

## 流动气溶胶动态光散射测量中的流速限制

牟彤彤<sup>1</sup>, 申晋<sup>1\*</sup>, 李鑫强<sup>1</sup>, 王梦婕<sup>1</sup>, 王雅静<sup>1</sup>, 刘伟<sup>1</sup>, 袁曦<sup>1</sup>, 陈晓虎<sup>2</sup>, 朱新军<sup>3</sup><sup>1</sup> 山东理工大学电气与工程学院, 山东 淄博 255049;<sup>2</sup> 山东理工大学机械工程学院, 山东 淄博 255049;<sup>3</sup> 天津工业大学人工智能学院, 天津 300387

**摘要** 流速是流动气溶胶动态光散射(DLS)测量的重要制约因素。采用层流条件下的散射光强自相关函数(ACF)反演模拟和实测的流动气溶胶 DLS 数据,分析了流动对气溶胶颗粒粒度分布(PSD)测量的制约机制。结果表明,流速增加对气溶胶 PSD 反演结果的强烈影响不能通过流速的贡献在光强 ACF 模型中表达。导致粒度反演困难的原因是,流速的增加加剧了 ACF 所在的病态方程的病态性,表现为方程核矩阵条件数的增加。从信号分析的视角,是由于流速的增加降低了光强 ACF 中粒度信息的幅值。流速的影响与被测气溶胶的粒径有关,这种与粒径的关联性,可以通过表征布朗运动的扩散特征时间和表征气溶胶流动的平移特征时间之比进行评估。扩散与平移的特征时间比,既可表征 DLS 测量时流速对不同粒径气溶胶的不同影响,也可为实际测量时根据测量对象进行流速选择提供依据。

**关键词** 散射; 测量; 气溶胶; 颗粒粒度分布; 自相关函数

中图分类号 O436

文献标志码 A

doi: 10.3788/AOS202141.1429001

## Velocity Limitation in Dynamic Light Scattering Measurement for Flowing Aerosols

Mu Tongtong<sup>1</sup>, Shen Jin<sup>1\*</sup>, Li Xinqiang<sup>1</sup>, Wang Mengjie<sup>1</sup>, Wang Yajing<sup>1</sup>, Liu Wei<sup>1</sup>, Yuan Xi<sup>1</sup>, Chen Xiaohu<sup>2</sup>, Zhu Xinjun<sup>3</sup><sup>1</sup> School of Electrical and Electronic Engineering, Shandong University of Technology, Zibo, Shandong 255049, China;<sup>2</sup> School of Mechanical Engineering, Shandong University of Technology, Zibo, Shandong 255049, China;<sup>3</sup> School of Artificial Intelligence, Tiangong University, Tianjin 300387, China

**Abstract** The flow velocity is an important limiting factor behind dynamic light scattering (DLS) measurements for flowing aerosols. In this paper, the autocorrelation function (ACF) of scattering intensity under the laminar flow condition is used to retrieve the simulated and measured DLS data of flowing aerosols, and the restriction of flow velocities on the measurement of the particle size distribution (PSD) for aerosols is analyzed. The results show that the strong influence of velocity increase on the PSD retrieval results cannot be expressed in the ACF model through the contribution of flow velocities. The reason for the difficulty in particle size inversion is that the velocity increase aggravates the ill condition of the ill-conditioned equation where the ACF is located, which is manifested as the increase in the condition number of the kernel matrix in the equation. From the perspective of signal analysis, the increase in flow velocities reduces the amplitude of particle size information in ACF. The influence of flow velocities is related to the particle size of the measured aerosols, and this relevance to particle sizes can be evaluated by

收稿日期: 2021-01-11; 修回日期: 2021-01-26; 录用日期: 2021-02-07

基金项目: 国家自然科学基金(61801272)、山东省自然科学基金(ZR2018MF032, ZR2020MF124, ZR2017LF026)、山东省重点研发计划(2019GGX104017)、天津市自然科学基金(18JJCQNJC71100)、淄博市重点研发计划(校城融合发展类)(2019ZBXC011)

通信作者: \* shenjin@sdut.edu.cn

comparing the diffusion characteristic time in Brownian motion with the translation characteristic time in aerosol flow. The characteristic time ratio of diffusion to translation can not only characterize the different effects of flow velocities on aerosols with different particle sizes in DLS measurements, but also provide a basis for velocity selection according to the measured objects in actual measurements.

**Key words** scattering; measurement; aerosols; particle size distribution; autocorrelation function

**OCIS codes** 290.5820; 010.1110; 290.5850

## 1 引言

动态光散射(DLS)技术始于20世纪60年代<sup>[1-3]</sup>,已成为一种测量悬浮溶液中亚微米及纳米颗粒的标准方法<sup>[4-6]</sup>。其基本原理是,通过测量布朗粒子散射光强波动的特征时间,得到颗粒的扩散系数,从而获取颗粒的粒度分布(PSD)<sup>[7]</sup>。从测量机理上看,DLS测量技术既能用于溶液中的悬浮颗粒,也可用于气溶胶颗粒。然而,与液溶胶不同,气溶胶通常难以存放在固定容器中保持不变,而常规的DLS测量则要求被测样品处于静止状态<sup>[4-6]</sup>(通常是放在样品池内)。因此,DLS技术在实际应用中仅限于溶液中的悬浮颗粒测量。

2006年,Singh等<sup>[8]</sup>利用香烟产生烟气溶胶,在实验室中通过控制气溶胶以极低的流速流经散射区进行了DLS测量,在数据处理时忽略了气溶胶的流速,并采用累积法反演出气溶胶的平均粒径。2008年,郭永彩等<sup>[9]</sup>使用大气采样机将烟气颗粒吸入样品池中,静置后进行DLS测量。在这两个实验中,前者忽略了被测颗粒的微小平移运动,由此引起的测量误差是显而易见的。后者则由于取样方式的限制,浓度不易控制,且受管壁对烟气颗粒的吸附等因素的影响,得到的测量结果的准确性和可重复性不是很高,只可以给出颗粒平均粒径的大致范围。此外,为降低被测区域的浓度和保持烟气扩散较为均匀,烟气进入样品池后,需静置8~10 min。可以看出,按照测量液溶胶的通常方式对样品池中静置的气溶胶进行DLS测量,存在诸多难以克服的困难,也无法得到与液溶胶颗粒相媲美的测量结果。为解决这一问题,理想途径是对气溶胶进行流动状态下的在线测量。

