Author: Nimeti Döner (nimeti.doner@dpu.edu.tr)

çapı (a), topaklanma çarpanı (k_f), topaklanma boyutu (D_f), topaklanmadaki parçacık sayısı (N) ve dönme yarıçapı (R_g) ile tanımlanır. Topaklanmalar, $M \sim (2R_g/a)^{Df}$ şeklinde verilen bağıntı ile de ifade edilebilir. Topaklanma boyutu (D_f) 1.5 ile 2.4 değerleri arasında değişir ve bu değer arttıkça topaklanma zincir görünümünden kompakt yapılara dönüşmektedir. Topaklanma çarpanının (k_f) artması, topaklanmanın kabarıklığının azaldığını gösterir. Genelde, fazla havalandırılmış ya da oksijenle zenginleştirilmiş yanma durumunda, topaklanmalar uzatılmış zincire benzer kümeler (Hausdorff yapısı) şeklinde oluşur ve topaklanma boyutu 1.6 - 1.9 arasında değişir. Alevsiz ve yakıtın zenginleştirildiği yanmadan üretilen topaklanmalarda, yapı daha kompakttır ve topaklanma boyutu 2.1 - 2.3 arasında gerçekleşir (Litton ve Perera, 2014). Siyah karbon topaklanmalarının atmosfere gönderilmeden önce yapısının, büyüklüğünün ve kimyasının bilinmesi, sağlığa ve atmosferik olaylara olan olumsuz etkilerinin azaltılması açısından önemlidir. Siyah karbonun topaklanma özellikleri hem deneysel verilerle hem de daha ayrıntılı teorik hesaplamalar içeren nümerik metotlar ile hesaplanabilmektedir. Yanma sonucu oluşan ilk siyah karbon parçacıkları TEM (Transmission Electron Microscopy) görüntüleri ile tespit edilebilir. Ancak bu yöntem pahalı ve yapısal değişikliklere sahip parçacıkların örneklemesini de içermektedir. İlk oluşan parçacıkların büyüklüğünü ölçmede kullanılan ve hassas sonuçlar veren diğer bir yöntem LII (Laser-Induced Incandescence)'dir. Laser indüklenmiş test ölçüm cihazı (LII) birçok uygulamada is hacim oranını ölçmek ve is ışınım özelliklerinin dalga boyuna bağımlılığını değerlendirmek için yaygın olarak kullanılmaktadır. Bu yöntemin çalışmasında, lazer ışınının absorpsiyonu parçacık çapı ile bağlantılıdır (Olofsson 2014). Bu deneysel yöntem ilginç olmasına rağmen, parçacık büyüklüğünden kaynaklanan ışınım saçılımının zor yorumlanması nedeniyle birçok termodinamik parametrelerin de dikkate alınmasını gerektirir (Bescond vd., 2013). LII cihazı is parçacık büyüklüğü hakkında geniş bilgi edinmek için kullanılır iken topaklanma büyüklüğü ya da is morfolojisi için tam olarak kullanılamamaktadır (Liu ve Smallwood, 2010).

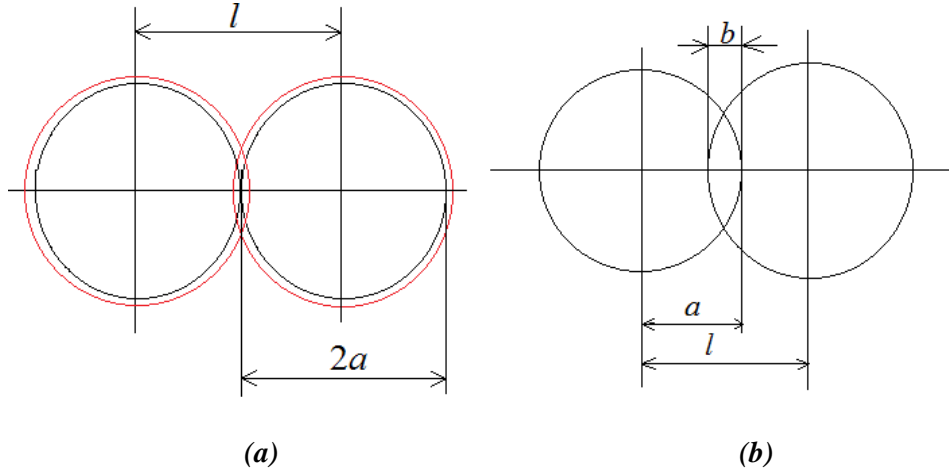
Siyah karbonun yansıtma indeksi Dalzell ve Sarofim (1969) tarafından çalışılmış olup, asetilen ve propan isleri kullanılarak yapılan deneysel çalışmalarda, 0.4358 μm ile 10.0 μm dalga boyu aralığında ölçümler yapılmıştır. Bu deneysel verilere dayanan sonuçlara göre, siyah karbonun yansıtma indeksi $m = 1.60 - 0.60i$ olarak tanımlanabilir.

Siyah karbon topaklanmalarının ışınım özelliklerini değerlendirmede nümerik yöntemler yaygın olarak kullanılmaktadır ve en çok kullanılanlar Rayleigh-Debye-Gans (RDG) yaklaşımı, Genelleştirilmiş çok parçacıklı Mie (GMM) metodu, Discrete Dipole (DDA) Yaklaşımı ve T-Matrix metodudur. Bunlardan RDG yaklaşımı en çok uygulanan yöntemdir. RDG yaklaşımında, saçılan ışınımın açısal dağılımı ve topaklanmaların kütle saçılımı, kütle yok olması ve kütle soğurma katsayıları ile hesaplanır. T-Matrix metot da iki farklı alt çözüm teknikleri kullanılır. En yaygın uygulanan Superposition alt çözümlü T-Matrix metot (STM), çeşitli yansıtma indeksli ve topaklanma özellikli siyah karbon yapılarına, farklı dalga boyu aralıkları için uygulanmıştır (Liu ve Mishchenko, 2005, 2007). Bu yöntemde her bir küreden saçılan ışınımın oluşturduğu topaklanmanın toplam saçılım alanı Maxwell denklemleri ile hesaplanır. GMM yöntemi, T-Matrix metoda benzer olup, parçacığın saçılım özelliklerini diğer yöntemden farklı olarak Mie teorisi ile hesaplar (Liu ve Snelling, 2008).

Aerosol topaklanmaları nümerik olarak Balistik topaklanma (BA), Difüzyon-sınırlı topaklanma (DLA), Reaksiyon-sınırlı topaklanma (RLA) ve küme-küme topaklanması (CCA) şeklinde farklı yapılarda oluşturulabilir. Balistik topaklanma merkezde sabitlenmiş bir parçacık etrafında diğer parçacıkların teması ile oluşturulur. Difüzyon sınırlı topaklanmada sabit bir parçacık yerine rastgele yürüyen bir parçacık ve temas ettiği diğer parçacıkların bir araya gelmesi ile meydana gelir (Liuo vd, 2011). Küme-küme topaklanmada, rastgele yerleştirilmiş parçacıkların oluşturduğu bir yapı söz konusudur. Dolayısıyla bu topaklanma daha gerçekçi olması ve hesaplamalarda daha az zaman gerektirmesi nedeniyle daha çok tercih edilmektedir (Liu vd. 2008).

