

连悦, 刘文清, 张天舒等. 大气悬浮颗粒物粒谱分析研究. 地球物理学报, 2006, 49(1): 78-82

Lian Y, Liu W Q, Zhang T S, et al. Spectral analysis of suspended granule particles in the atmosphere. *Chinese J. Geophys.* (in Chinese), 2006, 49(1): 78-82

大气悬浮颗粒物粒谱分析研究

连悦, 刘文清, 张天舒, 刘建国

中国科学院安徽光学精密机械研究所环境光学中心, 合肥 230031

摘 要 本文对大气悬浮颗粒物的测量是利用半导体激光器, 通过镜片组形成双光斑, 当颗粒物经过双光斑时发生散射, 由雪崩二极管检测散射光形成双峰信号, 双峰间距即为待测粒子通过双光斑时的飞行时间, 利用飞行时间可得到相应的粒径大小. 大量的实验表明空气中的粒谱呈正态高斯分布, 这点与理论分析结果相一致.

关键词 飞行时间, 粒径, 雪崩二极管, 气溶胶, 粒谱分布

文章编号 0001-5733(2006)01-0078-05 **中图分类号** P401 **收稿日期** 2004-11-02, 2005-10-21 收修定稿

Spectral analysis of suspended granule particles in the atmosphere

LIAN Yue, LIU Wen-Qing, ZHANG Tian-Shu, LIU Jian-Guo

Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China

Abstract The article presents a method to measure atmospheric suspended particles with a double facula which consists of a group of lens and a diode laser. Laser was scattered when particles go through the double facula. APD (avalanche photoelectricity diode) detects the scattered light and outputs a double-peak signal. Particle size, sum of particles and lognormal size spectrum can be determined by time of flight. Experimental results show that the particle spectrum in the air is of normal Gaussian distribution, in agreement with the theoretical analysis.

Keywords Time of flight, Particle size, Avalanche diode, Aerosol, Particle size distributing

1 引 言

近年来国际上对大气气溶胶物理和化学性质的研究已受到科技人员的广泛关注. 分析气溶胶粒子的大小、分布及成分是测量气溶胶的主要任务, 粒子的大小决定了气溶胶的活性、寿命及危害性. 不同尺寸的气溶胶颗粒对人体的危害程度差异很大, 例如空气动力学直径小于 $10\mu\text{m}$ 的颗粒物 (PM10) 可随吸入的空气进入上下呼吸道及血液. 直径小于 $2.5\mu\text{m}$ 的颗粒物 (PM2.5) 可进入肺部, 极易对人体造成损伤.

测量大气气溶胶的方法国内外有许多, 例如: PM 的传统监测方法: 滤膜采样、天平称重; β 射线法; 激光雷达法; 振荡天平法; 安德森采样法等等. 上述方法都可以用来测量大气气溶胶, 但不足之处均体现在: 不能实时测量, 数据的有效性较差, 实验重复性差.

本文阐述了一种实时连续测量气溶胶粒子大小和浓度的装置和方法. 从设计理论和结构设计及信号的采集, 实验数据的处理等, 均进行了详细的分析研究.

下面从两方面进行设计理论分析: 一是对设计腔体的结构合理性研究; 二是对粒子空气动力学直

基金项目 国家高技术研究发展 863 计划 (2002AA641020) 资助.

作者简介 连悦, 男, 1974 年生, 在读博士研究生, 主要从事环境光学和大气气溶胶检测方面的研究. E-mail: lian-yue@aiofm.ac.cn

径分析研究.

2 设计理论分析

2.1 腔体设计理论分析

腔体采用一体化封闭设计,其结构是由红光激

光光源和一组镜片、晶体组成(如图 1 所示),从能量角度分析此设计为最佳选择.