与基于散射光空间依赖性(可用散射角表征)的静态光散射(SLS)不同,DLS则是基于散射光强的时间依赖性,可通过光强自相关函数(ACF)或其傅里叶变换——功率谱表征。按照经典的DLS的定义,除了布朗运动以外,任何外部因素导致的散射颗粒(即被测颗粒)位移对光强ACF的贡献,均被视为测量过程中的噪声作用,因为传统意义上的散射光

强ACF,是布朗运动导致颗粒散射光波动的表征。如果这些导致散射颗粒产生附加运动的外部因素能够在光强ACF表达式中得以体现,则不再被视为噪声,否则,在反演光强ACF时,这些外部因素对ACF的贡献就会以虚假信息的形式在反演的粒度分布中表现出来。由于颗粒流动不会对散射光的空间依赖性产生影响,因此,与DLS方法相比,基于SLS机理的各种方法在气溶胶测量研究中取得了更多的进展<sup>[10-15]</sup>。而颗粒流动本身存在时间依赖性,因此对流动的被测颗粒的光强波动进行ACF表征,是实现流动气溶胶DLS测量的首要条件。流动颗粒ACF的表征问题可追溯到1984年,当时Chowdhury等<sup>[16]</sup>基于Edwards等<sup>[17]</sup>的早期工作,推导出了单分散流动布朗粒子的光强ACF。在推导出的光强ACF表达式中,原来表征布朗运动的扩散项(带有扩散特征时间),改变成了其与表征定向运动的平移项(带有新引入的平移特征时间)的乘积。1986年,Taylor等<sup>[18]</sup>发现,平移项中的平移特征时间是由流速和入射光束焦点处的半径决定的,而与散射体相对于入射光束焦点的位置无关,这说明试图通过改变散射体位置来削弱平移特征时间对求取扩散特征时间的影响是无效的。他们因此修改了光强ACF表达式,用入射高斯光束的聚焦半径代替光束半径。1998年,Weber等<sup>[19]</sup>建立了多分散流动布朗粒子的ACF理论模型。一年后,他们提出可以通过动态光散射同时进行气溶胶的平均粒径、数量浓度和流速的测量<sup>[20]</sup>。此后,用于自混频相干测量的流动布朗粒子的ACF和功率谱表征模型也相继建立起来<sup>[21-22]</sup>。

散射光强ACF模型的建立,为流动颗粒DLS测量奠定了理论基础。但流动气溶胶在实际测量中的产业化应用,却一直未得以实现。流速本身的限制是重要因素之一,而且这一因素并未在ACF理论模型中得以表达。多分散ACF模型建立后的一段时间,流动气溶胶测量研究<sup>[23-24]</sup>仍采用单分散气溶胶的ACF模型,在实验中未涉及流速范围问题。前述的流动气溶胶测量研究中,带有流速控制的实验都采用较低的流速( $\leq 1.2$  m/s)。本文作者从2018

至 2019 年进行了流动多分散气溶胶 DLS 测量的模拟和实验,发现扩散特征时间和平移特征时间大体相等时的流速是评估测量结果性能指标的一个临界值<sup>[25]</sup>,这时的流速值与层流范围的上限有明显差距,与模拟数据相比,这种差距在实测数据中表现得更为显著。一般认为,湍流会破坏布朗运动<sup>[6]</sup>,在层流流速范围内,布朗运动未受到实质性的影响。然而,即使在层流范围内,采用已经考虑了流速贡献的 ACF 模型,流速的增加仍然导致反演得到的气溶胶分布呈显著劣化的趋势。本文分析和探索流速在其光强 ACF 表征背后潜在的对 DLS 测量的制约因素,定量描述其对测量的限制作用,在此基础上,通过流速、气溶胶粒径和扩散与平移特征时间比三者之间的关系,给出流动气溶胶 DLS 测量中流速选取的参考依据,也是本文将要进行的工作。

## 2 流动气溶胶 DLS 测量原理

在 DLS 技术中,散射光的光强 ACF 可表示为<sup>[26]</sup>

$$G^{(2)}(\tau) = B[1 + \beta |g^{(1)}(\tau)|^2], \quad (1)$$

式中: $B$  为测量基线; $\beta$  为空间相干因子; $g^{(1)}(\tau)$  为归一化电场 ACF。在没有定向流动的状态下,单分散颗粒体系的电场 ACF 表示为

$$g^{(1)}(\tau) = \exp(-\Gamma\tau), \quad (2)$$

式中:衰减线宽  $\Gamma = D_T q^2$ ;  $D_T = \frac{k_B T}{3\pi\eta d}$  是颗粒的扩散系数; $|q| = 4\pi n/\lambda_0 \sin\theta/2$  是散射矢量的模。在扩散系数和散射矢量的表达式中, $k_B$  为 Boltzmann 常数, $T$ 、 $\eta$  和  $n$  分别为介质的绝对温度、黏度系数和折射率, $d$  为颗粒粒径, $\lambda_0$  为入射光波长, $\theta$  为散射角度。

当布朗运动颗粒存在外力作用下的平移流动时,其 ACF 的衰减将由扩散和平移两部分运动共同作用,如果散射体内的颗粒数量满足高斯统计,则  $g^{(1)}(\tau)$  表示为<sup>[18]</sup>

$$g^{(1)}(\tau) = \exp(-\Gamma\tau) \exp\left(-\frac{v^2}{2\omega^2}\tau^2\right), \quad (3)$$

式中:流速  $v$  的方向与散射光接收方向垂直; $\omega = \frac{\lambda_0}{\pi\omega_0} f$  为经透镜后会聚光的束腰, $f$  和  $\omega_0$  分别为透镜焦距和入射光束腰。对于多分散气溶胶,以衰减线宽为权重来表示  $g^{(1)}(\tau)$ ,其离散化形式为

$$g^{(1)}(\tau) = \sum_{i=1}^N G(\Gamma_i) \exp(-\Gamma_i\tau) \exp\left(-\frac{v^2}{2\omega^2}\tau^2\right), \quad (4)$$

$$\Gamma_i = \frac{16\pi n^2 k_B T}{3\eta\lambda_0^2 d_i} \sin^2\left(\frac{\theta}{2}\right), \quad (5)$$

式中: $N$  为散射体内的颗粒数; $G(\Gamma_i)$  为归一化的线宽分布,且满足  $\sum_{i=1}^N G(\Gamma_i) = 1$ 。将(5)式代入(4)式,并直接以颗粒粒径为权重表示电场 ACF,得到

$$g_d^{(1)}(\tau) = \sum_{i=1}^N \exp\left[-\frac{16\pi n^2 k_B T}{3\eta\lambda_0^2 d_i} \sin^2\left(\frac{\theta}{2}\right) \cdot \tau\right] \times \exp\left(-\frac{v^2}{2\omega^2}\tau^2\right) \cdot f(d_i), \quad (6)$$

