

文章编号:1004-4213(2010)06-1132-5

## DOP 气溶胶浓度的光学检测\*

马英<sup>1</sup>,刘群<sup>1</sup>,丘丹圭<sup>1</sup>,史英霞<sup>1</sup>,侯建荣<sup>1</sup>,尹王保<sup>2</sup>

(1 中国辐射防护研究院,太原 030006)

(2 山西大学 量子光学与量子器件国家重点实验室,太原 030006)

**摘要:**为了保证高效过滤器良好的工作性能,对广泛应用于高效过滤器效率及现场检漏的邻苯二甲酸二辛酯法进行了分析,并针对邻苯二甲酸二辛酯气溶胶浓度的光学检测理论进行了归纳总结.在 Mie 氏散射理论基础上,获得了在发特定气溶胶情况下,散射光强与被测粒子浓度的数学模型.在此理论模型下,设计制作了检测光学模组,并对其进行了测试.实验表明,理论模型合理,散射光强度与其质量浓度具有良好的线性关系.

**关键词:**邻苯二甲酸二辛酯法;Mie 氏散射;气溶胶;散射光强;质量浓度

**中图分类号:** TN29

**文献标识码:** A

**doi:** 10.3788/gzxb20103906.1132

### 0 引言

核级高效过滤器(High Efficiency Particulate Air Filter, HEPA)是核设施通风净化系统中最重要的安全设备之一,它具有极高的污染物捕集效率,确保了核设施通风系统的排风符合大气排放标准.它的可靠性对于核设施的安全运行具有重要的意义.

高效过滤器的现场试验方法主要有邻苯二甲酸二辛酯(Dioctylphthalate)又称 DOP 法、荧光素钠法、钠焰法、油雾法、最易穿透粒径法 MPPS(Most Penetratable Particulate Size)等.其中 DOP 法已有 50 多年的历史,与其他方法相比而言,它具有操作便捷、实时、在线、连续测量的优点以及测试灵敏度高、重复性好、可测范围宽、尘源无放射性的特点,因而广泛应用于高效过滤器以及核级高效过滤器的现场试验.目前我国的部分核电站就采用该方法进行核级高效过滤器的现场试验.然而该方法中的尘源 DOP 中含有苯环,具有潜在的致癌性,目前采用性能类似但不含苯环的癸二酸二辛酯 DEHS[di(2-ethylexyl)sebacate]、聚 a 烯烃 PAO(polyaphaolefin)等做为替代物.但试验方法仍称为“DOP 法”.

近年来随着光电技术、微电子技术的迅猛发展,使得光散射法越来越多地应用于各种气溶胶(包括固体颗粒、液滴等)浓度的检测及粒径的测量<sup>[1-8]</sup>. DOP 气溶胶就是一种球形液滴,利用光散射法具有高灵敏度的特点,测量 DOP 气溶胶在光束中产生的

光散射强度,可以直接准确地测量其相对质量浓度.

本文基于 Mie 散射理论,采用近前向散射光测量系统,在结合 DOP 气溶胶浓度测量技术基础上,理论分析计算了散射光强与 DOP 气溶胶质量浓度的关系,在理论分析的基础上设计制作了一套检测光学模组,并对其进行了测试,实验表明,理论模型合理,散射光强度与其质量浓度具有良好的线性关系.

### 1 DOP 光学检测基本理论

光散射是一种可观测的光与物质的相互作用.光散射的类型极大地依赖于粒子尺度与入射波长的比值.一般地,当粒径  $D \ll \lambda$ ,通常当  $D/\lambda < 1/10$  时,此属于 Rayleigh 散射范围,照射在颗粒上的光前后等概率地向  $4\pi$  立体角空间散射.当  $D \sim \lambda$ ,但  $D < \lambda$  时,为 Mie 散射范围,此时照射在粒子上的光非均匀的向各方向散射.而当  $D \sim \lambda$ ,但  $D > \lambda$  时,为 Anomalous 衍射范围.当  $D \gg \lambda$  时,通常  $D/\lambda > 10$  时,为 Fraunhofer 衍射区域<sup>[1]</sup>.

