

УДК 537.533.74

Веренчиков А.Н., Лубо-Лесниченко К.Е., Масалов С.А., Николаев В.И., Щербаков А.П.
Измерение распределений по размерам аэрозольных частиц при электрогидродинамическом распылении жидкостей // Научное приборостроение. Л.: Наука, 1987.

Приведено сочетание оптических методов малоуглового светорассеяния и спектральной прозрачности с методом осаждения микрокапель электрогидродинамических струй, получаемых из расплава. Комбинация методов позволяет провести детальный анализ и установить закономерности начальной стадии развития электрогидродинамических струй. Библиогр. 12 назв. Ил. 5.

А.Н.Веренчиков, К.Е.Лубо-Лесниченко, С.А.Масалов, В.И.Николаев, А.П.Щербаков
ИЗМЕРЕНИЕ РАСПРЕДЕЛЕНИЙ ПО РАЗМЕРАМ АЭРОЗОЛЬНЫХ ЧАСТИЦ ПРИ
ЭЛЕКТРОГИДРОДИНАМИЧЕСКОМ РАСПЫЛЕНИИ ЖИДКОСТЕЙ

Электрогидродинамическое (ЭГД) распыление является удобным методом диспергирования жидкостей, успешно применяемым в настоящее время в масс-спектрометрическом анализе растворов нелетучих термически нестабильных веществ [1]. Знание параметров ЭГД струи, в частности распределений микрокапель струи по размерам, необходимо для правильного выбора условий их испарения в газодинамическом интерфейсе масс-спектрометра.

Существующие способы определения дисперсности двухфазных потоков основаны на измерении размеров частиц в пробах, отобранных из потока, с помощью микрооскопа [2], а также на использовании эффектов, возникающих при рассеянии, преломлении и поглощении света частицами дисперсионной среды [3]. Первый метод достаточно удобен при малых скоростях потока, но точность его невысока из-за размывания отпечатков капель при ударе о подложку и наложения следов от нескольких капель. Кроме того, зарядка диэлектрической подложки практически исключает регистрацию наиболее мелких частиц. Оптические методы позволяют проводить измерения, не возмущая потока, однако требуют тщательной калибровки, которая, как правило, затруднена.

В настоящей работе для исследования спектров размеров микрокапель ЭГД струй

использовано сочетание оптических методов малоуглового светорассеяния и оптической прозрачности с методом осаждения микрокапель ЭГД струй, получаемых из расплава.

В общей постановке задача определения спектра размеров сферических частиц по данным рассеяния света при условии отсутствия интерференции и многократного рассеяния сводится к обращению интегрального уравнения первого рода [4]:

$$\Psi(x) = \int_0^x F(x, r) f(r) dr, \quad (1)$$

где $\Psi(x)$ — экспериментально измеряемая функция; $F(x, r)$ — ядро уравнения, известное из теории рассеяния света на отдельной частице; $f(r)$ — плотность распределения частиц по размерам; r — радиус частиц.

Нахождение $f(r)$ является некорректной обратной задачей, однако в работе [4] показано, что уравнение (1) может быть точно обращено и для $f(r)$ могут быть получены аналитические выражения в трех случаях: при малоугловом светорассеянии, при измерении оптической прозрачности среды и при измерении полной индикатрисы рассеяния.

Метод малоуглового рассеяния разработан в работах [4–8] и широко применяется в исследованиях двухфазных потоков [9]. Суть его состоит в исследовании ореола, возникающего при рассеянии света средой, содержащей сферические частицы. Если длина волны падающего света $\lambda \ll r$, т.е. параметр

$$\rho = 2\pi r/\lambda \gg 1, \quad (2)$$

то существенная часть света рассеивается в области малых углов $\theta \lesssim \frac{1}{\rho}$ — эффект Ми [10]. В этом случае ядром уравнения (1) является известная индикатриса рассеяния света одиночной сферической частицей

$$I(\theta) = I_0 \frac{r^2 J_1^2(\rho\theta)}{\theta^2},$$

где I_0 — интенсивность падающего света; θ — угол рассеяния; $J_1(\rho\theta)$ — функция Бесселя. Тогда уравнение (1) принимает вид

$$\bar{I}(\theta) = \frac{I_0}{\theta^2} \int_0^\infty f(r) r^2 J_1^2(\rho\theta) dr, \quad (3)$$

где $\bar{I}(\theta)$ — измеряемая полидисперсионная индикатриса.

Условие отсутствия многократного рассеяния выполняется, если $\ln(I_0/I) \leq 1.5$, где I — интенсивность света в центральном пучке после прохождения объема рассеивания [9]. Отсутствие интерференции рассеянного света достигается в случае хаотического расположения частиц в исследуемом объеме.