式中: $f(d_i)$  为待求的 PSD,且  $\sum_{i=1}^N f(d_i) = 1$ 。(6)式的向量形式为

$$\mathbf{g} = \mathbf{A}\mathbf{f}, \quad (7)$$

式中: $\mathbf{A}$  为电场 ACF 的核矩阵。(7)式是一典型的病态方程,即方程的求解对于条件极其敏感, $\mathbf{g}$  中的极微小误差或噪声,会导致  $\mathbf{f}$  的剧烈变化,其解的变化程度远远大于输入条件的变化程度。这种病态性的病态程度,可用  $\mathbf{A}$  的条件数进行评估,条件数越大,病态程度越高。病态方程的求解通常用正则化方法,Tikhonov 正则化<sup>[27]</sup> 是广泛采用的正则化方法,即通过求(7)式等价的泛函极值得到最接近原解的近似解。

$$J_\alpha(\mathbf{f}) = \|\mathbf{A}\mathbf{f} - \mathbf{g}\|_2^2 + \alpha^2 \|\mathbf{L}\mathbf{f}\|_2^2, \quad (8)$$

式中: $\|\cdot\|_2$  表示 L2 范数;正则参数  $\alpha (>0)$  采用 L-curve 准则选取;正则矩阵  $\mathbf{L}$  取单位阵。通过(8)式求取的分布  $\mathbf{f}$  中可能会出现负值,因此对  $f(d_i)$  进行非负约束,根据(8)式的转化形式求取  $f(d_i)$ 。

$$J_\alpha(\mathbf{f}) = \left\| \begin{bmatrix} \mathbf{A} \\ \alpha\mathbf{L} \end{bmatrix} \mathbf{f} - \begin{bmatrix} \mathbf{g} \\ \mathbf{0} \end{bmatrix} \right\|_2^2, \text{ s. t. } 0 \leq f(d_i) \leq 1. \quad (9)$$

## 3 模拟数据的反演

为评估流动气溶胶光强 ACF 模型的粒度反演性能,采用模拟数据对多分散气溶胶进行了反演。模拟的 PSD 采用 Johnson's  $S_B$  函数<sup>[28]</sup>,

$$f(d) = a_1 \frac{\sigma_1}{(d_{\max} - d_{\min}) \sqrt{2\pi}} [t(1-t)]^{-1} \times \exp\left\{-0.5 \left[u_1 + \sigma_1 \ln\left(\frac{t}{1-t}\right)\right]^2\right\} + a_2 \frac{\sigma_2}{(d_{\max} - d_{\min}) \sqrt{2\pi}} [t(1-t)]^{-1} \times \exp\left\{-0.5 \left[u_2 + \sigma_2 \ln\left(\frac{t}{1-t}\right)\right]^2\right\}, \quad (10)$$

式中:定位参数  $d_{\max}$ 、 $d_{\min}$  分别表示最小、最大颗粒粒径; $t = \frac{d-d_{\min}}{d_{\max}-d_{\min}}$  是归一化颗粒粒径,形状参数

$\sigma_1$ 、 $\sigma_2$ 、 $u_1$  和  $u_2$  为无量纲数,参数  $a$  满足  $a_1+a_2=1$ ,模拟的分布包括单峰和双峰,相应的参数取值如表 1 所示。

表 1 模拟的 PSD 参数和属性

Table 1 Parameters and properties of the simulated PSDs

$P$ /nm	$a_1$	$\mu_1$	$\sigma_1$	$a_2$	$\mu_2$	$\sigma_2$	$(d_{\min}, d_{\max})$ /nm
223	1.00	4.1	5.5	0	-	-	(2.01, 700.01)
687	1.00	3.0	5.3	0	-	-	(400.01, 1200.01)
152/734	0.35	9.8	5.7	0.65	-4.8	4.8	(2.01, 1000.01)

表 1 中  $P$  为 PSD 的峰值位置,模拟实验条件为  $\lambda_0=532$  nm,  $\omega_0=0.409$  mm,  $f=175$  mm,  $T=298.15$  K,  $n=1.0003$ ,  $\theta=90^\circ$ ,  $k_B=1.3807 \times 10^{-23}$  J·K<sup>-1</sup>,  $\eta=18.37 \times 10^{-3}$  mPa·s。ACF 模型中的参数取  $B=1$ ,  $\beta=0.7$ ,待求  $f(d_i)$  的取样点数取 120。为保证流体处于层流状态,流速的范围通过雷诺数  $Re=\rho_0 D_0 v/\eta$  限定,  $Re$  表达式中的  $\rho_0$  和  $D_0$  分别为流体介质的密度和流体所经管的当量直径。参照本文实验条件,取  $\rho_0=1.293$  kg·m<sup>-3</sup>,  $D_0=12$  mm。根据  $Re \leq 2000$  的层流条件,流速  $v$  在 0~2.3 m/s 之间,以 0.3 m/s 为间隔,从 0~2.1 m/s 选取 8 个速度值作为已知的条件参数。为接近实验条件下的实测数据,在模拟数据中加

入随机噪声

$$G_{\text{noise}}^{(2)}(\tau) = G^{(2)}(\tau) + \delta n(\tau), \quad (11)$$

式中: $n(\tau)$  为高斯随机噪声; $\delta$  代表噪声水平,依次选  $0$ 、 $10^{-5}$ 、 $10^{-3}$  三个等级的噪声水平。

为评估反演效果,引入性能指标——峰值位置误差( $E_P$ )和分布误差( $E_F$ ),分别表示为

$$E_P = \frac{|P_{\text{tr}} - P_{\text{in}}|}{P_{\text{tr}}}, \quad (12)$$

$$E_F = \left[ \frac{1}{N} \sum_1^N |f_{\text{tr}}(d) - f_{\text{in}}(d)|^2 \right]^{1/2}, \quad (13)$$

式中: $P$  和  $f(d)$  的下标 tr 和 in 分别对应真实的气溶胶分布与反演得到的气溶胶分布。 $E_P$  与  $E_F$  越小,代表反演性能越好。反演结果如图 1、2 所示。