Siyah karbon topaklanmaları ve parçacıkları özellikle küçük topaklanmaların ışınım şiddeti, açıları ve polarizasyon oranları Di Stasio (2002) tarafından deneysel olarak çalışılmış ve incelenmiştir. Kahnert (2010) Superposition T -Matrix metodunu kullanarak, yansıtma indeksi $m = 1.77 + 0.435i$ olan 25 nm çaplı parçacıklardan oluşan is topaklanmalarını incelemiş ve parçacıklar arasındaki etkileşimin soğurma etkinliğini artırdığını tespit etmiştir. Francis vd. (2011), dalga boyu $\lambda = 0.632 \mu\text{m}$ için dört is topaklanma örneğini kullanarak polarizasyon eğrilerini elde etmişlerdir. İis topaklanma örneklerinden ikisi fazla havalandırılmış yanma ($D_f < 2$) sonucu elde edilmiş diğer ikisi de fazla havalandırılmamış yanma ($D_f > 2$) sonucu elde edilmiştir. Deneysel çalışmalarının sonucunda, yazarlar polarizasyonun siyah karbon topaklanma çapı ile arttığını tespit ettiler. Ayrıca, fazla havalandırılmış yanma sonucu oluşan is topaklanmalarının fazla havalandırılmamış yanma sonucu oluşan is topaklanmalarına kıyasla daha yüksek polarizasyon değerlerine sahip olduğunu da buldular. İis topaklanmalarının infrared bölgedeki yapısal değişimi, farklı ve çeşitli yansıtma indeksli, açık ve kapalı yapıda, çeşitli parçacık sayılı topaklanmalar için Prasanna vd. (2014) tarafından çalışılmıştır. Çoklu saçılma veya dipol mesafesinin kapalı yapıdaki topaklanmada açık yapıya göre daha önemli olduğunu tespit etmişlerdir.

Metan, etilen ve propanın yanması ile oluşan siyah karbon topaklanmalarının ışınım özellikleri ve polarizasyon eğrileri, Lu ve Sorensen (1994) tarafından deneysel ve nümerik çalışma ile incelenmiştir. Bu çalışma polarizasyonun çoklu saçılma ile arttığını ve gerçek topaklanmalarda parçacıklar arasındaki iç içe geçme olayı ile aynı etkilere sahip olduğunu ortaya koymaktadır. Siyah karbon parçacıklarında iç içe geçmenin etkisi, Oh ve Sorensen (1997) tarafından Şekil 1 (a) da görüldüğü gibi, nümerik olarak formülize edilmiş ve iç içe geçme parametresi olarak tanımlanmıştır [$\delta = 2a/l$, l iki parçacık eksenleri arasındaki mesafe] ve topaklanma çarpanı ile boyutu üzerine etkisi ayrıntılı bir şekilde incelenmiştir. δ parametresi 1 olduğunda, parçacıklar nokta temaslıdır ve topaklanmanın k_f ile D_f parametreleri iç içe geçme oranı ile artmaktadır.



Şekil 1:

İiç içe geçen iki parçacık için iki ayrı olası durum
 (a) formülü $\delta = 2a/l$ (b) formülü $C_{ov} = (2a-b)/2a$

Brasil vd. (1999) tarafından farklı iç içe geçme parametresi tanımlanmıştır. Şekil 1 (b) de görüldüğü gibi, iç içe geçen büyüklük b olmak üzere parametre [$C_{ov} = (2a-b)/2a$] şeklinde ifade edilmiştir. Topaklanmaların atmosfere yayınımindan sonraki süreçte, kompakt hale gelirken oluşan iç içe geçme durumu, parametresi ve yapısal etkileri üzerine Schmid vd. (2004), Eggersdorfer vd. (2013) gibi bazı araştırmacılar çalışmalar yapmışlardır. Bescond ve arkadaşları (2013), etilen ile palas is topaklanmalarının yapısal ve ışınım özelliklerini deneysel olarak

çalışmışlardır. Bu analizlere dayanarak, parçacıklar arasındaki bağlantılar ile ilgili iki parametre ortaya konmuştur. Birincisi, iç içe geçme (overlapping) formülü ikincisi de boyun (necking) parametresidir. İç içe geçme formülü Brasil vd. (1999) formülü ile aynı olup, Oh ve Sorensen (1997) tarafından tanımlanan formül ile aynı değildir. Boyun parametresi parçacıkların çevresindeki malzemelerin temas bölgesi civarında toplanması olarak tanımlanır. Bescond vd. (2013) tarafından yapılan bu çalışmada topaklanma boyutu, parçacık sayısı ve çapı, yansıtma indeksi, dalga boyu ve iç içe geçmenin etkileri DDA yöntemi ile çalışılmıştır. Litton ve Perera (2014), RDG ile DDA yöntemlerini kullanarak parçacıkların nokta temaslı durumları ile iç içe geçmiş durumlarını, yansıtma indeksi $m = 1.692 + ki$ (burada $k = 0.25, 0.50, 0.75, 1.25$) olan, 74 parçacıklı topaklanmalar için dalga boyları $\lambda = 0.532$ ve $0.635 \mu\text{m}$ arasında incelemiştir. Bu çalışmada kullanılan iç içe geçme parametresi, Oh ve Sorensen (1999) tarafından verilen ifade ile aynıdır ve 1 olarak alınmıştır. Bu önemli çalışma ile deneysel ve nümerik sonuçların birbiri ile uyumlu olduğu, RDG sonuçlarının deneysel sonuçlara daha yakın olduğu tespit edilmiştir. Topaklanmaların yüzeylerinde kimyasal reaksiyonla genişleme gerçekleşebilir ve az havalandırılmış yanma sonucu oluşan bu tip topaklanmalar Al Zaitone vd. (2009) tarafından çalışılmıştır.

DDA yöntemi herhangi bir geometriye sahip topaklanmaların ışınım özelliklerini kolayca hesaplama özelliğine sahip olması nedeniyle bu çalışmada seçilmiştir. Ayrıca, DDA hacim integrali içeren bir metot olması sebebiyle is topaklanmaların ışınım özelliklerini tüm yönlerde yeterli hassasiyette hesaplayabilir (Ayrancı vd. 2007, Soewono ve Rogak, 2013, Bescond vd. 2013, Yon vd. 2015). Atmosferik yaşlanma olayında is topaklanmaları daha kompakt hale gelir ve atmosferde bulunan su buharı, uçucu organik maddeler ve sülfat gibi çeşitli maddelerle kaplanarak geri dönüşümü olmayan yapısal değişimlere maruz kalırlar (Scarnato vd. 2013). Atmosferik yaşlanma öncesinde, is topaklanmalarının küçük ölçekli yapısal özelliklerini tespit etmek ve hesaplayabilmek, bu sürece etki etmek açısından önemlidir. Böylece parçacıkların bilinen insan sağlığına zararlı ve sera etkisini artırıcı etkilerini azaltmak için gereken tespitler yapılabilecektir. Siyah karbon (is) topaklanmaları ve onların ışınım özelliklerini inceleyen, diğer yöntemlerle birlikte DDA metodunu açıklayan Türkçe bir çalışmanın daha önceden yayınlanmadığı görülmüştür. Bu konu hakkında açıklayıcı ilk Türkçe kaynak olması düşünülen bu çalışma da 200 parçacıktan oluşan büyük topaklanma örnekleri ($N = 200$) için iki farklı yanma ürünü yani farklı k_f ile D_f parametrelerine sahip is (siyah karbon) topaklanmaları, üç farklı yapısal durumda ışınım özellikleri açısından incelenmiştir.