本文研究的 DOP 气溶胶粒子是由 DOP 气溶胶发生器发生出来的,其粒径分布绝大多数处于亚微米级.图 1 是采用型号为 WPS 1000XP-A 宽范围颗粒粒径谱仪测量的 DOP 气溶胶的粒径分布图.可见光的波长范围为 400~700 nm,因此 DOP 球型液滴的直径与光波长的关系为  $D \sim \lambda$ ,但  $D < \lambda$ ,属于 Mie 散射范围.

\* 国家青年科学基金(60908019)资助

Tel:13513636230

Email:mying1000@163.com

收稿日期:2009-11-26

修回日期:2010-03-03

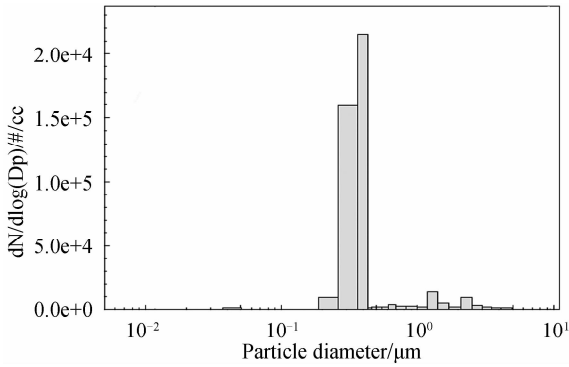


图 1 DOP 气溶胶粒径分布  
Fig.1 DOP aerosol particle diameter distribution

Mie 散射理论是德国科学家 Gustav Mie 于 1908 年提出,该理论是对处于均匀介质中的各向均匀同性的单个介质球在单色平行光照射下的麦克斯韦方程的精确解,适用于一切均质球形颗粒的光散射规律<sup>[1,7]</sup>.

根据 Mie 散射理论,球形颗粒的散射如图 2. 当波长为  $\lambda$ ,强度为  $I_0$  的平行光入射到一个颗粒直径为  $D$ ,折射率为  $m$  的各向同性的球形颗粒上时,散射光场某点  $P$  的散射光强度可写为<sup>[1,7]</sup>

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

式中, $\gamma$  为点  $P$  距散射颗粒的距离、 $\theta$  为散射角.  $i_1(k, m, \theta)$  和  $i_2(k, m, \theta)$  称为散射强度函数,分别表示平行与垂直于散射面的强度分量.

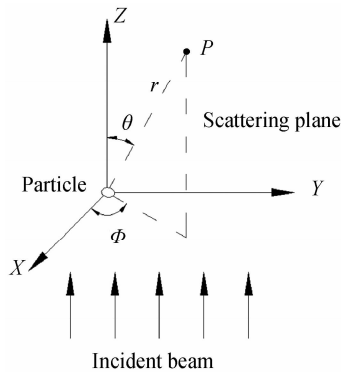


图 2 球形颗粒的 Mie 散射示意图  
Fig.2 Mie scattering of spheric particle

散射强度函数可用散射振幅函数分别表示为

$$i_1(k, m, \theta) = |S_1(k, m, \theta)|^2 \quad (2)$$

$$i_2(k, m, \theta) = |S_2(k, m, \theta)|^2 \quad (3)$$

式中  $m$  是颗粒折射率, $k$  为颗粒尺寸参量,表示为

$$k = \pi D / \lambda \quad (4)$$

按 Mie 散射理论,散射振幅函数表达式为

$$S_1(k, m, \theta) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} \{a_n \pi_n(\cos \theta) + b_n \tau_n(\cos \theta)\} \quad (5)$$

$$S_2(k, m, \theta) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} \{a_n \tau_n(\cos \theta) + b_n \pi_n(\cos \theta)\}$$

$$b_n \pi_n(\cos \theta) \} \quad (6)$$

由此可以看出,要求出 Mie 散射光强  $i_1(k, m, \theta)$  和  $i_2(k, m, \theta)$ ,关键在于求出其散射系数  $a_n$ 、 $b_n$  以及散射角函数  $\pi_n$ 、 $\tau_n$ . 散射系数  $a_n$ 、 $b_n$  是与  $k$ 、 $m$  有关的量,其值可由 Ricattic-Bessel 函数决定,散射角函数  $\pi_n$ 、 $\tau_n$  仅和散射角  $\theta$  有关,可由勒让德(Legendre)函数给出.