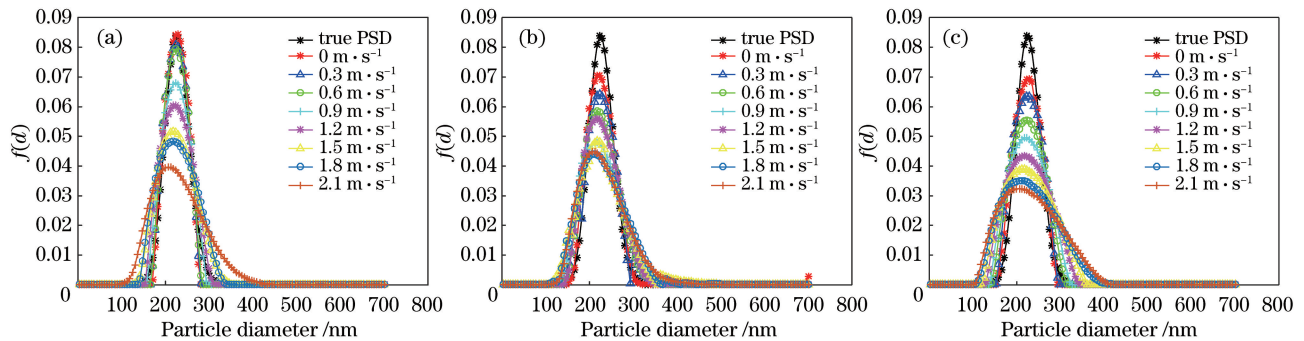


图 1 223 nm 单峰气溶胶在不同噪声水平下的 PSD 反演结果。(a) 0; (b)  $10^{-5}$ ; (c)  $10^{-3}$

Fig. 1 PSD inversion results of 223 nm unimodal aerosol under different noise levels. (a) 0; (b)  $10^{-5}$ ; (c)  $10^{-3}$

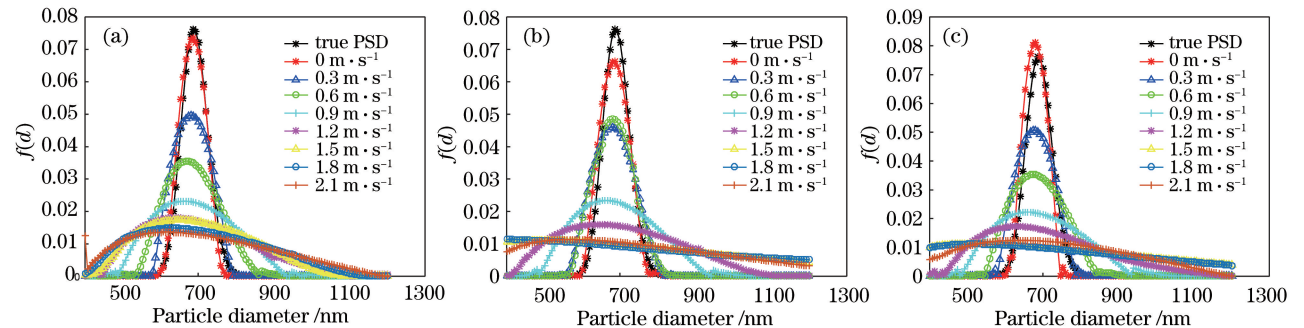


图 2 687 nm 单峰气溶胶在不同噪声水平下的 PSD 反演结果。(a) 0; (b)  $10^{-5}$ ; (c)  $10^{-3}$

Fig. 2 PSD inversion results of 687 nm unimodal aerosol under different noise levels. (a) 0; (b)  $10^{-5}$ ; (c)  $10^{-3}$

表 2 单峰气溶胶反演结果的性能指标

Table 2 Performance indices of the recovery of unimodal aerosol

$P$ /nm	Velocity / ( $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ )	0			$10^{-5}$			$10^{-3}$		
		$P$ /nm	$E_P$	$E_F$	$P$ /nm	$E_P$	$E_F$	$P$ /nm	$E_P$	$E_F$
223	0	223	0.000	0.032	223	0.000	0.037	229	0.027	0.043
	0.3	223	0.000	0.032	223	0.000	0.053	223	0.000	0.058
	0.6	223	0.000	0.031	217	0.027	0.072	223	0.000	0.080
	0.9	223	0.000	0.045	217	0.027	0.105	223	0.000	0.099
	1.2	223	0.000	0.066	217	0.027	0.080	217	0.027	0.119
	1.5	217	0.027	0.093	217	0.027	0.107	217	0.027	0.134
	1.8	217	0.027	0.103	211	0.054	0.117	211	0.054	0.145
	2.1	206	0.076	0.133	211	0.054	0.117	206	0.076	0.155
687	0	687	0.000	0.027	687	0.000	0.037	680	0.010	0.058
	0.3	680	0.010	0.083	680	0.010	0.094	680	0.010	0.083
	0.6	667	0.029	0.128	680	0.010	0.086	673	0.020	0.127
	0.9	660	0.039	0.167	660	0.039	0.166	660	0.039	0.169
	1.2	640	0.068	0.183	647	0.058	0.189	627	0.087	0.186
	1.5	647	0.058	0.185	-	-	0.209	-	-	0.208
	1.8	633	0.079	0.193	-	-	0.211	-	-	0.208
	2.1	613	0.108	0.197	-	-	0.205	-	-	0.199

从图 1、图 2 和表 2 可以看出,在零噪声水平下,对于 223 nm 单峰气溶胶,当流速微幅增加时,峰值位置误差和分布误差无明显变化,特别是峰值位置误差对流速微幅增加表现出明显的“不敏感”。随着流速的继续增加,峰值位置误差与分布误差逐渐增大,表现为峰值位置左移和 PSD 的展宽。随着噪声水平的提高,峰值位置误差和分布误差的增加呈加剧趋势。与 223 nm 单峰气溶胶相比,随着流速的增加,687 nm 单峰气溶胶的峰值位置误差和分布误差增加的趋势更为明显,已经没有了流速微幅增加时的“不敏感”区段。而且,噪声水平的提高对这两个误差的加剧更为显著,当流速大于 0.9 m/s 时,PSD 的展宽已使峰值不再明显。即使仅在  $10^{-5}$  这样的低噪声水平下,1.5 m/s 流速时反演结果中

的峰值也已完全消失。

从图 3 和表 3 可以看出,对于 152/734 nm 双峰气溶胶,两个峰的峰值位置误差,与单峰情况类似,随流速的增加而增大,且随着噪声水平的增高而加剧。从图 3 可以看出,PSD 的展宽同样随着流速的增加而增大,也随着噪声水平的增高而加剧,但在表 3 中,分布误差并没有表现出明显的规律性,这与分布误差的定义有关,分布误差只适合用于单峰分布,特别是窄分布,不适合用于双峰及多峰分布的评价。与单峰气溶胶相比,无论是峰值位置变化还是 PSD 的展宽,双峰气溶胶对流速和噪声都表现得更为敏感,当流速大于 0.9 m/s 时,由于峰值偏离或较大峰值展宽,导致 PSD 畸变严重,在流速继续增加的情况下,噪声会导致一个峰值的完全消失。