2. DISCRETE DIPOLE YAKLAŞIMI (DDA)

Yüzeylerin ışınım özelliklerini hesaplamak ve saçılımlarını modellemek için DDA yöntemi kullanılır. Bu yöntem topaklanmaları, kafes yapısı şeklinde ve uçlarında –dipolların- oluşturduğu bir küme olarak modeller. Elektrik alanı her bir uçta bir moment oluşturur. Her bir uçtaki toplam elektrik alanı gelen ışınım alanı, yüzeyden yansıtılan alan ve uçlar arasındaki etkileşimin oluşturduğu alandan ibarettir. Önce her uçtaki moment bulunur ve yüzeylerin dışında oluşan saçılma alanının sınırı belirlenir. Saçılma özelliğini modelleyebilmek için kafes uzunluğunun elektrik alanı dalga boyu ile karşılaştırıldığında küçük değer olması istenir. Bu şart $|m/kd| < 1$ ifadesi ile verilir, burada d kafes uç uzunluğu, m yansıtma indeksi ve k dalga sayısı ($2\pi / \lambda$) olarak verilir. Işınım özelliklerini hesaplamak için gerekli uçların sayısı topaklanmanın büyüklüğü arttıkça artar ve matris denklemlerinin çözümünde $O(N^2)$ 'lik işlem gerektirir. Buradaki N hesaplamada kullanılan dipolların toplam sayısını ifade eder (Draine vd. 1993, Draine ve Flatau, 1994). Eğer incelenen geometri güçlü bir soğurucu ya da çok daha hassas diferansiyel saçılma kesitinin hesabını gerektiren bir yapı ise, istenilen şart $|m/kd| < 0.5$ olarak alınmalıdır.

Saçılan ışınım Stokes vektörleri (S_i) ile tanımlanır ve yüzeylerden gerçekleşen saçılma ise diferansiyel saçılma kesitleri ($dC_{sca} / d\Omega$) ile ifade edilir. Bir diferansiyel saçılma kesiti belli bir

doğrultuda, belli bir katı açıda birim zamanda saçılan enerji olarak tanımlanır. Burada Ω katı açığı ifade eder. Polarizasyon hesabında kullanılan diferansiyel kesit denklemleri aşağıda Denklemler (1-4) ile verilmiştir (Draine ve Flatau, 2014).

Yatay-yatay polarizasyonun diferansiyel kesiti (C_{hh})

$$C_{hh} = \frac{dC_{sca}}{d\Omega} = \frac{1}{k^2} |S_2|^2 \quad (1)$$

Yatay-dikey polarizasyonun diferansiyel kesiti (C_{hv})

$$C_{hv} = \frac{dC_{sca}}{d\Omega} = \frac{1}{k^2} |S_4|^2 \quad (2)$$

Dikey-yatay polarizasyonun diferansiyel kesiti (C_{vh})

$$C_{vh} = \frac{dC_{sca}}{d\Omega} = \frac{1}{k^2} |S_3|^2 \quad (3)$$

Dikey-dikey polarizasyonun diferansiyel kesiti (C_{vv})

$$C_{vv} = \frac{dC_{sca}}{d\Omega} = \frac{1}{k^2} |S_1|^2 \quad (4)$$

şeklinde tanımlanır ve bu değerler daha sonra Denklemler (5-7)'de ifade edilen yok olma, soğurma ve saçılma kesit alanlarının hesabında kullanılır. Buradaki Q_{ext} , Q_{abs} ve Q_{sca} ifadeleri sırasıyla yok olma, soğurma ve saçılma etkenlik faktörleridir. Ayrıca DDA metodunda, hacimsel eşdeğer yarıçap “efektif yarıçap (a_{eff})” ifadesi ile tanımlanır. Yok olma kesit alanı, soğurma ve saçılma kesit alanlarının toplamıdır ($C_{ext} = C_{abs} + C_{sca}$).

$$C_{ext} = Q_{ext} \pi a_{eff}^2 \quad (5)$$

$$C_{abs} = Q_{abs} \pi a_{eff}^2 \quad (6)$$

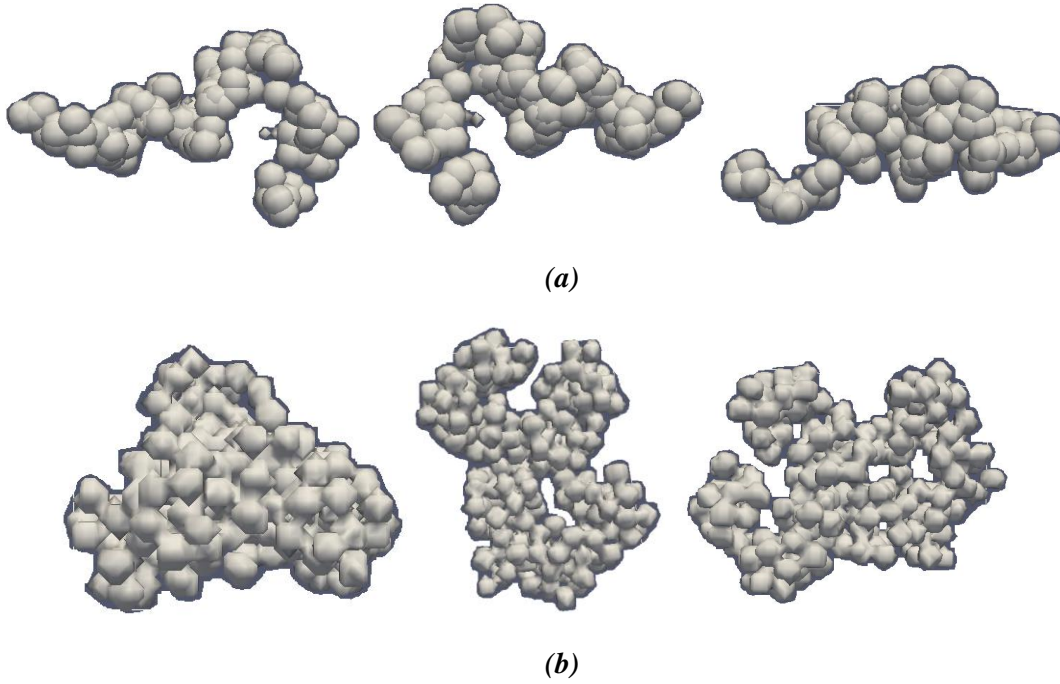
$$C_{sca} = Q_{sca} \pi a_{eff}^2 \quad (7)$$