目前测量气溶胶质量浓度的散射光测量系统常见的主要有三种形式:近前向散射光测量系统、垂直方向散射光测量系统及后向散射光测量系统,如图 3<sup>[1,3,7-8]</sup>. 通过比较研究这三种系统,得出:在一定的粒径范围内,前向散射光强于后向散射光<sup>[7]</sup>;从提高探测灵敏度的角度来讲,近前向散射光收集系统的灵敏度高于垂直方向散射光测量系统;从光通量和粒径的关系上讲,垂直方向散射光收集系统的单值性要优于近前向散射光测量系统,但在小粒径情况下,近前向散射光收集系统既有高的灵敏度又有好的单值性<sup>[1]</sup>. 由于用 DOP 发生器发生出的粒子粒径较小,颗粒粒径分布比较集中,绝大多数处于亚微米级,因此采用近前向散射光测量系统测量 DOP 气溶胶的质量浓度.

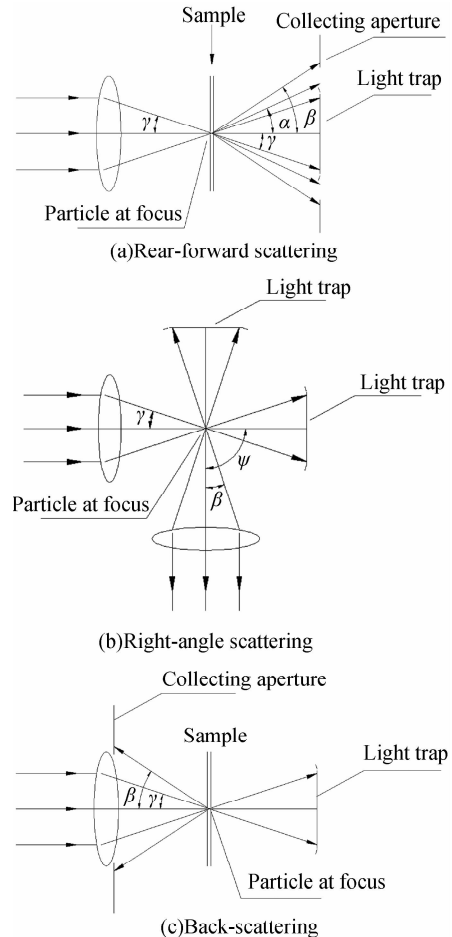


图 3 散射光收集系统  
Fig.3 Collecting system of light scattering

图中： $\gamma$ 为照明光束会聚角， $\beta$ 为散射光收集系统孔径半角， $\psi$ 为照明系统和散射光收集系统的光轴夹角， $\alpha$ 为光陷阱半张角。

基于前文所述理论，本文设计了一套光学检测模组如图4。

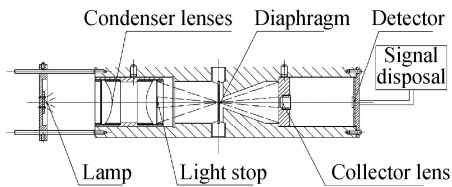


图4 光学测量腔  
Fig. 4 Optic measuring chamber

光学测量腔的照明系统采用高亮度白色LED做光源，散射光收集系统采用近前向散射光收集系统，包括聚焦透镜、光阻、收集透镜、光阑、光陷阱、光电二极管等。LED发出的光经过聚焦透镜使光聚焦于光敏感区，采样气流垂直通过光敏感区发生光散射，收集透镜将散射光收集聚焦，光电二极管将散射光信号转换为电信号。