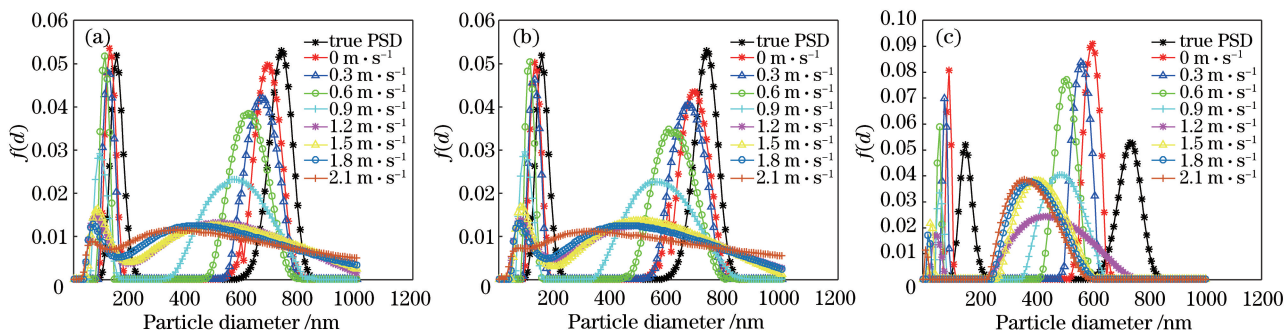


图 3 152/734 nm 双峰气溶胶在不同噪声水平下的 PSD 反演结果。(a) 0; (b)  $10^{-5}$ ; (c)  $10^{-3}$

Fig. 3 PSD inversion results of 152/734 nm bimodal aerosol under different noise levels. (a) 0; (b)  $10^{-5}$ ; (c)  $10^{-3}$

表 3 152/734 nm 双峰气溶胶反演结果的性能指标

Table 3 Performance indices of 152/734 nm bimodal aerosol inversion results

Velocity / (m·s <sup>-1</sup> )	0			10 <sup>-5</sup>			10 <sup>-3</sup>		
	P /nm	E <sub>P</sub>	E <sub>F</sub>	P /nm	E <sub>P</sub>	E <sub>F</sub>	P /nm	E <sub>P</sub>	E <sub>F</sub>
0	127/684	0.164/0.068	0.139	127/692	0.164/0.057	0.124	93/601	0.388/0.181	0.321
0.3	118/667	0.224/0.091	0.169	127/667	0.164/0.091	0.155	77/559	0.493/0.238	0.318
0.6	110/617	0.276/0.159	0.221	110/601	0.276/0.181	0.212	60/509	0.605/0.307	0.306
0.9	93/568	0.388/0.226	0.197	93/543	0.388/0.260	0.199	60/484	0.605/0.341	0.261
1.2	77/518	0.507/0.294	0.176	77/501	0.493/0.317	0.176	-/434	-/0.409	0.229
1.5	85/501	0.441/0.317	0.175	77/501	0.493/0.317	0.179	-/401	-/0.454	0.258
1.8	69/435	0.546/0.407	0.180	69/451	0.546/0.386	0.179	-/376	-/0.488	0.257
2.1	69/360	0.546/0.510	0.176	-/326	-/0.556	0.174	-/360	-/0.510	0.258

### 4 实测数据反演

实测数据取自自行研制的流动气溶胶 DLS 在线测量实验平台(图 4),装置的主要部分包括气溶胶发生器(SX-Q5)、固体激光器(MGL-III-532 nm-10 mW)、光子计数探测器(CH326)、光子相关器(Brookhaven BI-9000AT)和台式计算机。气溶胶通过 Laskin 喷管雾化癸二酸二异辛酯(DEHS, C<sub>26</sub>H<sub>50</sub>O<sub>4</sub>)产生,然后流经双向导通的 12 mm 方形比色皿,沿垂直于入射光方向进入会聚光束的束腰区,最后通过排风机排出。流速测量采用热敏风速计(SAR886A)。激光波长 λ<sub>0</sub>=532 nm,散射角 θ=90°,温度 T=298.15 K。

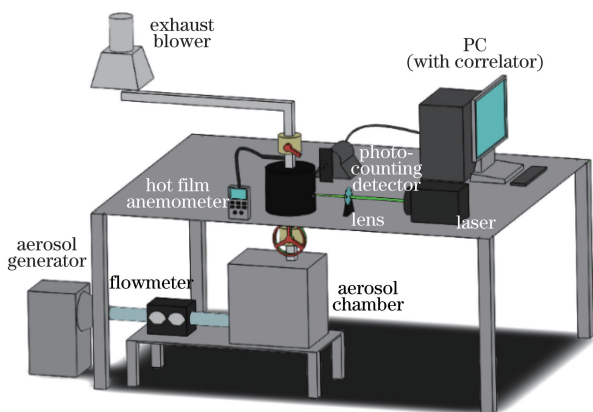


图 4 气溶胶测量实验装置

Fig. 4 Experimental device for aerosol measurement

在流速分别为 0 m/s、0.5 m/s、0.7 m/s 和 1.1 m/s 条件下,通过光子相关器得到气溶胶颗粒的光强 ACF[图 5(a)],反演后得到相应的 PSD 反演结果[图 5(b)]和性能指标(表 4)。表 4 中,峰值位置误差和分布误差分别用 E<sub>P0</sub> 和 E<sub>F0</sub> 表示,是以 0 m/s 时的反演结果作为真实的气溶胶分布,通过

与各流速下光强 ACF 的反演结果相比较得到的。

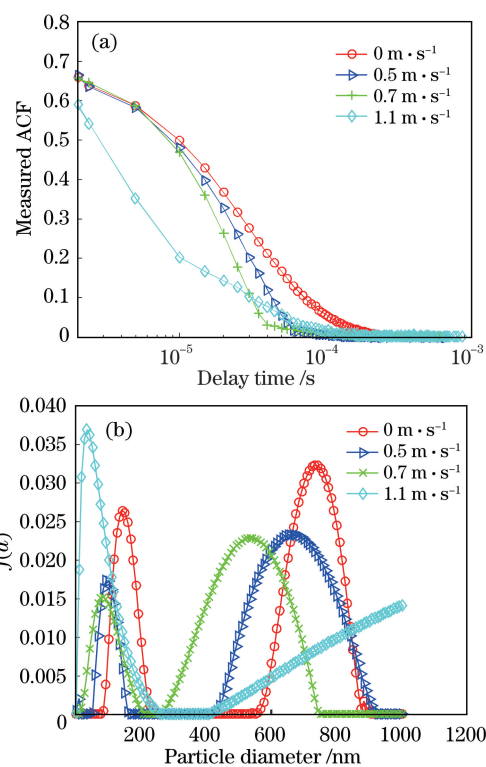


图 5 实验结果。不同流速下气溶胶的(a)光强 ACF 和 (b)反演结果

Fig. 5 Experimental results. (a) Intensity ACF and (b) inversion results of aerosol at different flow velocities