3. SONUÇLAR ve YORUMLAR

Siyah karbon topaklanmalarının ışınım özellikleri DDA metodu ile analizinde, fortran programlama dilinde yazılmış DDSCAT (open source-7.3 versiyonu) bilgisayar programı çalıştırılmıştır. Hesaplamalara başlamadan önce $|m/kd| < 0.5$ kriteri test edilir. Algoritma gelen ışınım ile topaklanma yüzeyinden farklı yönlere saçılan elektromanyetik ışınımın şiddetini ve ortalama açısal şiddet dağılımını elde etmek için çoklu bölgelerde saçılan şiddetlerin ortalamalarını hesaplar. DDSCAT algoritmasının giriş verileri olarak, ilk yayılan (primary) parçacıkların yarıçapları, her bir parçacık merkezinin koordinatları, parçacıkların yansıtma indeksi, çalışılan elektromanyetik ışınım dalga boyu ve topaklanmanın hacimsel eşdeğer yarıçapları (a_{eff}) tanımlanır. Topaklanmaların hacimsel eşdeğer yarıçapları a_{eff} , her bir topaklanma için [$a_{eff} = N^{1/3} a$] formülü ile hesaplanır. Her bir parçacığın x , y ve z doğrultusundaki koordinatları ve yarıçapları mikron birimlerinde, Ballistic Aggregates Migration (BAM) tipindeki topaklanma (Shen vd., 2008) formatında oluşturulmuş veri dosyasını hazırlamak için kullanılır ve bu veri dosyası, N_SPHERES alt programında çalıştırılır. Ortalama açısal dağılımı yeterli hassasiyette hesaplayabilmek için gerekli ve önemli iki parametre söz konusudur. Birinci parametre, parçacıkları ve dolayısıyla topaklanmayı temsil edebilecek sayıda yeterli dipol

sayısıdır. İkinci parametre de açılmal dağılımda ışınımın yeterli saçılımını temsil edecek açılmal bölmelerdir. Açılmal dağılım üç doğrultuda yani beta (β) için 0 ile 360°, theta (Ω) için 0 ile 180° ve phi (Φ) için 0 ile 360° dereceler arasında olacak şekilde hesaplanır. Açılmal dağılım, sayısal analiz yöntemlerinde kullanılan ve işlemlerin hassasiyetini etkileyen ızgaralar (gridler) gibidir. Açılmal dağılım hassasiyeti için önce 7×7×7 dağılımı, daha sonra 15×15×15 işlemi uygulanmıştır. Her iki dağılım işlemin sonuçları hemen hemen aynı bulunduğuna için, hesaplama süresini daha fazla uzun tutmamak adına 7×7×7 açılmal dağılımı seçilmiştir. Gereklil dipol sayısı ise hazırlanan veri dosyasında tanımlanan (SPHERE) sabit sayısına bağılı olarak program tarafından hesaplanmaktadır. Tanımlanması gereken bu sabit sayı topaklanmayı ve parçacıkların toplam sayısını ifade edebilecek bir tam sayı olmalıdır.

Çalışmada incelenen iki tip topaklanmanın topaklanma çarpanları ve boyutları birincisi için $k_f = 1.3$ ve $D_f = 1.78$ olup, ikincisi için $k_f = 2.3$ ve $D_f = 2.1$ olarak alınmıştır ve farklı açılardan görüntüleri Şekil 2 (a) ve (b)'de verilmektedir. Birinci topaklanmada 15 nm ve ikinci topaklanmada 20 nm yarıçapında olan parçacıklar homojen büyüklüktedir. Topaklanmaların yansıtma indeksi $m = 1.60 - 0.60i$ olarak alınmıştır (Dalzell ve Sarofim 1969, Doner ve Liu 2017). Çalışmada is topaklanmalarının yapısal durumları: orijinal topaklanma (orginal aggregate-Case 1), iç içe geçme (overlapping aggregate-Case 2) ve hacimsel genişleme (expanded aggregate-Case 3) olarak ele alınmış, Case 1, 2 ve 3 şeklinde tanımlanmıştır. İç içe geçme ve hacimsel büyüme durumlarını %20'lik bir artış için incelenmiştir. Ancak iç içe geçme ve hacimsel büyüme durumlarını gösteren şekiller, karışıklığa sebebiyet vermemek için burada sunulmamıştır.

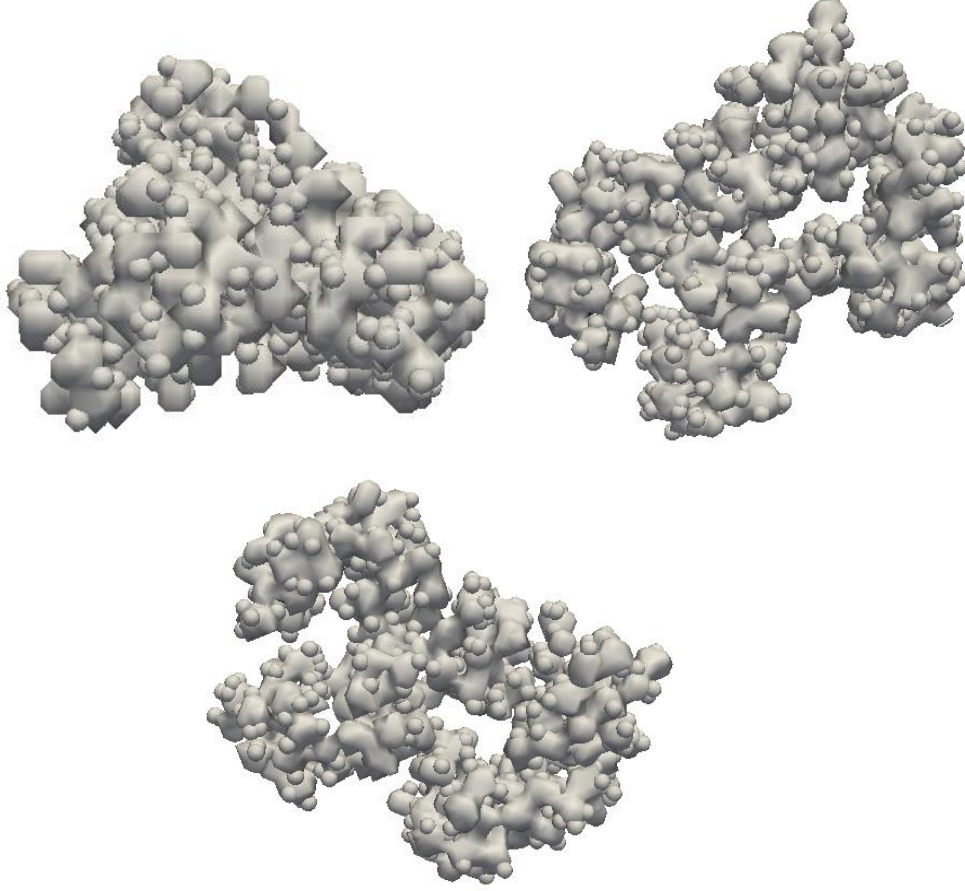


Şekil 2:

Atmosfere ilk yayınımda oluşan iki farklı yapıdaki (Case 1) topaklanmaların farklı açılardan görüntüleri

(a) $k_f = 1.3$ ve $D_f = 1.78$ topaklanma ve (b) $k_f = 2.3$ ve $D_f = 2.1$ topaklanma.

