

УДК 53.082.534

ТУРБИДИМЕТРИЧЕСКИЙ МЕТОД ОПРЕДЕЛЕНИЯ ПАРАМЕТРОВ СУБМИКРОННЫХ АЭРОЗОЛЬНЫХ СРЕД

С. С. Титов, А. А. Павленко, О. Б. Кудряшова,
В. А. Архипов, С. С. Бондарчук

*Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
Институт проблем химико-энергетических технологий
Сибирского отделения Российской академии наук,
659322, г. Бийск, ул. Социалистическая, 1
E-mail: admin@ipcet.ru*

Разработан новый турбидиметрический метод определения параметров субмикронных аэрозольных сред и предложена его аппаратная реализация с использованием широкого диапазона длин волн зондирующего излучения и скоростной видеосъёмки. Для восстановления функции распределения частиц по размерам применяется оригинальный алгоритм решения обратной задачи оптики аэрозолей с помощью вычислительной технологии прямого поиска.

Ключевые слова: дисперсность, концентрация, теория Ми, метод спектральной прозрачности, аэрозоль, оптическое излучение.

Введение. Оперативное получение информации о распределении частиц по размерам в какой-либо многофазной системе является необходимым для многих областей науки и техники. Для размеров частиц от единиц микрометров и более при малых объёмах измерительных зон эта задача может быть решена с помощью метода малоуглового рассеяния с использованием длин волн видимого диапазона спектра [1], однако при меньших размерах частиц такой метод не применим. Развитие нанотехнологий и необходимость контроля дисперсности частиц при решении экологических проблем обуславливают потребность в приборах, способных определять параметры частиц субмикронного диапазона. Существующие на настоящий момент измерительные устройства, реализующие подобные функции, основаны на принципах пробоотбора. Такая аппаратура вносит искажения в исследуемую среду. Отличительными особенностями приборов, использующих оптические методы диагностики, являются дистанционность, бесконтактность и высокая скорость измерений [1]. Среди оптических методов диагностики гетерогенных сред оптимальным сочетанием сложности реализации и информативности обладает метод спектральной прозрачности (МСП), с учётом этого он был взят за основу при разработке метода исследования динамики дисперсных параметров субмикронных аэрозольных сред. В известных реализациях МСП измерение ослабления излучения осуществляется только для нескольких десятков длин волн в узких спектральных диапазонах [1–4], что снижает точность восстановления размеров частиц и может привести к грубым ошибкам. Эта проблема разрешима при использовании современных быстродействующих спектроанализаторов. Математическая реализация МСП представляет собой обратную задачу, решение которой связано с трудоёмкими вычислениями. Чтобы их избежать, в МСП ранее применялись приближённые формулы, что значительно снижало универсальность метода [5]. Однако с помощью современной вычислительной техники стало возможно проводить вычисления в соответствии с математической моделью МСП, основанной на точных формулах теории Ми.

Целью данной работы является создание турбидиметрического метода бесконтактного определения дисперсности и концентрации аэрозолей различной природы и фракционных составов частиц с применением точной математической модели МСП.

Математическая модель турбидиметрического метода. В разработанном методе восстановление функции распределения частиц по размерам осуществляется, как и в МСП, с помощью уравнения Фредгольма первого рода [5]:

$$I(\lambda, t) = I_0(\lambda, t) \exp \left[- \frac{\pi C_n(t) l(t)}{4} \int_0^{\infty} Q \left(\frac{\pi D}{\lambda}, m(\lambda) \right) D^2 f(D, t) dD \right], \quad (1)$$

