

基于近前向光散射法的气溶胶浓度测量

马英¹, 王龙江¹, 俞杰¹, 王坤俊¹, 尹王保^{2,3}, 董磊^{2,3*}

¹中国辐射防护研究院环境工程技术研究所, 山西太原 030006;

²山西大学激光光谱研究所量子光学与光量子器件国家重点实验室, 山西太原 030006;

³山西大学极端光学协同创新中心, 山西太原 030006

摘要 基于近前向光散射法, 实现了多分散亚微米级气溶胶的浓度测量。测量装置采用卤钨灯作为光源, 整形后的环状光束被会聚至待测气体处, 散射光经透镜收集后, 由光电探测器进行探测, 分析探测光强度的变化, 从而反演出被测气溶胶的浓度。实验结果表明, 该测量方法的探测灵敏度能够达到 $10^{-4} \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$, 线性响应范围覆盖了6个数量级。该方法可应用于核工业、医药、微电子等领域。

关键词 散射; 气溶胶浓度测量; 近前向散射; 灵敏度; 线性响应范围

中图分类号 O436.2 文献标识码 A

doi: 10.3788/LOP54.092901

Aerosol Concentration Measurement Based on Near-Forward Light Scattering Method

Ma Ying¹, Wang Longjiang¹, Yu Jie¹, Wang Kunjun¹, Yin Wangbao^{2,3}, Dong Lei^{2,3}

¹Department of Environmental Engineering and Technology, China Institute for Radiation Protection, Taiyuan, Shanxi 030006, China;

²State Key Laboratory of Quantum Optics and Quantum Optics Devices, Institute of Laser Spectroscopy, Shanxi University, Taiyuan, Shanxi 030006, China;

³Collaborative Innovation Center of Extreme Optics, Shanxi University, Taiyuan, Shanxi 030006, China

Abstract Based on the near-forward light scattering method, the polydispersion sub-micron aerosol concentration measurement is realized. The tungsten halogen lamp is employed as the light source in the measurement device. The shaped annular beam is converged to the gas to be measured. After being collected by a lens, the scattering light is detected by a photodetector. The aerosol concentration is inversely determined by analyzing the intensity variation of the detected light. The experimental results show that the detection sensitivity of the measurement method can reach to $10^{-4} \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ and the linear response range covers 6 orders of magnitude. This method can be applied to the fields of nuclear industry, medicine, microelectronics, and so on.

Key words scattering; aerosol concentration measurement; near-forward scattering; sensitivity; linear response range

OCIS codes 290.2558; 280.1100; 010.1100; 290.4020

1 引言

随着光学技术及微电子技术的发展, 光散射技术也得到了快速发展, 近年来其被广泛应用于气溶胶浓度的测量中^[1-7], 从而促进了气溶胶浓度监测水平的提高。相比于其他方法, 如滤膜称重法、压电晶体法、电荷法、 β 射线吸收法、微量振荡天平法^[8-9]等, 光散射法测量气溶胶浓度具有以下特点: 1) 可实现非接触测量, 无

收稿日期: 2017-03-16; 收到修改稿日期: 2017-04-12

基金项目: 国家自然科学基金(61622503, 61575113)

作者简介: 马英(1974—), 女, 硕士, 高级工程师, 主要从事核空气净化领域气溶胶、气体检测技术方面的研究。

E-mail: mying1000@163.com

* 通信联系人。E-mail: donglei@sxu.edu.cn

需收集被测介质试样,测量精度高,对被测介质的干扰小;2) 粒径测量范围宽,可测粒径的下限为亚微米量级或更小,上限可达一毫米左右;3) 测量的对象广;4) 需要知道的被测颗粒及分散介质的物理参数少;5) 可对排放源进行远距离、实时、在线和连续测量;6) 易于实现测量过程和数据处理自动化,提高测量装置智能化程度。基于以上特点,集光电技术、微电子技术和计算机技术于一体的光散射气溶胶浓度测量方法被广泛应用于微电子、制药、精密仪器生产、环境监测、空气净化等领域中。