由 Mie 散射理论^[1]可知:任意大小和折射率的均匀球形粒子的散射,满足适当边界条件的麦克斯韦方程组,当入射是非偏振自然光,照射到球形粒子时,散射光强有如下形式的空间分布^[2]:

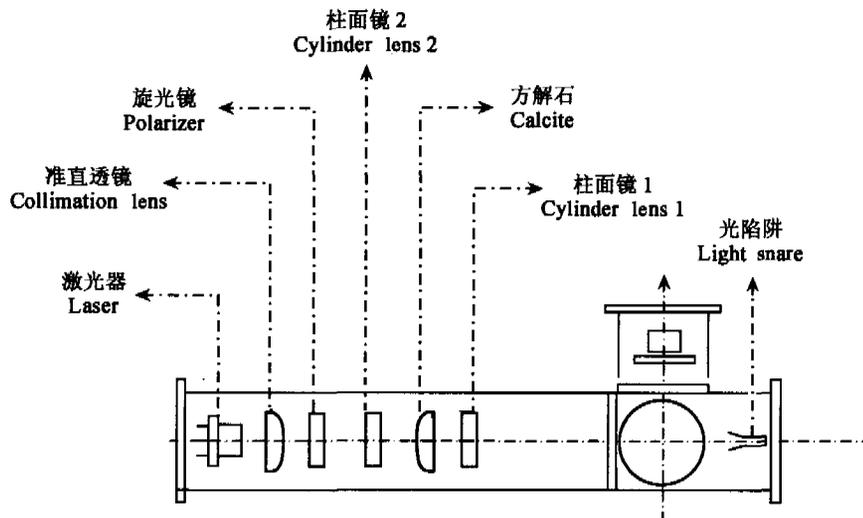


图 1 光学结构组成

Fig.1 Composition of optic configuration

$$\begin{cases} I_r = \frac{1}{K^2 r^2} |S_1(\theta)|^2 I_0 \sin^2 \varphi = \frac{\lambda^2}{4\pi^2 r^2} i_1 I_0 \sin^2 \varphi \\ I_L = \frac{1}{K^2 r^2} |S_2(\theta)|^2 I_0 \sin^2 \varphi = \frac{\lambda^2}{4\pi^2 r^2} i_2 I_0 \cos^2 \varphi \end{cases} \quad (1)$$

式中: I_r, I_L 分别为与散射光方向垂直和平行的光强分量; K 为效率因子, λ 为入射光波长; r 为距散射粒子中心的距离; i_1, i_2 为不同的强度函数; I_0 为入射光的强度; φ 为入射光和散射光之间的夹角; $S_1(\theta), S_2(\theta)$ 为振幅函数.

振幅函数 $S(\theta)$ 表达式为

$$\begin{cases} S_1(\theta) = \sum_{l=1}^{\infty} \frac{2l+1}{l(l+1)} [a_l \pi_l + b_l \tau_l] \\ S_2(\theta) = \sum_{l=1}^{\infty} \frac{2l+1}{l(l+1)} [a_l \tau_l + b_l \pi_l] \end{cases} \quad (2)$$

式中: a_l 和 b_l 为单个 Mie 散射系数; 由二极矩、四极矩等开始的第 l 极电矩 (a_l) 和磁矩 (b_l); π_l 和 τ_l 为角函数.

$$\text{因 } S_L(Z) = \sqrt{\frac{\pi ka}{2}} J_{l+1/2}(ka),$$

$$C_L(Z) = -\sqrt{\frac{\pi ka}{2}} H_{l+1/2}(ka), \quad a = \frac{\pi D}{\lambda},$$

则 a_l 和 b_l 分别为

$$\begin{cases} a_l = \frac{S_L(X)S'_L(Y) - mS'_L(X)S_L(Y)}{C_L(X)S'_L(Y) - mC'_L(X)S_L(Y)} \\ b_l = \frac{mS_L(X)S'_L(Y) - S'_L(X)S_L(Y)}{mC_L(X)S'_L(Y) - C'_L(X)S_L(Y)} \end{cases} \quad (3)$$

其中: k 为波在颗粒周围的矢量值; D 为颗粒直径; m 为散射颗粒对周围介质的折射率.