где $I(\lambda, t)$ — интенсивность прошедшего через аэрозоль излучения; $I_0(\lambda, t)$ — интенсивность зондирующего излучения; $C_n(t)$ — счётная концентрация конденсированной фазы аэрозоля; $l(t)$ — длина оптического пути; $Q(\pi D/\lambda, m(\lambda))$ — фактор эффективности ослабления зондирующего излучения; D — диаметр частиц; λ — длина волны зондирующего излучения; t — время; $m(\lambda)$ — комплексный показатель преломления конденсированной фазы аэрозоля; $f(D, t)$ — функция распределения частиц по размерам, вид которой задаётся априорно обычным гамма-распределением:

$$f(D, t) = a(t) D^{\alpha(t)} \exp(-b(t)D), \quad (2)$$

где $\alpha(t)$ и $b(t)$ — параметры распределения; $a(t)$ является нормировочным коэффициентом и находится из выражения

$$a(t) = \left[\int_{D_{\min}}^{D_{\max}} D^{\alpha(t)} \exp(-b(t)D) dD \right]^{-1}.$$

Здесь D_{\min} и D_{\max} — минимальный и максимальный диаметры частиц, присутствующих в исследуемом аэрозоле.

При решении задачи определения функции распределения частиц по размерам используется экспериментальная информация о коэффициенте спектральной прозрачности

$$\tau_{\lambda}^{\text{э}}(t) = \ln \frac{I_0(\lambda, t)}{I(\lambda, t)}. \quad (3)$$

После чего находится отношение

$$k_{\text{э}}(t) = \frac{\tau_{\lambda_1}^{\text{э}}(t)}{\tau_{\lambda_2}^{\text{э}}(t)}, \quad (4)$$

где $\tau_{\lambda_1}^{\text{э}}$, $\tau_{\lambda_2}^{\text{э}}$ — экспериментально измеренные коэффициенты спектральной прозрачности для длин волн λ_1 и λ_2 . На следующем шаге методом циклического покоординатного спуска задают параметры $\alpha(t)$ и $b(t)$ распределения (2). Далее рассчитывается отношение теоретически полученных коэффициентов спектральной прозрачности в соответствии с уравнением (1) для длин волн λ_1 и λ_2 по формуле

$$k_{\text{т}}(t) = \frac{\tau_{\lambda_1}^{\text{т}}(t)}{\tau_{\lambda_2}^{\text{т}}(t)} = \frac{\int_{D_{\min}}^{D_{\max}} Q \left(\frac{\pi D}{\lambda_1}, m(\lambda_1) \right) D^2 f(D, t) dD}{\int_{D_{\min}}^{D_{\max}} Q \left(\frac{\pi D}{\lambda_2}, m(\lambda_2) \right) D^2 f(D, t) dD}, \quad (5)$$

где фактор эффективности ослабления зондирующего излучения Q рассчитывается в соответствии с теорией Ми по формуле

$$Q\left(\frac{\pi D}{\lambda}, m(\lambda)\right) = \frac{2}{\left(\frac{\pi D}{\lambda}\right)^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) \operatorname{Re}(a_n + b_n)$$

(a_n и b_n — коэффициенты Ми).

Нахождение отношений коэффициентов спектральной прозрачности (выражения (4) и (5)), а не их абсолютных величин реализовано в целях привлечения меньшего количества априорной информации об исследуемом процессе (для избавления от множителя перед знаком интеграла в формуле (1)). Фактор Q считается определённым при выполнении условия

$$\left[\sum_{n=1}^N (2n+1) \operatorname{Re}(a_n + b_n) \right] \cdot 10^{-8} > (2N+3) \operatorname{Re}(a_{N+1} + b_{N+1}).$$

На следующем этапе вычисляется отклонение Δ расчётного значения отношений коэффициентов спектральной прозрачности от экспериментального по формуле

$$\Delta = |k_s(t) - k_r(t)|.$$

После выполнения расчётов для всего диапазона длин волн находится суммарное отклонение расчётных данных от экспериментальных для выбранной функции распределения частиц по размерам $f(D, t)$ в соответствии с формулой

$$\chi(f(D, t)) = \frac{(\lambda_{\max} - \lambda_{\min})/S}{\sum_{i=0}^{\infty} \Delta_i},$$

где λ_{\max} и λ_{\min} — максимальное и минимальное значения длин волн зондирующего излучения; S — величина шага по длине волны. Далее выбирается тот вид функции $f(D, t)$, для которого параметр χ имеет наименьшее значение.