气溶胶检测技术在核行业的空气净化领域中也得到了广泛应用。为了保证核工业设施(包括核电站、后处理厂、研究堆、核潜艇基地等)空气净化系统的安全可靠,并确保核设施通风系统符合相关标准要求,要求在首次安装运行前及在役期间对核级净化设备高效过滤器定期进行现场泄漏率实验。依据相关标准^[10-11],采用邻苯二甲酸二辛酯法进行高效过滤器泄漏率现场实验,以聚 α 烯烃(PAO)等试剂作为人工发生气溶胶的尘源^[12];采用气溶胶发生器发出符合标准中粒径分布要求的 PAO 气溶胶粒子,并将其注入到高效过滤器的上游,用气溶胶检测装置分别检测高效过滤器过滤前、后气溶胶的浓度,根据两个浓度的比值来确定泄漏率是否满足标准的要求。故该方法中对高效过滤器泄漏率检测的关键是对气溶胶浓度的测量。由于泄漏率的限值是 0.05%,即高效过滤器下、上游的气溶胶质量浓度比值至少应达到 $1:10^4$,这就要求气溶胶检测有高的灵敏度和宽的量程。

本文以 Mie 散射理论为基础,设计了近前向散射光收集方式的气溶胶浓度光学测量实验装置,并优化了光学部件的几何参数及光源位置,得到了最佳的信号输出响应。以亚微米级多分散 PAO 气溶胶粒子作为测量对象,得到了该测试方法及装置的探测灵敏度和气溶胶浓度测量范围。

2 Mie 散射理论

当纯净介质中存在颗粒(固体颗粒、液滴或气泡)时,光束穿过该介质时就会向空间散射,散射参数与颗粒的浓度和粒径有关系。故用一个或几个光源发出的光照射被测颗粒,在一定的方向上用光电转换元件接收散射光的信号,通过所测得的散射光信号强度来反演被测气溶胶的浓度。对散射光强信号与颗粒物间的关系分析主要依赖于 Mie 散射理论^[2,8-9]。当大气中粒子的直径与辐射的波长相当时,发生的散射称为 Mie 散射。Mie 散射是目前应用广泛的粒子散射算法之一,它以经典波动光学为理论基础,通过求解均匀介质中各向同性的单个介质球在单色平行光下的麦克斯韦方程组,求解出粒子直径,在处理波长量级粒子散射问题上具有其他理论无可比拟的精度。Mie 散射的示意图如图 1 所示,其中 φ 为入射光振动面与散射面之间的夹角。由 Mie 理论可知,当一束波长为 λ 、光强为 I_0 的单色平面波照射单个球形颗粒时,散射光场某点 P 的散射光光强分布为

$$I_s = \frac{I_0 \lambda^2}{8\pi^2 r^2} [i_1(k, m, \theta) + i_2(k, m, \theta)], \quad (1)$$

式中 I_0 为入射光强, λ 为光的波长, r 为探测器和粒子之间的距离, θ 为散射角度, k 为关于介质大小的参数($k = \pi D/\lambda$, D 为粒子直径), m 为介质折射率, i_1 和 i_2 为散射强度函数。对于固定的测试装置,已知物理特性(折射率、密度等参数)及粒径分布的气溶胶粒子群的散射光强为

$$I_s = N \times C, \quad (2)$$

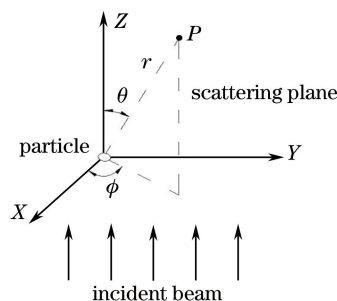


图 1 Mie 散射示意图

Fig. 1 Schematic of Mie scattering

式中 N 为粒子浓度, C 为常数。由(2)式可知,探测光强和浓度呈线性相关,通过测量气溶胶粒子的散射光信号可反演其浓度值。

对于球形颗粒物,当 D 与 λ 处于相同的量级且 $D < \lambda$ 时,将发生 Mie 散射;当 D 远小于 λ ,通常 $D/\lambda < 0.1$ 时, Mie 散射就退化为瑞利散射;当 D 远大于 λ ,通常 $D/\lambda > 10$ 时,发生的散射可近似为夫琅禾费衍射。实验使用气溶胶发生器(SN-10 型,NUCON 公司,美国)发生 PAO 球形气溶胶粒子,其工作压强为 50~550 kPa。经宽范围粒径谱仪(WPS-1000XP-A 型,MSP 公司,美国)测试得到,约 97%(原子数分数)的气溶胶粒子的粒径范围在 0.1357~0.4347 μm 之间,几何平均直径约为 0.3 μm ,几何标准偏差约为 1.29。因此,该气溶胶粒子是多分散亚微米级气溶胶粒子,粒径与可见光的波长(390~760 nm)接近,符合 Mie 散射的条件。