对于颗粒 r 处散射光强可以按式(4)求得:

$$I_s = I_r + I_L = \frac{\lambda^2 I_0}{4\pi^2 r^2} (i_1 \sin^2 \varphi + i_2 \cos^2 \varphi). \quad (4)$$

由于采用了一体化的设计,当取激光器的开放腔为测量粒子区域, I_0 为激光器内腔光强. 对于采用单频腔式激光器,理想状态下腔体外的光强为

$$I_{out} = t_1 I = t_1 I' \left[\left(\frac{2LG_0^0}{a_1 + t_1} \right)^2 - 1 \right], \quad (5)$$

式中: t_1 为透射系数; I 为腔体内光强; I' 为饱和光强; a_1 为输出反射镜的镜面损耗系数; L 为增益介质的长度; G_0^0 为非均匀增益介质的小信号增益系数.

通过以上分析可知,当 $t_1 < 1$ 时腔内光强要比

腔外大许多,所以一体化的腔体设计能够大大提高被测颗粒物散射光强信号的信噪比.

2.2 粒子检测的理论分析

空气动力学直径与粒子沉降速度有关.若待考察的粒子与单位密度的球形标准粒子有相同的沉降速度,定义考察粒子的空气动力学直径就是标准粒子的直径.

粒子的运动方程为

$$m \frac{U}{dt} = F_d + F_b, \quad (6)$$

式中: m 为粒子质量; U 为沉降速度; F_d 和 F_b 分别为作用到粒子上的牵引力和质量力.

斯托克斯(Stokes)定律为^[3]

$$F_d = \frac{(u - v)3\pi\mu D_p}{C}, \quad (7)$$

式中: D_p 为粒子直径; μ 为黏滞系数;矢量 u 和 v 分别为气溶胶粒子重心的速度和粒子周围空气的速度; C 为坎宁安修正因子.

斯托克斯定律准确地描述了雷诺数 $Re_p (< 0.5)$ 为

$$Re_p = \frac{|u - v| \rho D_p}{\mu}. \quad (8)$$

若粒子在静止空气中沉降, $u = 0$, $F_d = mg$,当牵引力等于重力时,粒子达到终极速度 U_t ;在斯托克斯区域($Re_p < 0.5$)得

$$U_t = \frac{CD_p^2 \rho g}{18\mu}. \quad (9)$$

以上是对 $1\mu\text{m}$ 以下的粒子的分析,该式在粒子处于低雷诺数 $Re_p < 1$ 的情况(即惯性和黏滞力可以被忽略)下适用.但是当气溶胶粒子较大或运行速度很高,粒子处于高雷诺数时牛顿阻力会起作用.

粒子在运行中所遇到的牛顿阻力为

$$F_p = \frac{\pi}{8} C_D \rho_p D_p^2 v^2, \quad (10)$$

式中: C_D 为阻力系数; ρ_p 为空气介质密度; v 为粒子运行速度.

当 $Re_p < 1$ 时,

$$C_D = \frac{24}{Re_p}. \quad (11)$$

粒子雷诺数 Re_p 和阻力系数 C_D 皆为粒子速度的函数.当 $1 < Re_p < 1000$ 时,

$$C_D = \frac{24}{Re_p} \left(1 + \frac{Re_p^{2/3}}{6} \right). \quad (12)$$

根据斯托克斯定律和牛顿阻力等公式,已知粒

子的直径、密度以及气体的密度,就可以计算出粒子的极限沉降速度,进一步可计算出相应的粒子空气动力学直径.也可根据沉降速度计算出粒子到达红光光斑的对应飞行时间.