表 4 不同流速时气溶胶反演的性能指标

Table 4 Performance indices of aerosol inversion at different flow velocities

Velocity / (m·s <sup>-1</sup> )	P /nm	E <sub>P0</sub>	E <sub>F0</sub>
0	143/742	0.000/0.000	0.000
0.5	102/667	0.287/0.101	0.099
0.7	85/534	0.406/0.280	0.167
1.1	35/-	0.755/-	0.154

从图 5(b)和表 4 可以看出,反演结果为双峰 PSD,流速为 0 m/s 时,峰值位置为 143/742 nm。随着流速增加,颗粒的峰值位置逐渐左移,峰值位置误差逐渐增大,当流速达到 0.7 m/s 时峰值粒径为 85/534 nm,峰值位置误差增大到 0.406/0.280,结果已经严重失真。随着流速的继续增大,当流速增加到 1.1 m/s 时,反演结果中的一个峰消失。对照图 5(a)不难发现,气溶胶 PSD 反演结果的劣化程度与光强 ACF 的衰减加剧是明显对应的。随着流速的增加,光强 ACF 衰减速度加快,反演结果失真加重,当流速达到某一临界值时,得到的气溶胶粒度结果不再具有实际意义。

### 5 结果分析

为分析流速变化影响气溶胶反演的原因,计算了不同流速核矩阵  $A$  的条件数(图 6)。由图 6 可知,随着流速的增加,条件数呈接近幂指数规律增大,表明(7)式的病态程度从对流速轻微增加的不显著增大到随流速增加的剧烈提升,这一现象与气溶胶数据反演结果一致,说明在流速微增没有导致方程病态性显著增加的情况下,流速对气溶胶反演没有显著影响。随着流速的增加,方程病态程度趋重,使得方程的求解对噪声敏感度增强,图 1、图 2 和图 3 中表现出噪声在流速显著增加后对反演影响的剧烈程度。

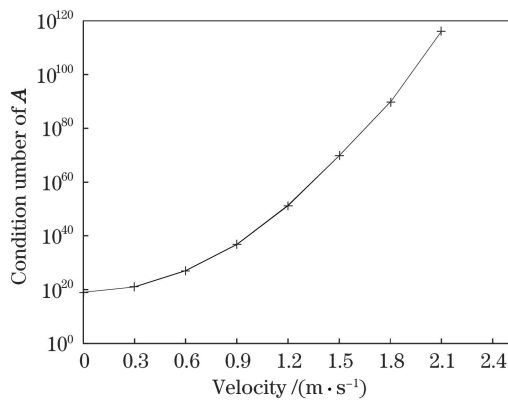


图 6 不同流速下对应 687 nm 气溶胶的核矩阵条件数  
Fig. 6 Condition number of kernel matrix corresponding to 687 nm aerosol at different flow velocities

从求解反问题的角度分析,用 DLS 方法获取准确 PSD 受制于(7)式的病态程度,这一病态程度可用核矩阵  $A$  的条件数评估。在有流速项加权的情况下,伴随着流速的增加, $A$  的条件数增大,说明(7)式的病态程度加重,导致其对被测数据中误差和噪声的敏感度增强。比较模拟与实测数据的反演结

果还可以看出,有噪声情况下模拟数据的反演结果更趋近实测气溶胶数据的反演结果,反映了实测数据中噪声的存在。

为从信号分析的角度探寻流速变化的影响,本文利用模拟的光强 ACF 与平均粒径重构的光强 ACF 比较的方法<sup>[29-30]</sup>,计算了不同流速下 687 nm 单峰气溶胶在 ACF 中的颗粒粒度信息(PSD)分布,如图 7 所示。可以看出,随流速增加,ACF 中的 PSI 幅度呈明显的下降趋势,说明流速的增大,增加了信息提取的难度。

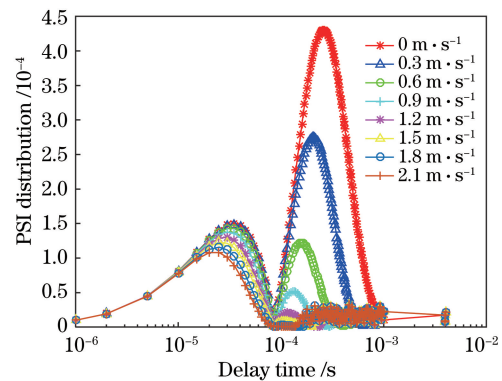


图 7 不同流速下的 687 nm 单峰气溶胶在对应 ACF 中的 PSI 分布

Fig. 7 PSI distributions of a 687 nm unimodal aerosol in corresponding ACF at different flow velocities

从单峰气溶胶反演中可以看出,流速对气溶胶测量的影响与气溶胶粒径有关。将(3)式代入(1)式,并分别用  $\tau_1$  和  $\tau_2$  表示扩散特征时间  $(2D_T q^2)^{-1}$  和平移特征时间  $\omega/v$ ,得到

$$G^{(2)}(\tau) = B[1 + \beta \exp(-\tau/\tau_1) \exp(-\tau^2/\tau_2^2)] \quad (14)$$

可以看出,流速通过  $\tau_2$  对 ACF 的作用与  $\tau_1$  的大小有关,即对不同粒径的颗粒,流速的影响是不同的,ACF 受粒径和流速的双重影响。为便于分析,令  $G_{dt}(\tau) = \exp(-\tau/\tau_1) \exp(-\tau^2/\tau_2^2)$  代表扩散运动和平移运动共同作用的 ACF,  $G_d(\tau) = \exp(-\tau/\tau_1)$  代表扩散运动作用的 ACF,  $G_t(\tau) = \exp(-\tau^2/\tau_2^2)$  代表平移运动的作用的 ACF。分别选取粒径 223 nm、458 nm 和 687 nm 气溶胶颗粒,给出其在纯布朗运动(平移速度为 0)、流速为 2.1 m/s 的纯平移流动(扩散速度为 0)和既有平移运动又有扩散运动情况下模拟的 ACF,如图 8 所示。可以看出,  $G_{dt}$  是  $G_t$  对  $G_d$  加权的结果,取值在 0~1 之间的权重  $G_t$  加速了  $G_d$  的衰减。在整个延迟时间范围内,由于表征平移流速的权重  $G_t$  随延迟时间的增加而