Затем с помощью скоростной видеосъёмки и программного комплекса вычисляется оптическая длина пути зондирующего излучения в исследуемом аэрозоле $l(t)$ и рассчитывается массовая концентрация дисперсной фазы аэрозоля по формуле

$$C_m(t) = \frac{S}{\lambda_{\max} - \lambda_{\min}} \sum_{j=1}^{(\lambda_{\max} - \lambda_{\min})/S} \frac{\tau_{\lambda_j}^3 \rho D_{32}(t)}{1,5l(t) \bar{Q}\left(\frac{\pi D}{\lambda_j}, m(\lambda_j)\right)},$$

где ρ — плотность вещества частиц аэрозоля; $D_{32}(t)$ — средний объёмно-поверхностный диаметр частиц; \bar{Q} — усреднённый фактор эффективности ослабления оптического излучения.

Расчётно-теоретическая оценка для видимой области оптического излучения показала, что с использованием разработанной физико-математической модели турбидиметрического метода возможно исследовать аэрозоли с размерами частиц от 22 нм до 10,5 мкм.

Измерительный комплекс. Для непосредственного измерения ослабления оптического излучения исследуемой средой и её пространственно-временных характеристик раз-

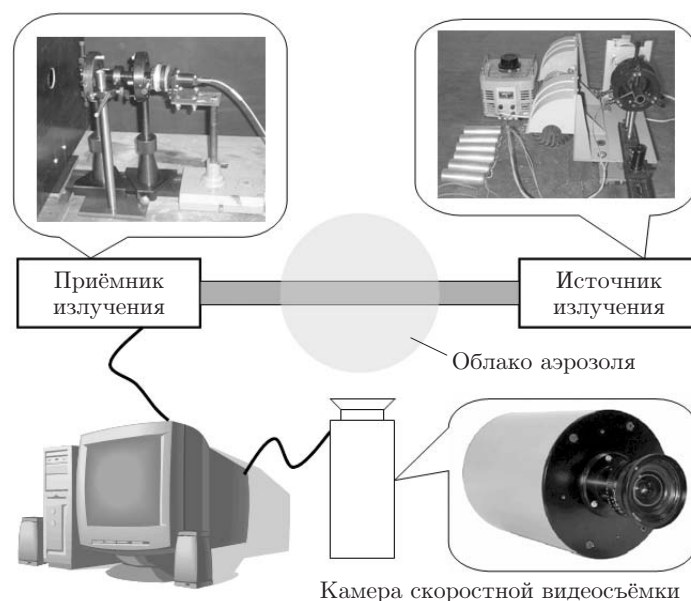


Рис. 1

работан измерительный комплекс, блок-схема которого представлена на рис. 1. Приёмник излучения выполнен в виде конденсорной линзы, фокусирующей параллельный пучок излучения на торце световода. Собранные конденсором излучение по световоду передаётся в спектральный анализатор, реализованный на базе спектрометра S125-2048/14 производства фирмы "SolarTII" (Беларусь), где с помощью дифракционной решётки разлагается в спектр по длинам волн с шагом 0,376 нм. Измерение интенсивности излучения осуществляется на участке длин волн от 360 до 1100 нм. Источником излучения служит галогенная газонаполненная лампа накаливания.

Измерения длины пути зондирующего излучения, а также пространственно-временных характеристик исследуемого объекта осуществляются с помощью камер скоростной видеосъёмки «ВидеоСпринт/С/G4» и «ВидеоСпринт/G4/NG» (Россия), гелий-неоновых лазеров и кварцевых галогенных осветителей "ARRI Compact" (Италия).

Вся информация с оборудования передаётся на компьютер, где происходит её дальнейшая обработка.