3 大气悬浮物的检测方法

3.1 激光光斑形成的检测方法

采用波长范围在 $650 \sim 675 \text{ nm}$ 的红色半导体二极管激光器作为气溶胶粒子的散射光源,输入高精度恒流恒功率电流源驱动,以保证单横模半导体二极管激光器的功率稳定,激光器输出功率不小于 28 mW ,功率起伏小于 $\pm 2\%$.红色半导体二极管激光经光学镜片组系统整形后,在探测区形成两个窄条形的光斑,光斑尺寸约为 $1.2 \text{ mm} \times 0.12 \text{ mm}$,两光斑在焦点处中心间距约为 0.1 mm ,气溶胶粒子将先后通过这两个光斑而获得两个强的散射峰,由此得出粒子的飞行时间,计算出粒径.

3.2 APD的双峰检测

光电探测器采用快速雪崩光电二极管(APD),它具有响应速度快、噪声低的优点,其输出电信号经两路不同量值的取样电阻取样,取样后的信号经两路不同增益的放大器进行放大,缓冲后获得两路不同增益的信号,送往后续飞行时间和散射光强处理电路.两路不同增益的信号分别对应于不同粒径的粒子散射光.通过电路处理系统对APD检测双峰信号进行连续实时转换、存储、显示,可观察到二维的粒子浓度曲线分布图及单位时间内气溶胶粒子的粒径大小、数量.

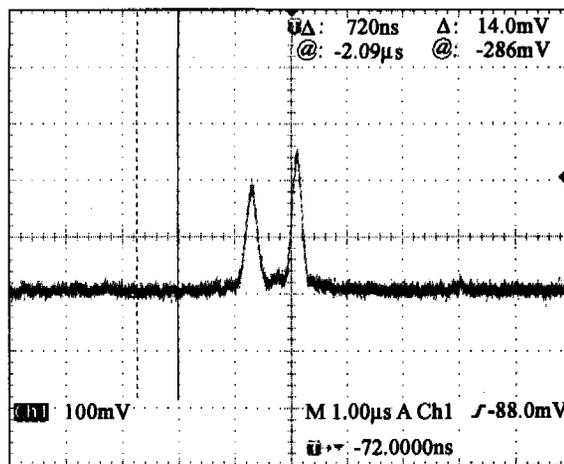


图2 示波器测试双峰信号

Fig.2 Test of two-wave-crest signal by oscilloscopes

对于单分散粒子的测量,当粒子穿过第一个光斑时,形成一个很强的峰,中间的凹陷处表示粒子穿过两个光斑中间的强度较弱区域,粒子通过第二个光斑时,形成第二个强峰.实验中将 APD 探测到的信号接入示波器(TDS 3014),就可观察到双峰间距对应粒子实际经过两激光光斑的飞行时间(如图 2 所示).

4 实验

4.1 实验仪器和设备^[4]

实验需要能够产生标准粒径气溶胶粒子的仪器(美国 TSI 公司生产的 Model 3450 振动孔气溶胶粒子发生器就是其中的一种),该仪器可以产生高精度的单分散的气溶胶粒子. TSI 3450 工作时通过一微量进样泵以一定的速度推动注射器向管道中注入可形成气溶胶粒子的溶液,管道的壁上有一直径为微米量级的小孔,当管道中压强达到一定值时,溶液就会通过该小孔喷射出来.利用了一个由周期性电压驱动的压电陶瓷使得小孔以一定的频率发生伸缩振动,通过这样的控制以后,溶液经由小孔喷射出来就会形成非常规则的液滴流.此液滴流首先要通过驱散气流(disperse air)以防止液滴与液滴之间发生凝聚,被分散的液滴接下来再经过洁净的稀释气流(dilution air)稀释并干燥,将液滴中易挥发的溶剂挥发掉,只剩下溶质,最终即可形成一颗颗粒径大小均匀的气溶胶粒子.

在实验过程中需要产生不同粒径的粒子,对设备进行标定,并做出相应的理论计算以便对比.