递减, 所以其加权对  $G_d$  后半段的衰减更为显著。如果在反演过程中, 将这种衰减看做布朗运动所致, 则会导致反演粒径的减小和分布的展宽。在平移速度一定的条件下, 随着颗粒粒径的增加,  $\tau_1$  逐渐增

大,  $G_d$  衰减相应减缓, 并逐渐趋近  $G_t$ , 并在长延迟时段与  $G_t$  相交。随着粒径的继续增加, 交点逐渐左移,  $\tau_1/\tau_2$  的值也随交点的移动从小于 1 增大至等于 1 直至大于 1。

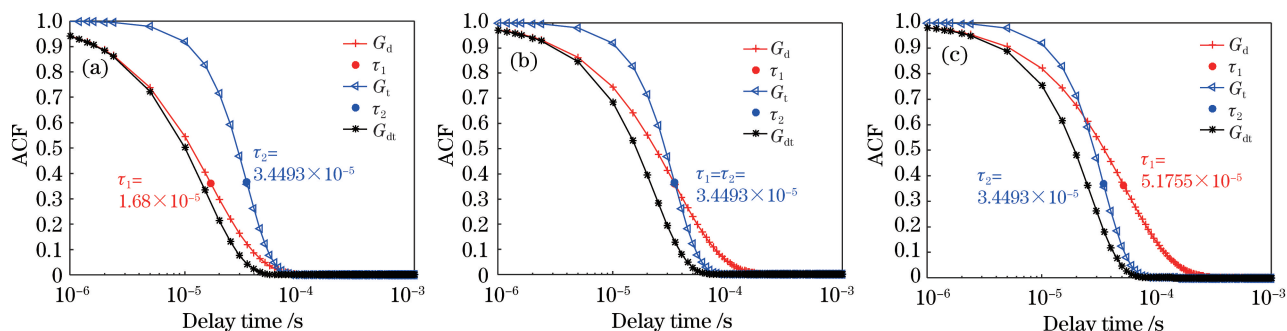


图 8 不同粒径单峰气溶胶在 2.1 m/s 流速下的模拟 ACF。(a) 223 nm; (b) 458 nm; (c) 687 nm  
Fig. 8 Simulated ACF of unimodal aerosols with different particle sizes at flow velocity of 2.1 m/s.  
(a) 223 nm; (b) 458 nm; (c) 687 nm

不难看出,  $G_{dt}$  与  $G_d$  的偏差随  $G_d$  和  $G_t$  交点左移而逐渐增大, 无论是流速的增加, 还是颗粒粒径的增大, 都体现在  $\tau_1/\tau_2$  的增大, 使得  $G_{dt}$  与  $G_d$  的偏差增加, 对应着气溶胶反演结果变差。在实际测量中, 适宜的流速与被测对象有关, 为直观描述流速对测量结果的影响和这种影响与气溶胶粒径的相关性, 本文给出气溶胶粒径、平移流速以及相应的特征时间比  $\tau_1/\tau_2$  之间的关系如图 9 所示, 根据前期研究<sup>[25]</sup>, 图中将  $\tau_1/\tau_2 = 1$  作为反演结果性能指标显著变差的临界值, 绿色区域对应着性能指标与非流动测量相比无明显改变的流速, 黄色区域为性能指

标有明显改变的流速, 橙色区域为性能指标显著变差的流速, 红色区域为测量结果无实际意义的流速。

## 6 结 论

对于流动状态下的气溶胶 DLS 测量, 在不干扰布朗运动的层流条件下采用含有扩散和平移两种贡献的光强 ACF 模型, 流速的增加仍然强烈地影响着气溶胶 PSD 测量的准确性。这种影响限制了 DLS 在气溶胶测量中的应用, 其在 ACF 模型表征背后的潜在作用体现在: 从求解反问题角度, 核矩阵条件数的增加, 表明增加流速加剧了 ACF 方程的病态性, 从而使噪声作用增强, 粒度反演的难度增大。从信号分析的角度, 通过不同流速下光强 ACF 中的粒度信息比较可看出, 流速的增加降低了光强 ACF 中粒度信息的幅值, 从而增加了粒度信息提取的难度, 但这种幅值的变化未能以流速贡献的形式在光强 ACF 模型中得以表达。

流速对流动气溶胶 DLS 测量影响的复杂性还体现在: 对不同粒径气溶胶进行测量时, 流速的影响是不同的, 粒径越大, 流速影响越强烈。流速影响与粒径的关联性可以通过表征布朗运动的扩散特征时间和表征气溶胶流动的平移特征时间之比进行评估, 扩散与平移的特征时间比, 既表征了 DLS 测量时流速对不同粒径气溶胶的不同影响, 也可在实际测量时的流速选择提供依据。

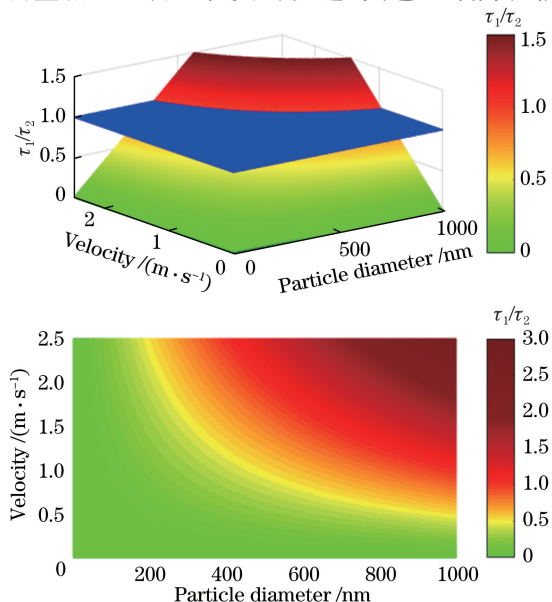


图 9 气溶胶粒径、流速和扩散与平移特征时间比的关系  
Fig. 9 Relationship among aerosol particle size, flow velocity, and diffusion translation characteristic time ratio

## 参 考 文 献

[1] Pecora R. Doppler shifts in light scattering from pure liquids and polymer solutions [J]. The Journal of