Aşağıda Şekil 3'de ikinci tip ($k_f = 2.3$ ve $D_f = 2.1$) topaklanma örneği için DDA yönteminde kullanılan dipolların şekilleri gösterilmektedir. Hesaplama kullanılan dipol sayıları birinci tip topaklanmada, Case 1, 2 ve 3 için 29553, 47987 ve 29552 olup, ikinci tip topaklanmada ise her durum için sırasıyla 853875, 1309523 ve 853876 değerlerini almıştır.



Şekil 3:

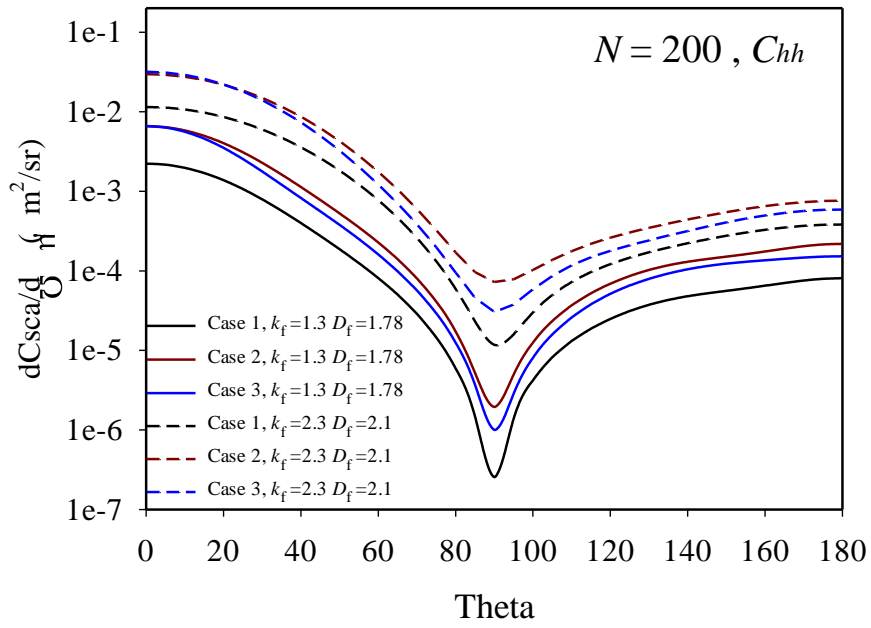
İlk yayınımda oluşan $k_f = 2.3$ ve $D_f = 2.1$ tip topaklanmanın (Case 1) DDA yönteminde kullanılan dipol görüntülerinin farklı açılardan görünümüleri

Tablo 1. İncelenen topaklanmaların hacimsel eşdeğer yarıçapları (a_{eff})

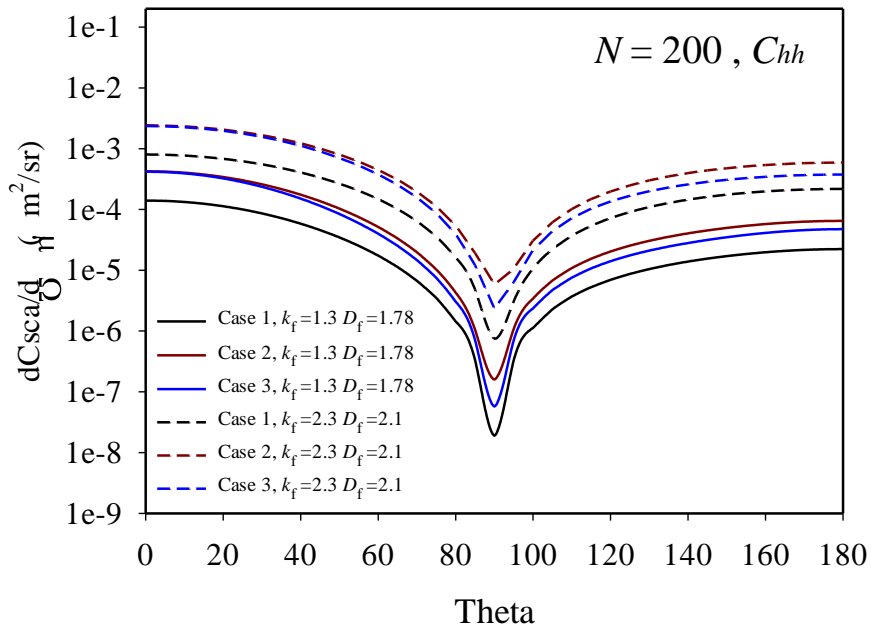
| | $N = 200$ | |
|--------|-----------------------------|----------------------------|
| | $k_f = 1.3$ ve $D_f = 1.78$ | $k_f = 2.3$ ve $D_f = 2.1$ |
| | a_{eff} | |
| Case 1 | 0.08772 | 0.11696 |
| Case 2 | 0.10527 | 0.14035 |
| Case 3 | 0.10527 | 0.14035 |

Tablo 1’de her iki tip topaklanmanın üç yapısal durumu için hacimsel eşdeğer yarıçapları verilmektedir. Tablo 1’den, iç içe geçme (Case 2) ve hacimsel genişleme (Case 3) durumlarında, her iki topaklanmanın hacimsel eşdeğer yarıçaplarının aynı olduğu görülür. Şekil 4 (a) ve (b)’de her iki tip topaklanmanın Case 1, 2 ve 3 için 0.532 ve 1.064 μm dalga boylarında, C_{hh} ve C_{vv} eğrilerinin theta açısı ile değişimi verilmektedir.