4.2 实验方法

4.2.1 粒径与飞行时间的关系及线性拟合

通过上述设备 TSI 3450 产生不同粒径的粒子,粒子的大小由溶剂配比得出,同时计算出粒径理论值.为了保证实验的准确一致,我们与 TSI 公司的 3321 仪器进行对比验证,保证发生粒子的稳定输出(TSI 3321 为标定计量过的测量气溶胶粒径的仪器).

实验中测量了各种粒子在两束连续激光间飞行时间,对气溶胶粒子粒径大小与粒子飞行速度之间的关系进行了初步的标定.从示波器上我们可以观察到 APD 输出的双峰之间的时间,通过不同粒径的实验可以得出定标曲线,同时反演出粒子的粒径大小和飞行时间的关系.实验过程中按每 30s 一组,对粒子的总数进行累加计算(如表 1 所示).

表 1 粒径和飞行时间的关系

Table 1 Relation of particle size and flight time

溶剂配比	粒径理论值 (μm)	飞行时间 (ns)	对比测量粒径 (μm)	粒子总数 (个/30s)
5.19×10^{-6}	1.127	660	1.04	5518
2.06×10^{-4}	2.576	780	2.36	7793
4.11×10^{-4}	3.56	860	3.05	4453
8.10×10^{-4}	4.305	960	4.07	5392
0.0019	5.716	1080	5.43	4174
0.0038	6.958	1200	6.73	1227
改变 3450 频率	7.445	1220	7.23	2107
0.0083	8.882	1300	8.98	2667
改变 3450 频率	9.184	1340	9.09	3298
0.0207	12.444	1520	11.6	1529

通过上述测定的数据,可以拟合出飞行时间与粒径的曲线(如图 3 所示),此曲线以指数形式拟合,其拟合公式为

$$y = y_0 + e^{A_1 x + t_1}, \quad (13)$$

其中: $y_0 = -783380.41965$; $A_1 = 783533.53146$; $t_1 = 38956.86744$.

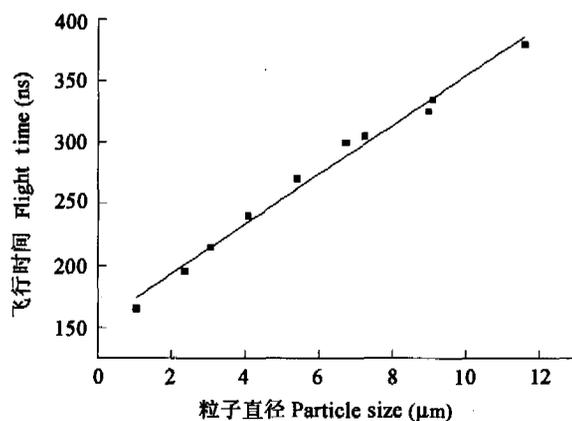


图 3 粒径与飞行时间通道拟合曲线

Fig.3 Fitting curve of particle size and fly-time passage

上述给出 APD 检测的双峰飞行时间和粒径的关系,从而可以实时检测出标准粒子或空气中粒谱的分布.

4.2.2 粒谱分布的验证

以上所提到单分散粒子相同粒径的实验,它的粒谱图应为单一的柱状图(横坐标为粒径,纵坐标为粒子数).如果一个特定的实验系统需要的是多分散的气溶胶形式,那么所发生的气溶胶的粒子大小

分布应该是可再现的,空气中粒谱的分布应该有一定的规律^[5]. 气溶胶的分散度用相对标准偏差(离散系数) α 表示,它是粒子大小的标准偏差 σ 和粒子平均大小(粒子平均半径) \bar{r} 之比.

$$\alpha = \frac{\sigma}{\bar{r}} = \frac{\left[\sum_i (r_i - \bar{r})^2 / N \right]^{1/2}}{\bar{r}} \quad (14)$$

在 α 值足够大时,粒子半径对数的标准偏差近似为 α . 因为气溶胶大小多少都是服从对数正态分

布的,所以

$$\ln \sigma_g = \left\{ \frac{\sum_i [\ln(r_i / \bar{r}_g)]^2}{N} \right\}^{1/2}, \quad (15)$$

其中 \bar{r}_g 为几何平均半径,

$$\bar{r}_g = \left[\prod_i (r_i) \right]^{1/N}. \quad (16)$$

空气中测量粒谱的分布就是一组正态高斯分布(图4为实验测量空气中气溶胶粒子的粒谱分布).