光散射法根据散射光收集方式的不同可以分为三种,即近前向光散射法、直角方向光散射法和后向光散射法^[4-6]。对于 Mie 散射而言,照射在粒子上的光非均匀地向各方向散射,前向散射光强度强于后向散射光的强度^[2,4,6]。近前向散射光收集系统的入射光与散射光方向相同,与垂直方向散射光测量系统相比,虽然近前向散射光收集系统的灵敏度较高^[4],但需要避免入射光照射到光电探测器上;同时,光学测量系统各部件的设计亦是关键所在。

3 实验装置设计及优化

图 2 为近前向光散射法测量气溶胶浓度的系统设计原理图。环形光束经过透镜后,会被会聚在焦点处,当焦点处存在被测气溶胶时,会发生 Mie 散射。随即环形光束经过焦点发散开,近前向散射光出现在环形光束中心位置。粒子的浓度与近前向散射光的强度有关,通过测试近前向散射光的强度可反演出气溶胶粒子的浓度。

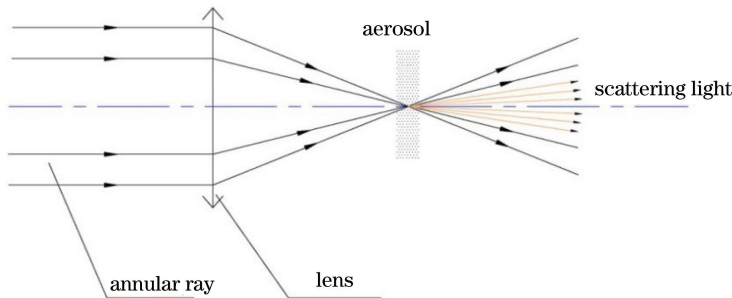


图 2 基于近前向光散射法的系统设计原理

Fig. 2 Design principle of system based on near-forward scattering method

实验采用白色卤钨灯作为光源,该卤钨灯亮度高,寿命可达 400 h,其技术参数见表 1。由于灯丝有一定尺寸,考虑到光的发散,距离透镜又不能太远,故不能将其视作理想的点光源。为了消除像差,更好地会聚光束,采用由两个平凸透镜组成的透镜组结构,这两个平凸透镜的孔径均为 50 mm,焦距均为 40 mm,凸面相对放置,距离为 50 mm,光束由一透镜的平面入射,从另一透镜的平面出射,会聚在第二透镜平面后方 40 mm 处。同时,设计了对比实验,使用单片双凸透镜(孔径为 50 mm,焦距为 40 mm)替代上述镜组,以验证镜组的会聚功能。焦点处的会聚光斑对比图如图 3 所示,为了方便比较光斑大小,在观察点设置了同一尺寸的网格线,发现镜组的会聚能力更强,表现为对应焦点处光斑面积更小(直径为 6 mm,约为单透镜聚焦光斑的 1/4),亮度更高。在双凸透镜或透镜组最后的出射面处添加直径为 25 mm 的光阻,即可形成环状光束。焦点后 20 mm 处的环状光束对比图如图 4 所示,可以发现,采用镜组结构时,环状光束集中,杂散光少,这将会降低测量系统的本底暗电流,提高探测灵敏度。

表 1 卤钨灯光源参数

Table 1 Parameters of halogen tungsten lamp

Voltage /V	Power /W	Luminous flux /lm	Color temperature /K
10.8	30	570	3100

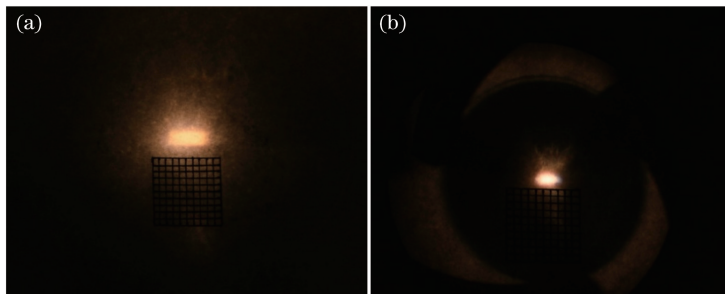


图3 不同聚焦结构的焦点处光斑对比。(a)双凸透镜;(b)平凸透镜组

Fig. 3 Contrast of light spots at focus in different focusing structures. (a) Biconvex lens; (b) plano-convex lens group