$\lambda = 0.532 \mu\text{m}$

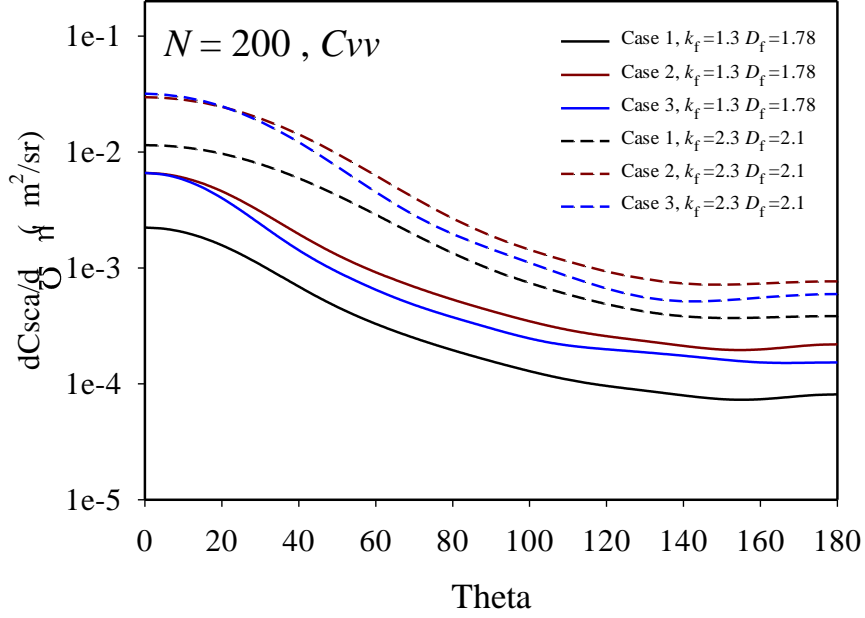


$\lambda = 1.064 \mu\text{m}$

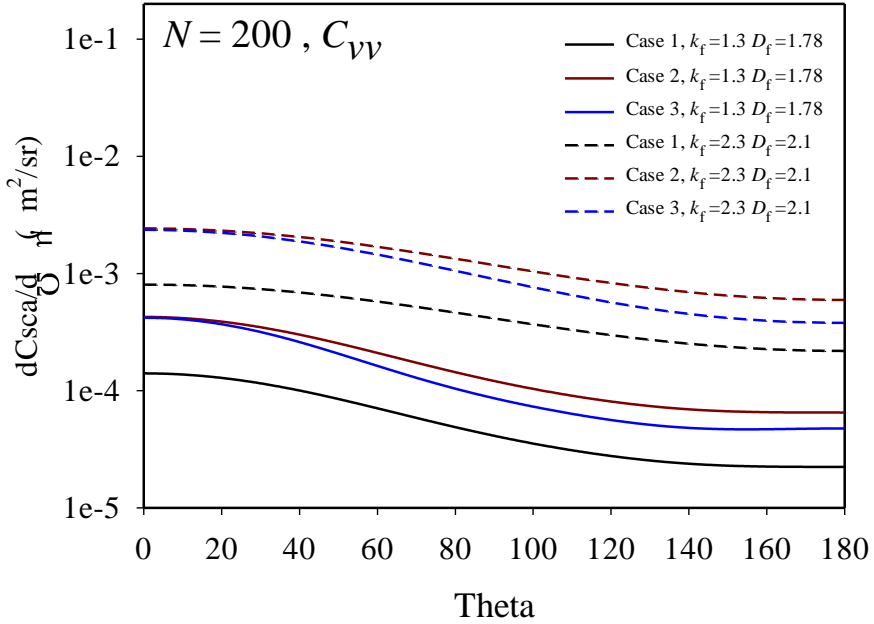


(a)

$\lambda = 0.532 \mu\text{m}$



$\lambda = 1.064 \mu\text{m}$



(b)

Şekil 4:

İki tip topaklanmanın Case 1, 2 ve 3 için iki dalga boyundaki diferansiyel kesitlerinin değişimi (a) C_{hh} ve (b) C_{vv} eğrileri

Şekil 4 (a) ve (b) grafiklerinden, iki tip topaklanmada parçacık sayısı aynı ve parçacık büyüklüğü de yaklaşık olarak aynı olmasına rağmen, C_{hh} ve C_{vv} eğrilerinin dolayısıyla ışınım özelliklerinin dalga boyu artıkça azaldığı görülür. Şekil 4 (a) da ki grafiklerden görüldüğü üzere C_{hh} (yatay doğrultuda gelen ışının yatay doğrultuda saçılımı) eğrileri, 90° civarında minimum değerlere ulaşmaktadır. Bu sonuçlar Van-Hulle vd. (2002) tarafından yapılan deneysel ve nümerik çalışmaların sonuçları ile uyumludur. Şekil 4 (b)'deki C_{vv} (dikey doğrultuda gelen ışının dikey doğrultuda saçılımı) eğrilerinin, 140° 'den büyük açılarda fazla bir değişim göstermediği görülür.

Tablo 2. İki tip topaklanmanın Case 1,2 ve 3 yapılarında, iki dalga boyu için yok olma, soğurma ve saçılma kesit alanları

| | $k_f = 1.3$ ve $D_f = 1.78$ | | | $k_f = 2.3$ ve $D_f = 2.1$ | | |
|--------|-------------------------------|-----------|----------------|-------------------------------|-----------|----------------|
| | $\lambda = 0.532 \mu\text{m}$ | | | $\lambda = 0.532 \mu\text{m}$ | | |
| | C_{ext} | C_{abs} | C_{sca} | C_{ext} | C_{abs} | C_{sca} |
| Case 1 | 0.03351 | 0.03047 | 3.04310^{-3} | 0.08868 | 0.06727 | 0.02141 |
| Case 2 | 0.06247 | 0.05380 | 8.66910^{-3} | 0.16095 | 0.11019 | 0.05075 |
| Case 3 | 0.05919 | 0.05232 | 6.88310^{-3} | 0.15489 | 0.11062 | 0.04428 |
| | $\lambda = 1.064 \mu\text{m}$ | | | $\lambda = 1.064 \mu\text{m}$ | | |
| | C_{ext} | C_{abs} | C_{sca} | C_{ext} | C_{abs} | C_{sca} |
| Case 1 | 0.01572 | 0.01526 | 4.66510^{-4} | 0.04020 | 0.03644 | 3.76010^{-3} |
| Case 2 | 0.02874 | 0.02735 | 1.38710^{-3} | 0.07711 | 0.06608 | 0.01104 |
| Case 3 | 0.02748 | 0.02635 | 1.23510^{-3} | 0.07146 | 0.06241 | 9.04310^{-3} |