Тестовый эксперимент для проверки работоспособности аппаратной части заключался в измерении ослабления оптического излучения взвесью субмикронного порошка оксида алюминия (Al_2O_3) в дистиллированной воде. Выбор оксида алюминия обусловлен известностью эмпирических зависимостей показателей преломления (n) и поглощения (φ) от длины волны зондирующего излучения [6]:

$$n(\lambda) = \sqrt{1 + \lambda^2 \left(\frac{1,024}{\lambda^2 - 0,003776} + \frac{1,058}{\lambda^2 - 0,01225} + \frac{5,281}{\lambda^2 - 321,4} \right)} \cdot 0,996364, \quad (6)$$

$$\varphi(\lambda) = 0,002(0,06\lambda^2 + 0,7\lambda + 1) \cdot 0,007391. \quad (7)$$

Выражения (6) и (7) приведены для температуры 20 °С, при этом комплексный показатель преломления запишется как

$$m(\lambda) = n(\lambda) - i\varphi(\lambda).$$

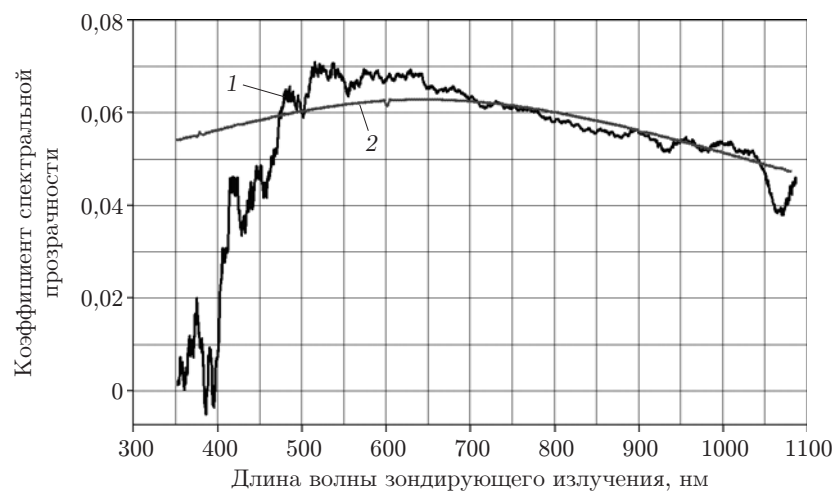


Рис. 2

Пренебрежение зависимостью комплексного показателя преломления от длины волны зондирующего излучения и использование постоянной величины показателя для всех длин волн приводит к ошибкам. Концентрация оксида алюминия в суспензии составляла $0,4 \text{ кг/м}^3$.

Перед измерением пропускания излучения кюветой с суспензией оксида алюминия измерялся базовый спектр пропускания излучения кюветой с чистой дистиллированной водой. По полученным спектральным данным проводился расчёт коэффициента спектральной прозрачности по формуле (3). На рис. 2 приведены зависимость коэффициента спектральной прозрачности от длины волны (кривая 1), а также его теоретически рассчитанная зависимость от длины волны зондирующего излучения, отличие которой от экспериментальных данных оказалось минимальным (кривая 2). Различие экспериментальных и теоретических данных на участке длин волн до 480 нм обусловлено малым уровнем полезного сигнала.

Полученная теоретическая зависимость коэффициента спектральной прозрачности от длины волны (см. рис. 2, кривая 2) соответствует функции распределения частиц по размерам исследуемой среды (рис. 3, кривая 2). Эта функция сравнивалась с распределением частиц по размерам, найденным с использованием электронной микроскопии (рис. 3, кривая 1). По полученным данным установлено, что ошибка определения функции распре-