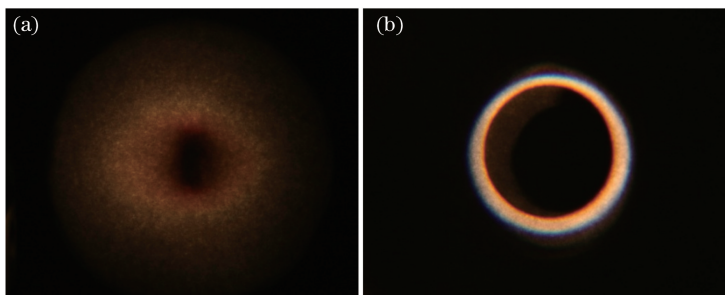


图4 不同聚焦结构下的环状光束对比。(a)双凸透镜;(b)平凸透镜组

Fig. 4 Contrast of annular beams in different focusing structures. (a) Biconvex lens; (b) plano-convex lens group

基于图2所示系统设计原理建立了实验装置,如图5所示。卤钨灯被放置在透镜组的前焦点处,出射光经过透镜组及光阻后,被整形成环状光束会聚到后焦点处。系统中设置孔径光阑,以滤除杂散光的干扰,根据图3(b)所测光斑大小,选取孔径光阑直径为7 mm,此时既可以保证95%光能量通过,又能够有效地抑制杂散光。在孔径光阑后40 mm处放置一光陷阱,以遮挡最终无用的环状光束。光陷阱中心放置一直径为15 mm、焦距为30 mm的平凸透镜,以收集近前向Mie散射光。使用美国PerkinElmer公司生产的VTS3082型探测器探测信号光,其光敏面积为 $10 \times 10 \text{ mm}^2$,灵敏度为 $0.2 \text{ A} \cdot \text{W}^{-1}$ 。为了充分利用较大的探测面积,探测器被放置在距离收集透镜后60 mm处,将光信号转换成电信号。输出信号被前置放大器放大后,被带有数据采集卡的计算机采集,使用LabView程序反演出待测气溶胶的浓度。由于待测量范围较宽,令前置放大器在不同量程之间切换,其原理如图6所示,其中R0~R5为电阻,K1~K4为开关。采用真空采样泵(2107CD20, THOMAS公司,德国),使被测气溶胶以一定的流速通过测量装置,透镜组的出射面和光陷阱之间被密封,气溶胶从孔径光阑顶端进入,沿着孔径光阑表面垂直于光传播方向向下流动,从孔径光阑的低端流出,流速设定为 $30 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ 。