Tablo 2'de topaklanmaların incelenen dalga boylarında DDA yöntemi ile elde edilen yok olma, soğurma ve saçılma kesit değerleri verilmektedir. Bu değerler incelendiğinde topaklanmaların soğurma kesit alanlarının, yok olma değerlerine daha yakın olduğu görülür. Bu arada, topaklanmaların saçılma kesit değerlerinin ise ihmal edilebilecek kadar küçük oldukları tespit edilir. Bu sonuçlar, Dobbins ve Megaridis (1991) tarafından küme-küme topaklanmaları ile yansıtma indeksi $m = 1.57 - 0.56i$ ve $m = 1.46 + 0.0i$ aralığında, 10 ile 700 parçacıklı çeşitli topaklanma örnekleri üzerine yaptıkları nümerik çalışmada elde ettikleri sonuçlara benzerdir. Işınım özellikleri her bir parçacığın merkez koordinatları sabit kalırken yarıçapları %20 artırılarak, elde edilen iç içe geçme (Case 2) yapısal durumunda, ilk yayılım (Case 1) halindeki topaklanmaya göre ışınım özelliklerinde güçlü artışlar görülmektedir. Parçacık koordinatları ve yarıçapları %20 artırılarak elde edilen Case 3 topaklanma yapısında parçacıklar hala nokta temaslı olmalarına rağmen, Case 2 yapısının ışınım özelliklerine yakın sonuçlar elde edilmiştir. Örneğin ilk topaklanmada, dalga boyu $0.532 \mu\text{m}$ 'de, Case 2 yapısal değişimi için yok olma ve saçılma kesit alanlarında %86.42 ile %76.57'lik artış ve Case 3 yapısal değişimi için, aynı kesit alanlarında sırasıyla %76.63 ile %71.71'lik artış elde edilmiştir. Karşılaştırma uzun dalga boyu yani $1.064 \mu\text{m}$ 'deki ışınım özellikleri için tekrarlandığında yok olma ve saçılma kesit alanlarında Case 2 için %82.82 ve %79.23'lik artış ile Case 3 için sırasıyla %74.81 ve %72.67'lik artış olduğu tespit edilir.

İkinci tip topaklanmada kısa dalga boyunda yani $0.532 \mu\text{m}$ 'de, yapısal değişimlerden Case 2 için yok olma ve saçılma kesit alanlarında %81.50 ve %63.80'lik artış, Case 3 için ise sırasıyla %74.66 ve %64.44'lük artış bulunur. Aynı topaklanma örneği için dalga boyu $1.064 \mu\text{m}$ 'de, Case 2'nin yok olma ve saçılma kesit alanlarında %91.82 ile %81.34'lik artış ve Case 3 için %77.76 ile %71.27'lik artış hesaplanır.

Bu sonuçlar topaklanmaların daha kompakt hale geldiklerinde ışınım özelliklerinin arttığını göstermektedir. İkinci tip topaklanmada, uzun dalga boyunda Case 2 ve 3'ün ışınım özelliklerinin daha fazla olduğu görülmektedir. Kandilian ve diğerleri (2015) deneysel çalışmaları ile soğurmanın bir hacim olayı olduğunu göstermişlerdir. Bu çalışmada incelenen topaklanma yapıları da bu sonucu doğrulamaktadır. Topaklanma içindeki çoklu saçılma olayı da

saçılma kesitlerinin artışına sebep olmaktadır. $N = 20$, 56 ve 103 parçacıktan oluşan ve topaklanma boyutu ile çarpanı $D_f = 1.65$, $k_f = 1.76$ olan is topaklanmaların yapısal değişimlerinin, aynı dalga boyu aralığı için, ışınım özelliklerine etkileri Doner ve Liu (2017) tarafından ayrıntılı incelenmiştir. Bu çalışmada, aynı yapısal özellikteki topaklanma örnekleri iki ayrı nümerik yöntemle (GMM ve DDA) değerlendirilmiştir. Topaklanmaların ışınım özellikleri parçacık sayısı arttıkça artmış, dalga boyu arttıkça azalmıştır. İncelenen is yapıları kompakt olmamasına rağmen, bu çalışma ile benzer soğurma ve saçılma özellikleri ve eğilimleri göstermiştir.

4. SONUÇLAR

Bu çalışmada, is (siyah karbon) topaklanmalarında yapısal değişikliklerin ışınım özelliklerine etkileri Discrete Dipole Approximation metodu ile incelenmiştir. Topaklanmaların kompakt hale gelmesi esnasında oluşabilecek yapısal değişiklikler soğurma ve saçılma kesit alanları açısından değerlendirilmiştir. Parçacıkların iç içe geçmesi şeklinde görülen topaklanma yapısı ile topaklanma hacminin büyüdüğü yapılar, soğurma ve saçılma ışınım özelliklerinin artmasında etkili olmaktadır. Fazla havalandırılmış yanma sonucu elde edilen siyah karbonun ışınım özellikleri, fazla havalandırılmamış yanma sonucu elde edilen siyah karbonun özelliklerinden daha küçük olduğu bulunmuştur.

TEŞEKKÜR

Siyah karbon topaklanmalarını ve Discrete Dipole Approximation metodunu öğrenmemde yardımcı olan Dr. Fengshan LIU'ya teşekkür ederim.

KAYNAKLAR

1. Adachi, K., Chung, S. H., Buseck, P. R. (2010), Shapes of Soot Aerosols Particles and Implications for Their Effects on Climate. *J. Geophys. Res.*, 115, D15206. <http://dx.doi.org/10.1029/2009JD012868>
2. Al Zaitone, B., Schmid, H.-J., Peukert, W. (2009), Simulation of structure and mobility of aggregates formed by simultaneous coagulation, sintering and surface growth, *Aerosol Sci*, 40, 950-964. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jaerosci.2009.08.007>
3. Ayrancı, I., Vaillon, R., Selçuk, N. (2007), Performance of discrete dipole approximation for prediction of amplitude and phase of electromagnetic scattering by particles, *J. Quant Spectrosc Radiat Transf*, 103, 83-101. <http://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2006.06.006>
4. Bescond, A., Yon, J., Girasole, T., Jouen, C., Rozé, C., Coppalle, A. (2013), Numerical investigation of the possibility to determine the primary particle size of fractal aggregates by measuring light depolarization, *J Quant Spectrosc Radiat Transfer*, 126, 130-139. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jqsrt.2012.10.011>
5. Brasil, A.M., Farias, T.L., Carvalho, M.G. (1999), A recipe for image characterization of fractal-like aggregates, *J. Aerosol Sci.*, Vol. 30 No. 10, 1379-1389. [http://dx.doi.org/10.1016/S0021-8502\(99\)00026-9](http://dx.doi.org/10.1016/S0021-8502(99)00026-9)
6. Dalzell, W.H., Sarofim, A.F., Optical constants of previous termsootnext term and their application to heat-flux calculations, *J. Heat Transfer*, (1969), 91, 100-4.
7. Di Stasio, S. (2002), Experiments on depolarized optical scattering to sense in situ the onset of early agglomeration between nano-size particles, *J Quant Spectrosc Radiat Transfer*, 126, 423-432. [http://dx.doi.org/10.1016/S0022-4073\(01\)00224-2](http://dx.doi.org/10.1016/S0022-4073(01)00224-2)