根据Mie散射理论，式(1)给出了单个粒子的散射光强度计算公式。在图4中，当采样气流垂直通过光学测量腔的光敏感区时，发生光散射的不是单个粒子，而是光敏感区体积内的整个粒子群，粒子群构成了一个散射体。在低浓度情况下，多次散射是可以忽略的，而且对于一个散射体来说，粒子之间的间距都数倍于粒子半径，这时可以认为每个粒子都是独立于其它粒子散射的。因此可以近似地认为散射体中粒子是相互独立和不相干的单次散射。那么在某一方向上的合成散射光强，就是散射体中各个粒子在该方向上散射强度的迭加<sup>[2-4]</sup>。

$$I(P)_{\Sigma} = \sum_{i=1}^N I(P)_i \quad (7)$$

$$I(P)_{\Sigma} = N \frac{\lambda^2 I_0}{8\pi^2 r^2} \int_0^{D_{MAX}} \{ [i_1(k, m, \theta) + i_2(k, m, \theta)] F_N(D) \} dD \quad (8)$$

式中， $F_N(D)$ 为粒子的频率分布函数， $N$ 为敏感区体积内总粒子数。

由公式(8)可以看出，在入射波长 $\lambda$ 、入射光强 $I_0$ 、探测距离 $\gamma$ 、被测粒子的尺寸参量 $k$ 、折射率 $m$ 、散射角 $\theta$ 以及粒子分布均已知的情况下，散射光强就与粒子数浓度成正比。在一定温度压力条件下，已知DOP粒子的相对密度为0.986 g/cm<sup>3</sup>，折射率 $m=1.49-0i$ ，粒子数与质量之比是个常数，故散射光强与粒子的质量浓度成正比。

因此，通过测量特定光路下气溶胶引起的散射光强就可以达到间接测量气溶胶浓度。

## 2 DOP光学检测实验

### 2.1 实验装置

图5为近前光散射法测试DOP气溶胶浓度的实验装置原理框图。光源采用高亮度的白色发光二极管，具有发光效率高，驱动功率小，便于调制的特点。由幅度范围可调的恒流源(Newport Model 505 Laser Diode Driver,最大幅值400 mA)驱动LED。由矢量锁相放大器(Stanford Research Systems Model, SR830)中内置的方波发生器发出信号加在恒流源上对发光二极管进行强度调制。通过对光的调制不仅使光信号携带信号，从而具有与背景辐射不同的特征，便于抑制背景光的干扰，而且抑制了系统中各个环节的固有噪声和外部电磁场的干扰。因此使用光的调制技术使得系统具有更高的探测能力<sup>[9]</sup>。

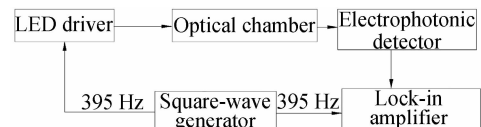


图5 实验装置原理  
Fig. 5 Principle diagram of the experimental device

如图6光路图及图7气路连接图，LED光源通过聚焦透镜会聚在光敏感区，当采样气流由真空隔膜泵以28.3 L/min的速率采样至光学测量腔室时，DOP气溶胶粒子流垂直通过光敏感区，在入射光的作用下发生光散射，散射光通过收集透镜会聚到光电转换器上，光电转换器将光信号转换成电信号，输入锁相放大器进行相关解调并显示电信号的电流值。

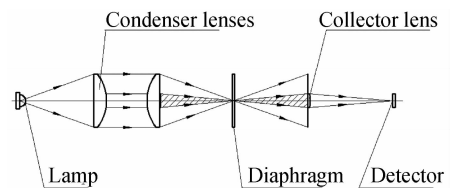
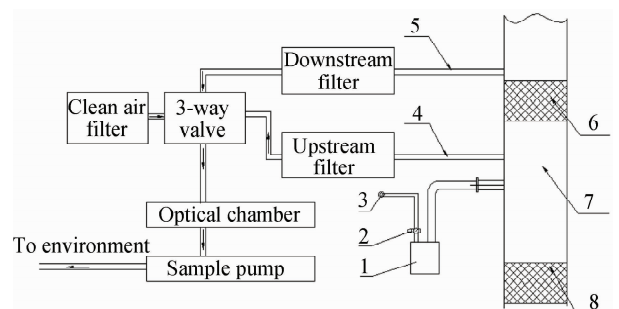