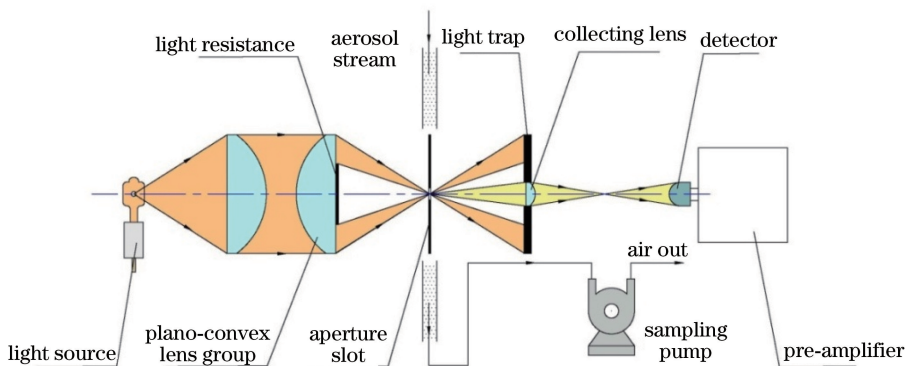


图5 实验装置图

Fig. 5 Schematic of experimental device

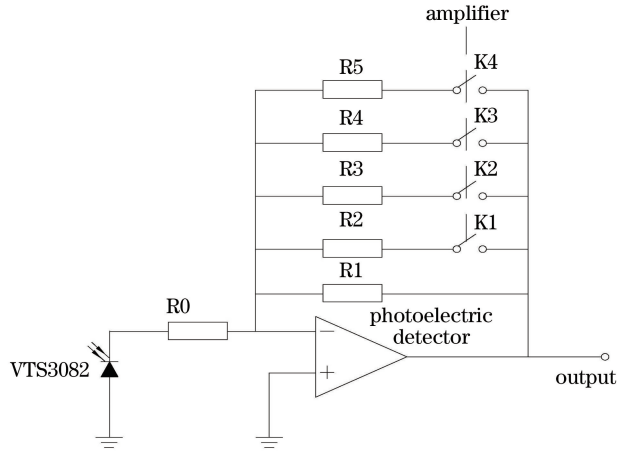


图6 前置放大器原理图

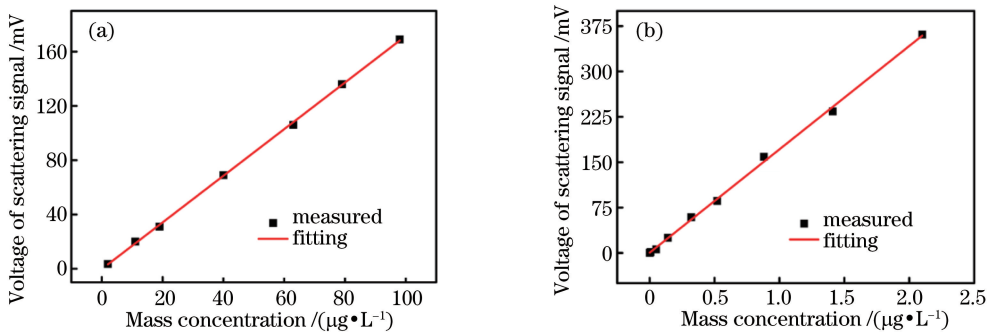
Fig. 6 Schematic of pre-amplifier

4 实验装置性能评估

在实验室环境下,对设计的实验装置进行了性能测试。气溶胶发生器在不同的工作压力下发生出不同浓度的 PAO 气溶胶粒子,其粒径分布满足标准要求^[11]。气溶胶浓度由美国 ATI 公司生产的 TDA-2I 型气溶胶测量仪来定标。气溶胶发生器的输出口连接德国 PALAS 公司生产的 DC10000ip 型稀释器的入口,通过稀释器可配出质量浓度范围为 $0\sim 100\ \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 的 PAO 气溶胶。稀释器的输出口连接一个三通阀,三通阀的另外两个气路口,一路与一个微型高效过滤器相连接,一路与图 5 所示的光学测量腔的气流入口相连接,经稀释的 PAO 气溶胶和经高效过滤的洁净空气均可进入光学测量腔,三通阀可对二者进行切换。经高效过滤的洁净空气有两个功能:1) 作为测试零基准点,消除环境中颗粒物对测试的影响;2) 对光学测量腔进行清洁,避免残留气溶胶对下一次测量产生影响。

测试得到的气溶胶浓度与散射光输出信号的电压关系如图 7 所示,其中图 7(a)所示为气溶胶质量浓度为 $2\sim 100\ \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 时测量装置输出的散射信号,图 7(b)所示为气溶胶浓度为 $6\times 10^{-4}\sim 2\ \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 时测量装置输出的散射信号。结果表明,装置的探测灵敏度达到了 $10^{-4}\ \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 量级。当线性拟合参数 R^2 大于 0.998 时,能够测量的浓度跨度为 6 个数量级。

值得一提的是,若用该装置来测量其他类型的气溶胶颗粒物,需要重新进行实验,确定散射光强度与浓度间的线性关系,因为不同类型的气溶胶粒子的折射率不同,粒径分布不同,散射光分布不同,散射光强也不同。

图7 气溶胶质量浓度与输出信号电压关系。质量浓度范围为(a) $2\sim 100\ \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ 和(b) $0\sim 2\ \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ Fig. 7 Aerosol mass concentration versus output signal voltage. Mass concentration ranges are (a) $2\sim 100\ \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ and (b) $0\sim 2\ \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$