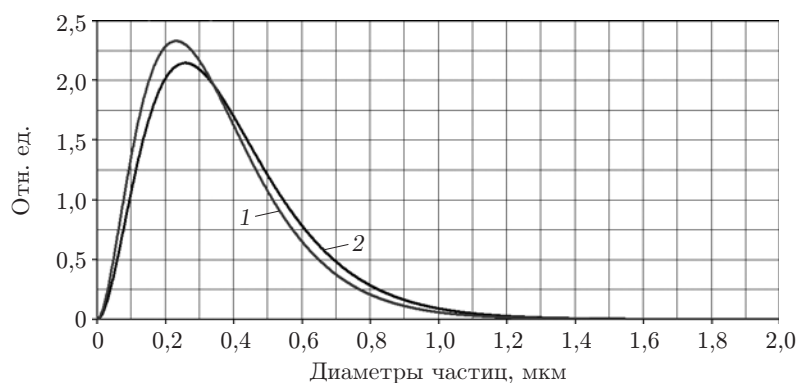


Рис. 3

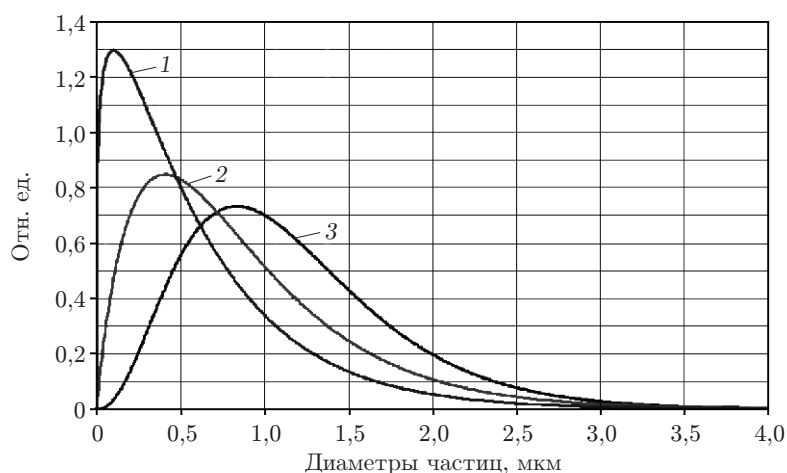


Рис. 4

ления частиц по размерам с применением турбидиметрического метода и реализующего его измерительного комплекса равна 13 %.

Концентрация исследуемой суспензии, вычисленная таким методом, составила $0,395 \text{ кг/м}^3$, что отличается от фактического значения на 1,25 %.

Измерение параметров аэрозольной среды. С помощью разработанного измерительного комплекса проводилось исследование аэрозоля, получаемого импульсным способом [7] при распылении дистиллированной воды, находились его дисперсность, концентрация и скорость перемещения фронта облака, а также отслеживалось изменение этих параметров во времени. Полученные функции распределения частиц по размерам в различные моменты времени для исследуемого аэрозоля представлены на рис. 4. Данные для момента времени 10 мс (рис. 4, кривая 3) хорошо согласуются с результатами теоретической оценки спектра размеров частиц, выполненной для используемого распылителя [8]. Кроме того, экспериментальные результаты для 4 и 9 с (см. рис. 4, кривые 2 и 1) совпадают с теоретическими расчётами для этих моментов времени с учётом испарения, осаждения и коагуляции [8, 9]. Время регистрации одного спектра 10 мс.

Средняя скорость фронта облака водного аэрозоля определялась в процессе скоростной видеосъёмки, изменение средней скорости в начальный период времени создания аэрозоля приведено на рис. 5.