- Chemical Physics, 1964, 40(6): 1604-1614.
- [2] Cummins H Z, Knable N, Yeh Y. Observation of diffusion broadening of Rayleigh scattered light [J]. Physical Review Letters, 1964, 12(6): 150-153.
- [3] Ford N C, Benedek G B. Observation of the spectrum of light scattered from a pure fluid near its critical point [J]. Physical Review Letters, 1965, 15(16): 649-653.
- [4] Particle size analysis-photon correlation spectroscopy: ISO 13321—1996 [S]. International Organization for Standardization, 1996.
- [5] Particle size analysis-dynamic light scattering (DLS): ISO 22412—2008 [S]. International Organization for Standardization, 2008.
- [6] Particle size analysis-dynamic light scattering (DLS): ISO 22412—2017 [S]. International Organization for Standardization, 2017.
- [7] Hassan P A, Rana S, Verma G. Making sense of Brownian motion: colloid characterization by dynamic light scattering [J]. Langmuir, 2015, 31(1): 3-12.
- [8] Singh R P, Jaiswal V K, Jain V K. Study of smoke aerosols under a controlled environment by using dynamic light scattering [J]. Applied Optics, 2006, 45(10): 2217-2221.
- [9] Guo Y C, Yang Y, Gao C, et al. Application of dynamic light scattering for analyzing diameter of smoke particles in gas [J]. Opto-Electronic Engineering, 2008, 35(8): 78-82.  
郭永彩, 杨阳, 高潮, 等. 动态光散射在烟气颗粒粒径分析中的应用 [J]. 光电工程, 2008, 35(8): 78-82.
- [10] Huber F J T, Will S. Characterization of a silica-aerosol in a sintering process by wide-angle light scattering and principal component analysis [J]. Journal of Aerosol Science, 2018, 119: 62-76.
- [11] Lu C Y, Zhang P, Wang G H, et al. Application of sheath flow technique in aerosol particle sensor [J]. Chinese Journal of Lasers, 2019, 46(1): 0104006.  
鲁晨阳, 张佩, 王光辉, 等. 鞘流技术在气溶胶颗粒物光学传感器上的应用研究 [J]. 中国激光, 2019, 46(1): 0104006.
- [12] He Z Z, Mao J K, Han X S, et al. Retrieval of aerosol optical constants from angular light-scattering measurement signals using principal component analysis approach [J]. Particuology, 2019, 43: 210-218.
- [13] Ma X M, Tao Z M, Shan H H, et al. Statistical distribution of extinction coefficients of tropospheric aerosols detected by lidar [J]. Acta Optica Sinica, 2020, 40(11): 1101003.  
麻晓敏, 陶宗明, 单会会, 等. 激光雷达探测对流层气溶胶消光系数的统计分布 [J]. 光学学报, 2020, 40(11): 1101003.
- [14] Chen P, Zhao J G, Song Y S, et al. Influence of microscopic characteristics of aerosol particles on backscattering echo [J]. Chinese Journal of Lasers, 2019, 46(4): 0405001.  
陈鹏, 赵继广, 宋一铄, 等. 气溶胶粒子微观特性对后向散射回波的影响 [J]. 中国激光, 2019, 46(4): 0405001.
- [15] Wang Z Z, Tao Z M, Liu D, et al. A new method for a side-scattering lidar to retrieve the aerosol backscattering coefficient [J]. The European Physical Journal Conferences, 2020, 237(5723): 08001.
- [16] Chowdhury D P, Sorensen C M, Taylor T W, et al. Application of photon correlation spectroscopy to flowing Brownian motion systems [J]. Applied Optics, 1984, 23(22): 4149-4154.
- [17] Edwards R V, Angus J C, French M J, et al. Spectral analysis of the signal from the laser Doppler flow-meter: time-independent systems [J]. Journal of Applied Physics, 1971, 42(2): 837-850.
- [18] Taylor T W, Sorensen C M. Gaussian beam effects on the photon correlation spectrum from a flowing Brownian motion system [J]. Applied Optics, 1986, 25(14): 2421-2426.
- [19] Weber R, Schweiger G. Photon correlation spectroscopy on flowing polydisperse fluid-particle systems: theory [J]. Applied Optics, 1998, 37(18): 4039-4050.
- [20] Weber R, Schweiger G. Simultaneous *in-situ* measurement of local particle size, particle concentration, and velocity of aerosols [J]. Journal of Colloid and Interface Science, 1999, 210(1): 86-96.
- [21] Wang H, Shen J, Wang B, et al. Laser diode feedback interferometry in flowing Brownian motion system: a novel theory [J]. Applied Physics B, 2010, 101(1/2): 173-183.
- [22] Wang H R, Shen J Q, Cai X S. Online measurement of nanoparticle size distribution in flowing Brownian motion system using laser diode self-mixing interferometry [J]. Applied Physics B, 2015, 120(1): 129-139.
- [23] Kroner G, Fuchs H, Tatschl R, et al. Determination of soot particle size in a diffusion flame: a dynamic light scattering study [J]. Aerosol Science and Technology, 2003, 37(10): 818-827.
- [24] Sorensen C M. Light scattering as a probe of nanoparticle aerosols [J]. Particulate Science and Technology, 2010, 28(5): 442-457.
- [25] Mu T T, Shen J, Wang M J, et al. Particle size distribution measurement in a flowing aerosol using dynamic light scattering [J]. Measurement Science

- and Technology, 2021, 32(7): 075007.
- [26] Thomas J C. Photon correlation spectroscopy: technique and instrumentation [J]. Proceedings of SPIE, 1991, 1430: 2-18.
- [27] Bell J B, Tikhonov A N, Arsenin V Y. Solutions of ill-posed problems[J]. Mathematics of Computation, 1978, 32(144): 1320-1322.
- [28] Yu A B, Standish N. A study of particle size distributions[J]. Powder Technology, 1990, 62(2): 101-118.
- [29] Xu M, Shen J, Huang Y, et al. Weighting inversion of dynamic light scattering based on particle-size information distribution character [J]. Acta Physica Sinica, 2018, 67(13): 134201.
- 徐敏, 申晋, 黄钰, 等. 基于颗粒粒度信息分布特征的动态光散射加权反演 [J]. 物理学报, 2018, 67(13): 134201.
- [30] Xu Y N, Shen J, Xu M, et al. Deviation-weighted inversion of dynamic light scattering based on autocorrelation function reconstruction [J]. Acta Optica Sinica, 2018, 38(12): 1229002.
- 徐亚南, 申晋, 徐敏, 等. 基于自相关函数重构的动态光散射偏差加权反演 [J]. 光学学报, 2018, 38(12): 1229002.