5 结 论

基于 Mie 散射理论,采用高亮度卤钨灯作为光源,设计了一套近前向光散射结构的气溶胶浓度测量的

实验装置,并对实验装置中光学组件的结构、尺寸,以及相对位置进行了优化,使光学系统具有像差小、会聚光强度高、杂散光滤除效果好的特点,从而减小了暗电流,提高了探测灵敏度。设计了具有分档放大输出信号功能的前置放大器,实现了气溶胶宽量程测量。目前,实验装置对亚微米量级多分散气溶胶的浓度测试范围为 $0\sim 100\ \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$,探测灵敏度可达到 $10^{-4}\ \mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$,完全满足通风系统高效过滤器现场泄漏率检测要求,可推广于核工业、医药、微电子等领域,同时,对其他领域的亚微米级气溶胶的浓度检测也具有参考意义。在下一步工作中,将引入调制技术,进一步提高系统探测灵敏度。

参 考 文 献

- [1] Wu Jinlei, Zhang Jinbi, Zhang Li, *et al.* Near forward light scattering characteristics of airborne particles[J]. *Acta Optica Sinica*, 2016, 36(5): 0529001.
吴金雷, 张金碧, 张 莉, 等. 大气颗粒物近前向光散射特性研究[J]. *光学学报*, 2016, 36(5): 0529001.
- [2] 李建立. 基于光散射的微粒检测[D]. 烟台: 烟台大学, 2009: 17-22.
- [3] Chen Gang. An experimental research on particles size and concentration based on the light scattering[D]. Xi'an: Xidian University, 2007: 19-23.
陈 刚. 光散射法测量颗粒尺寸和浓度的实验研究[D]. 西安: 西安电子科技大学, 2007: 19-23.
- [4] 于 晓. 光散射颗粒物浓度测量仪特征参数的标定方法研究[D]. 南京: 南京理工大学, 2007: 7-12.
- [5] Li Linfeng, Zhang Lei, Dong Lei, *et al.* Experimental study of the concentration of soot based on the method of optical back-scattering[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2006, 35(6): 915-918.
李霖锋, 张 雷, 董 磊, 等. 光后向散射法测烟尘浓度的实验研究[J]. *光子学报*, 2006, 35(6): 915-918.
- [6] Gao Yongfeng. Investigation of light scattering technique and miniature optical sensor for the measurement of airborne particle[D]. Suzhou: Soochow University, 2005: 11-13.
高永锋. 尘埃粒子光散射测量技术及微型光学传感器的研究[D]. 苏州: 苏州大学, 2005: 11-13.
- [7] Xiang Jiansheng, He Junhua, Chen Min, *et al.* Study of character of the forward scattered light of bubbles based on Mie's light scattering theory[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2007, 36(11): 2111-2114.
项建胜, 何俊华, 陈 敏, 等. 基于 Mie 光散射理论的尾流气泡前向散射光特性研究[J]. *光子学报*, 2007, 36(11): 2111-2114.
- [8] 卢正永. 气溶胶科学引论[M]. 北京: 原子能出版社, 2000: 116-121.
- [9] Baron P A, Willeke K. *Aerosol measurement principles, techniques, and applications*[M]. Bai Zhipeng, Zhang Shan, *et al.*, Transl. Beijing: Chemical Industry Press, 2007: 265-272, 317-321.
巴 伦, 维勒克. 气溶胶测量原理、技术及应用[M]. 白志鹏, 张 汕, 等, 译. 北京: 化学工业出版社, 2007: 265-272, 317-321.
- [10] National Energy Administration. Code on nuclear air and gas treatment testing procedures. Part 1: Field testing of air treatment systems: NB/T 200196.1—2013[S]. Beijing: China Machine Press, 2013.
国家能源局. 核空气和气体处理规范试验规程. 第 1 部分: 空气处理系统的现场试验: NB/T 200196.1—2013[S]. 北京: 机械工业出版社, 2013.
- [11] The American Society of Mechanical Engineers. Testing of nuclear air treatment systems: N510-2007[S]. New York: The American Society of Mechanical Engineers Press, 2007.
- [12] Qiu Dangui, Zhang Jirong, Hou Jianrong, *et al.* Study on DOP substitutes for leaking rate testing of HEPA filter used in nuclear air cleaning systems[J]. *Radiation Protection*, 2012, 32(2): 95-102.
丘丹圭, 张计荣, 侯建荣, 等. 核空气净化系统高效过滤器泄漏检验 DOP 试剂替代研究[J]. *辐射防护*, 2012, 32(2): 95-102.