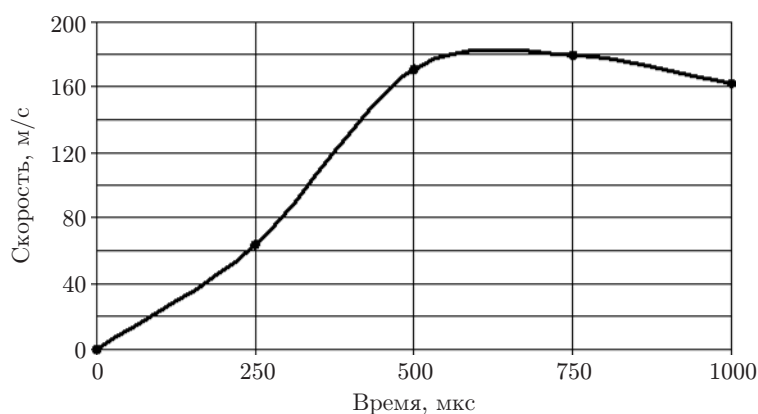


Рис. 5

Заключение. В данной работе предложен и апробирован новый алгоритм решения обратной задачи оптики аэрозолей для метода спектральной прозрачности, в результате чего получена математическая модель нового турбидиметрического метода определения параметров многофазных сред, позволяющая осуществлять дистанционные высокоскоростные измерения характеристик субмикронных аэрозолей различного химического состава. Разработан программно-аппаратный измерительный комплекс, реализующий новый турбидиметрический метод исследования динамики дисперсных параметров аэрозолей с использованием спектрального анализатора для видимого участка оптического излучения и скоростной видеокамеры. Установлена работоспособность предлагаемого измерительного комплекса при проведении тестового эксперимента по исследованию дисперсности порошка оксида алюминия и сравнении полученных данных с результатами электронной микроскопии. Погрешность вычисления дисперсности порошка оксида алюминия турбидиметрическим методом составила 13 %, а концентрации — 1,25 %. Определены дисперсные и пространственно-временные характеристики субмикронного аэрозоля, созданного импульсным способом. Получены данные о трансформации спектра размеров частиц исследуемого субмикронного аэрозоля.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Голубев А. Г., Ягодкин В. И.** Оптические методы измерения дисперсности аэрозолей // Тр. ЦИАМ. 1978. № 828. С. 1–21.
2. **Пат. 1435955 СССР.** Фотометр дисперсных сред /К. А. Шайхатаров, А. В. Лапшин, А. Н. Столяров, Т. Д. Лапшина. Заявл. 19.12.1986; Оpubл. 07.11.1988, Бюл. № 41. 8 с.
3. **Пат. 2335760 РФ.** Оптический способ определения размеров частиц дисперсной системы /О. Л. Власова, О. А. Писарев, А. Г. Безрукова, П. В. Плотникова. Заявл. 13.06.2006; Оpubл. 10.10.2008, Бюл. № 28. 6 с.
4. **Пат. 2235990 РФ.** Способ определения дисперсности аэрозольных частиц /В. Ф. Мышкин, В. Н. Цимбал, В. А. Борисов, А. М. Вдовин. Заявл. 16.06.2003; Оpubл. 10.09.2004, Бюл. № 25. 5 с.
5. **Ван де Хюлст Г.** Рассеяние света малыми частицами. М.: Изд. иностр. лит., 1961. 460 с.
6. **Домбровский Л. А.** О возможности определения дисперсного состава двухфазного потока по рассеянию света под малыми углами // Теплофизика высоких температур. 1982. **20**, № 3. С. 549–557.
7. **Titov S. S., Vorozhtsov V. I., Kudryashova O. B. et al.** Physicomathematical modeling of explosion dispersion of liquid and powders //Proc. of the Intern. Conf. "High Energy Materials: Demilitarization, Antiterrorism and Civil Application". Biarritz, France, 5–7 Oct., 2009. НЕМ004.
8. **Ворожцов Б. И., Кудряшова О. Б., Ишматов А. Н. и др.** Взрывная генерация высокодисперсных жидкокапельных аэрозолей и их эволюция // ИФЖ. 2010. **83**, № 6. С. 1084–2004.
9. **Кудряшова О. Б., Ворожцов Б. И.** Математическая модель взрывного генезиса высокодисперсных жидкостных аэрозолей // Матер. V Междунар. конф. «Высокоэнергетические материалы: демилитаризация, антитерроризм и гражданское применение (НЕМs-2010)». Бийск: Изд-во АлтГТУ, 2010. С. 173–175.

Поступила в редакцию 29 ноября 2011 г.