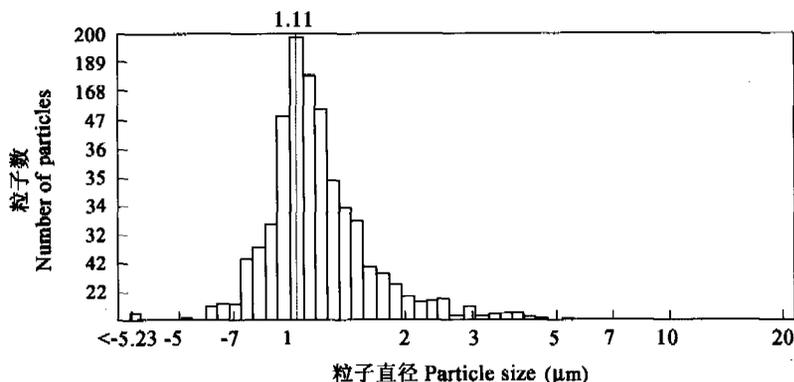


图4 粒谱分布趋势图

Fig.4 Trend of particle size distribution

5 实验结果和讨论

利用已知粒径的标准粒子,对设计的仪器进行定标.标准粒子通过双光斑时发生散射,由雪崩光电二极管检测到散射光并产生双峰信号后,根据双峰时间间隔就可以得到飞行时间与粒径的关系.这样该仪器就可以准确地测量气溶胶空气动力学直径.

经过大量的实验表明,多分散粒子的谱分布是正态高斯分布,实验中由于空气中气溶胶粒子变化不定,故而各粒径范围和粒子总数也是变量,但分布趋势是完全一致的.

实验中发现,由于气溶胶发生器 TSI 3450 在稀释溶液中受到溶质残渣的影响,发生的最小粒子直径为 $0.8 \sim 0.9 \mu\text{m}$,所以在实验过程中对微小粒子的测量和理论值会略有不同.

6 结论

通过文中的设计计算、理论分析及多组实验数

据的计算,我们可以得出粒子空气动力学直径、粒谱的曲线分布,并且与理论分析相对比,完全满足设计的要求.实验中通过飞行时间双峰的检测,能够实时得到空气中粒子的大小、固定时间的粒子总数和正态高斯分布谱图,进而为空气质量的分析提供强有力的依据.

致谢 作者对北京军事医学科学院五所鹿建春主任在实验上的大力支持表示衷心感谢!

参考文献 (References)

- [1] Allen T. Powder Sampling and Particle Size Measurement. London: John Wiley, 1997. 349 ~ 390
- [2] Bayvel L P, Jones A R. Electromagnetic Scattering and Its Application. England: Applied Science Publishers, 1981. 163 ~ 179
- [3] Wilson J C, Liu Y H. Aerodynamic particle size measurement by Laser-Doppler velocimetry. *J. Aerosol Sci.*, 1991, 11: 139 ~ 150
- [4] Model 3450 Vibrating Orifice Aerosol Generator Instruction Manual P/ N1933450 Revision L October 2002
- [5] 理查特·丹尼斯. 气溶胶手册. 梁鸿富, 卢正永译. 北京: 原子能出版社, 1988. 25 ~ 30

Dennis R. Aerosol Handbook (in Chinese). Liang H F, Lu Z Y, Trans. Beijing: Atomic Energy Press, 1988. 25 ~ 30

(本文编辑 何燕)