图6 光路图  
Fig. 6 Optical diagram



1-Aerosol generator(cold),2-Pressure regulator,  
3-Compressed air resource,4-Upstream sample tube,  
5-Downstream sample tube,6-HEPA,7-Air channel,8-HEPA

图7 实验装置气路图  
Fig. 7 Flow diagram of the experimental device

## 2.2 实验数据与分析

在实验装置中,由于本文对 LED 光源采用了调制技术,而调制频率和幅值对于实验装置的灵敏度有很大影响.因此为了获得一个最佳的探测灵敏度,首先需要选择最佳的调制频率和幅值,通过实验得出在矢量锁相放大器的调制频率为 395 Hz,幅值为 2.55 V,时间常数为 1 s,且恒流源的供电电流为 155.5 mA 时,实验装置稳定性最好且具有最高的灵敏度.

实验中通过控制 DOP 发生器的压空压力,来调节 DOP 气溶胶的发生浓度.测量出在不同 DOP 气溶胶浓度下,光电转换器所探测的电信号值.并在系统同一浓度下以美国 NUCON 公司的 DOP 检测仪做对比.美国 NUCON 公司的 DOP 检测仪对于 0.3  $\mu\text{m}$  的 DOP 气溶胶灵敏度阈值为:  $10^{-4}$   $\mu\text{g/L}$ ,线性测量范围:  $1:10^6$ .

实验中测试了在 DOP 质量浓度在 1~28  $\mu\text{g/L}$  范围内,所对应的散射光信号强度.考虑到即使气路系统在采样净化后的洁净空气时,也会存在粒子发生光散射,光学系统会探测出本底电信号值.实验数据结果如图 8,已经扣除了本底信号的影响.采用线性回归分析得出散射光强度电信号与质量浓度的线性关系:  $I = 0.518M + 0.1663$ ,相关系数  $R = 0.9952$ .可以看出 DOP 气溶胶的质量浓度与散射光信号强度具有良好的线性关系.

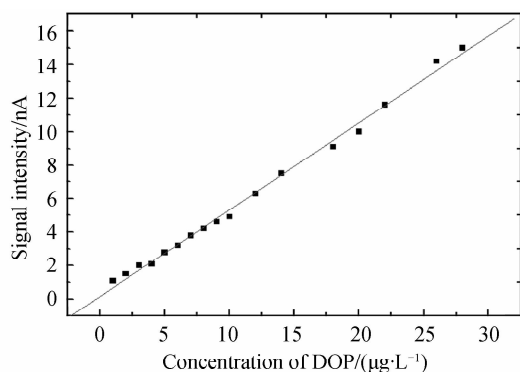


图 8 DOP 气溶胶浓度与散射信号强度关系  
Fig. 8 Relation between concentration of DOP aerosol and signal intensity

该实验装置的设计要求是对于 DOP 气溶胶的探测浓度范围需达到 0.000 1~100  $\mu\text{g/L}$ .由于实验室空气压缩机的压力及流量的限制,使得 DOP 气溶胶发生器发生的最大浓度只能达到 28  $\mu\text{g/L}$ ,另外本文只测到 1~28  $\mu\text{g/L}$  浓度范围内的散射光强度信号,对于低浓度段实验所测得的数据,表明散射光强度信号与气溶胶浓度的关系图几乎是一条水平直线,这说明该实验装置对低浓度值的探测灵敏度还不够.基于这些问题,下一步将采取一些相应措施对

实验装置进行改进.一方面可以通过提高光源的发光强度等措施来提高系统的探测灵敏度,实现低浓度的测量,另一方面通过增加或更换空气压缩机来提高压缩空气的压力,从而增大 DOP 发生器发生量,或是采用发生量较大的 DOP 热发生器,使得实验能够探测到最大浓度的光散射信号.

关于该仪器的校准问题,目前国内还没有相关的标准及规程.通过调研,本课题组了解了国外相关仪器的标定方法,基本上采用滤膜称重法对仪器进行绝对质量浓度的标定,对于相对质量浓度的标定国外有些厂家也采用高效过滤器测试系统进行标定.本文在实现了该仪器的浓度范围测试要求后,将着手建立一套气溶胶光度计标定系统,以实现仪器的标定.