8. Dobbins, R.A. ve Megaridis, C. M. (1991), Absorption and scattering of light by polydisperse aggregates, *Applied Optics*, Vol. 30 (33), 4747-4754. <https://doi.org/10.1364/AO.30.004747>
9. Draine, B.T. ve Goodman, J. (1993), Beyond Clausius –Mossotti-Wave Propagation on a Polarizable Point Lattice and the Discrete Dipole Approximation, *Astrophys. J.*, 405, 685-697. [http:// http://adsabs.harvard.edu/full/1993apj...405..685d](http://adsabs.harvard.edu/full/1993apj...405..685d)
10. Draine, B.T., Flatau, P.J. (1994), Discrete-dipole approximation for scattering calculations, *J. Opt. Soc. Am.*, 11, 1491-1499. <https://doi.org/10.1364/JOSAA.11.001491>
11. Draine, B.T., Flatau, P.J. (2014), User Guide to the Discrete Dipole Approximation Code DDSCAT 7.3. <http://arXiv:1305.6497>
12. Eggersdorfer, M.L., Pratsinis, S.E. (2013), Restructuring of Aggregates and Their Primary Particle Size Distribution During Sintering, *AIChE Journal*, Vol.59, No. 4, 1118-1126. <http://dx.doi:10.1002/aic>
13. Francis, M., Renard, J.-B., Hadamcik, E., Coute, B., Gaubicher, B., Jeanot, M. (2011), New-studies on scattering properties of different kinds of soot and carbon-black, *J Quant Spectrosc Radiat Transfer*, 112, 1766–1775. <http://dx.doi:10.1016/j.jqsrt.2011.01.009>
14. Kahnert, M. (2010), On the Discrepancy between Modeled and Measured Mass Absorption Cross Sections of Light Absorbing Carbon Aerosols, *Aerosol Sci Technol*, 44, 453-460. <http://dx.doi.org/10.1080/02786821003733834>
15. Kandilian, R., Heng, R. L., ve Pilon, L. (2015). Absorption and Scattering by Fractal Aggregates and by their Equivalent Coated Spheres. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 151, 310–326. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jqsrt.2014.10.018>
16. Li, S., Cheng, X., Mei, P., Lu, S., Yang, H., Zhang, H. (2014), Multiple scattering of light transmission in a smoke layer, *Optik*, 125, 2185–2190. <http://dx.doi.org/10.1016/j.ijleo.2013.10.040>
17. Litton, C. D. ve Perera, I. E. (2014), Modeling the optical properties of combustion-generated fractal aggregates, *Fuel*, 130, 215–220. <http://dx.doi.org/10.1016/j.fuel.2014.04.043>
18. Liu, F. ve Smallwood, G. J. (2010), Effect of aggregation on the absorption cross-section of the fractal soot aggregates and its impact on LII modelling, *J Quant Spectrosc Radiat Transfer*, 111, 302–308. <http://dx.doi:10.1016/j.jqsrt.2009.06.017>
19. Liu, F. ve Snelling, D. R. (2008), Evaluation of the Accuracy the RDG Approximation for the Absorption and Scattering Properties of Fractal Aggregates of Flame-Generated Soot, *40th Thermophysics Conference*, 23-26 June, Seattle, Washington, USA. <http://dx.doi.org/10.2514/6.2008-4362>
20. Liu, L. ve Mishchenko, M. I. (2005) Effects of aggregation on scattering and radiative properties of soot aerosols, *Journal of Geophysical Research*, Vol. 110, 262–273. <http://dx.doi:10.1029/2004JD005649>
21. Liu, L. ve Mishchenko, M. I. (2007) Scattering and radiative properties of complex soot and soot-containing aggregate particles, *J Quant Spectrosc Radiat Transfer*, 106, 262–273. <http://dx.doi:10.1016/j.jqsrt.2007.01.020>
22. Liu, L., ve Mishchenko, M. I., Arnott W. P. (2008), A study of radiative properties of fractal soot aggregates using the superposition T-Matrix method, *J Quant Spectrosc Radiat Transfer*, 109, 2656–2663. <http://dx.doi:10.1016/j.jqsrt.2008.05.001>

23. Lu, N. ve Sorensen, C.M. (1994), Depolarized light scattering from fractal soot aggregates, *Phys Rev E*, 50 (4), 3109-3115. <https://doi.org/10.1103/PhysRevE.50.3109>
24. Oh, C. ve Sorensen, C.M. (1997), The effect of overlap between monomers on the determination of the fractal cluster morphology, *J Colloid Interface Sci.*, 193 (1), 17-25. <http://dx.doi.org/10.1006/jcis.1997.5046>
25. Olofsson, N.-E. (2014), Laser-Induced Incandescence and Complementary Diagnostics for Flame soot characterization, *Doctoral Dissertation*, Lund University, İsveç. <https://lup.lub.lu.se/search/publication/4864518>
26. Prasanna, S., Rivière, Ph., Soufiani A. (2014), Effect of fractal parameters on absorption properties of soot in the infrared region, *J Quant Spectrosc Radiat Transfer*, 148, 141–155. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jqsrt.2014.07.004>
27. Scarnato, B.V., Vahidinia, S., Richard D.T., Kirchstetter T.W. (2013), Effects of internal mixing and aggregate morphology on optical properties of black carbon using a discrete dipole approximation model, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 5089-5101. <http://dx.doi:10.5194/acp-13-5089-2013>
28. Schmid, H.-J., Tejwani, S., Artelt, C., Peukert, W. (2004), Monte Carlo simulation of aggregate morphology for simultaneous coagulation and sintering, *Journal of Nanoparticle Research*, 6: 613-626. <http://dx.doi:10.1007/s11051-004-2161-x>
29. Shen, Y., Draine, B.T. ve Johnson, E. T. (2008), Modeling Porous Grains with Ballistic Aggregates. I. Geometry and Optical Properties, *Astrophys. J.*, 689, 260-275. <http://dx.doi:10.1086/592765>
30. Soewono, A. ve Rogak, S. N. (2013), Morphology and Optical Properties of Numerically Simulated Soot Aggregates, *Aerosol Sci Technol*, 47, 267–274, <http://dx.doi.org/10.1080/02786826.2012.749972>
31. Van-Hulle, P., Weill, M.-E., Talbaut, M., Coppalle, A. (2002), Comparison of Numerical Studies Characterizing Optical Properties of Soot Aggregates for Improved EXSCA Measurements, *Part. Part. Syst. Charact.*, 19, 47-57. [http://dx.doi:10.1002/1521-4117\(200204\)19:1<47::AID-PPSC47>3.0.CO;2-W](http://dx.doi:10.1002/1521-4117(200204)19:1<47::AID-PPSC47>3.0.CO;2-W)
32. Yon, J., Bescond, A., Liu, F. (2015), On the radiative properties of soot aggregates part 1: Necking and overlapping, *J Quant Spectrosc Radiat Transfer*, 162, 197–206. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jqsrt.2015.03.027>
33. Yon, J., Liu, F., Bescond, A., Caumont-Prim, C., Rozé, C., Ouf, F.-X., Coppalle, A. (2014), Effects of multiple scattering on radiative properties of soot fractal aggregates, *J Quant Spectrosc Radiat Transfer*, 133, 374–381. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jqsrt.2013.08.022>
34. Doner, N., ve Liu, F. (2017), Impact of morphology on the radiative properties of fractal soot aggregates, *J Quant Spectrosc Radiat Transfer*, 187, 10–19. <http://dx.doi.org/10.1016/j.jqsrt.2016.09.005>