## 3 结论

设计了一套采用近前光散射法测试 DOP 气溶胶质量浓度的实验装置,能够实时快速、在线连续地测量一定浓度范围内的 DOP 气溶胶质量浓度.理论推导分析建立了散射光强与 DOP 气溶胶质量浓度成正比的关系,通过实验研究,验证了理论分析的正确性.从而为以后 DOP 检测仪的研制及利用近前光散射法测量颗粒物浓度的相关仪器的开发奠定了良好的基础.

### 参考文献

- [1] YU Xiao. Investigation of the calibration method of characteristic parameters of the concentration measuring instrument based on the light scattering[D]. Nanjing: Nanjing University of Science and Technology, 2007: 7-12.  
于晓. 光散射颗粒物浓度测量仪特征参量的标定方法研究[D]. 南京理工大学, 2007: 7-12.
- [2] CHEN Gang. An experimental research on particles size and concentration based on the light scattering[D]. Xian: 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]. 西安电子科技大学, 2007: 19-23.
- [3] LI Lin-feng, 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.  
李霖峰, 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.
- [4] HU Cheng, ZOU Li-Xin, JI Jing-jing, et al. Investigation of dust density measurement based on the light scattering theory[J]. *Contamination control & Air-conditioning Technology*, 2007(3): 21-25.  
胡澄, 邹丽新, 季晶晶, 等. 基于光散射的粉尘浓度测量研究[J]. *洁净与空调技术*, 2007(3): 21-25.
- [5] LI Xue-bin, GONG Chun-wen, HUANG Yin-bo, et al. Method of retrieving refractive index of aerosol particles[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2009, **38**(2): 401-404.  
李学彬, 宫纯文, 黄印博, 等. 大气气溶胶粒子折射率虚部反演方法研究[J]. *光子学报*, 2009, **38**(2): 401-404.
- [6] XIANG Jian-sheng, HE Jun-hua, 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.
- [7] GAO Yong-feng. 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]. 苏州大学, 2005:11-13.
- [8] WANG Yu-ru, FENG De-zhen, ZHANG Zhi-jie. Research on measuring the thickness of soot by scattered light[J]. *Journal of Jinan University*, 2001, **15**(3):253-255.
- 王玉茹,冯德振,张智杰. 光散射法测烟尘浓度的实验研究[J]. 济南大学学报, 2001, **15**(3):253-255.
- [9] 江月松. 光电技术与实验[M]. 北京理工大学出版社, 2000:196-198.

## Optical Measuring Concentration of DOP Aerosol

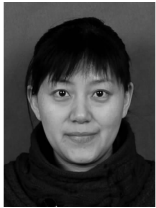
MA Ying<sup>1</sup>, LIU Qun<sup>1</sup>, QIU Dan-gui<sup>1</sup>, SHI Ying-xia<sup>1</sup>, HOU Jian-Rong<sup>1</sup>, YIN Wang-Bao<sup>2</sup>

(1 *China Institute for Radiation Protection, Taiyuan 030006, China*)

(2 *State Key Laboratory of Quantum Optics and Quantum Optics Devices, Shanxi University, Taiyuan 030006, China*)

**Abstract:** In order to ensure the work efficiency of High Efficiency Particulate Air Filter (HEPA), Dioctylphthalate method, which is widely used in the efficiency and leaking test of HEPA filtration system, is analyzed. The optical detect theory of Dioctylphthalate aerosol concentration is summarized. Based on Mie scattering theory, a mathematical model is derived on relation between light-scattering intensity and concentration of aerosol when the special aerosol is generated. The optical measurement system based on the theory is designed and manufactured. The validity of the model is testified by the experiment. The experimental result shows that there is a good linear relation between light-scattering intensity and mass concentration of Dioctylphthalate aerosol.

**Key words:** Dioctylphthalate method; Mie scattering; Aerosol; Scattering intensity; Mass concentration



**MA Ying** was born in 1974. She works at AVIC TaiYuan Aero-Instruments Co. Ltd. as an engineer. Now she is pursuing the M. S. degree, and her research interests focus on environmental science.



**LIU Qun** was born in 1968. As a professor, he is engaged in research of radioactive wastes management and environment science.