Уравнение (3) обращено в работах [4, 7], и для плотности распределения частиц по размерам получено выражение

$$f(\rho) = \left(\frac{2\pi}{\lambda}\right)^3 \frac{1}{\rho I_0} \int_0^\infty h(\rho\theta) [\bar{I}(\theta) \theta^3 - \bar{I}(\theta_1) \theta_1^3] d\theta, \quad (4)$$

где $h(x) = 2\pi Y_1(x) [2x J_0(x) - J_1(x)] + 4$; $Y_1(x)$ — функция Неймана;

θ_1 — достаточно большой угол, при котором еще справедливо приближение малых углов. Как показано в работе [7],

$$\bar{I}(\theta) \theta^3 \xrightarrow{\theta \rightarrow \infty} \frac{1}{\pi} \left(\frac{2\pi}{\lambda}\right)^3 \bar{\rho} N I_0,$$

где $\bar{\rho}$ - средняя величина; N - концентрация частиц. Поэтому за θ , можно принимать такое значение θ , при котором выражение $I(\theta)/\theta^3$ с достаточной степенью точности выходит на константу.

В работах [6, 8] проведена серия машинных экспериментов, в которых исследовалось влияние погрешностей измерений и ограниченности углового интервала измерений индикатриом на точность метода. Показано, что при $\rho > 30$ в интервале углов $0.5-6.5^\circ$ ошибка метода в максимуме распределения не превышает 10, а на его краях - 20 %. Практически в ряде случаев метод дает удовлетворительные результаты даже при условии $\rho \approx 1$ [9].

Анализ формулы (4) показывает, что между ρ_{max} - точкой максимума функции $f(\rho)$ и θ_{max} - точкой максимума функции $I(\theta)/\theta^3$ существует приближенная связь: $\theta_{max} = c/\rho_{max}$, где $1 < c < 2$. Поэтому при измерении индикатриом в интервале углов $0.5-6.5^\circ$ функция распределения частиц по размерам может быть удовлетворительно восстановлена в области $20 < \rho < 200$, т.е. при $\lambda = 0.6328$ мкм (длина волны He-Ne лазера), при размерах частиц $2 < r < 20$ мкм.

При определении спектра размеров частиц методом опектральной прозрачности измеряется зависимость поглощения света от размера частиц дисперсной среды. При этом опектральная прозрачность среды описывается интегральным уравнением (3)

$$g(\beta\nu) = \int_0^\infty K(\beta\nu a) m(a) da, \quad (5)$$

где $g(\beta\nu)$ - функция спектральной прозрачности, определяемая в эксперименте; $K(\beta\nu a)$ - ядро уравнения; $\beta = 2\pi(m-1)$; m - показатель преломления; $\nu = \frac{1}{\lambda}$ - волновое число; $m(a)$ - функция распределения частиц по размерам. При этом $I = I_0 e^{-g(\nu)}$, где I - интенсивность света, прошедшего через дисперсную среду; I_0 - интенсивность падающего света.

В работе [3] проведено приближенное обращение уравнения (5) и получено

$$m(a) \approx -\frac{1}{\pi} \left\{ \Delta x \sum_{j=1}^M g\left(\frac{x_j}{2}\right) \omega(ax_j) + c_0 \tau \omega_0(a\tau) + c_1 \frac{\omega_1(a\tau)}{\tau} \right\}, \quad (6)$$

где $\Delta x = \frac{\tau}{M}$; M - число измерений; $x_j = (j - \frac{1}{2}) \Delta x$; $j = 1, 2, \dots, M$; τ - измеряемый спектральный диапазон; причем $\tau = 2\rho_0 \tau_j^*$; $\tau_j^* = 1/\lambda_j^*$; ρ_0 - размерный множитель; $*$ - индекс экспериментальной точки;

$$\begin{cases} \omega(ax_j) = ax_j \sin(ax_j) + \cos(ax_j) - 1; \\ \omega_0(a\tau) = \cos(a\tau) - 2 \frac{\ln(a\tau)}{a\tau} + 1; \\ \omega_1(a\tau) = \cos(a\tau) - 1. \end{cases}$$

В формуле (6) $m(a)$ - величина безразмерная. Переход к размерной функции дается выражением

$$f(r) = \frac{m(a)}{2\pi a^2 r_0^4}, \quad (7)$$

где $r = ar_0$ - радиус поглощающей частицы. Коэффициенты C_0 и C_1 определяются из выражений

$$C_0 = \lim_{x \rightarrow \infty} g(x/2); \quad C_0 k + C_1 \sum_{i=1}^k \frac{1}{x_i^2} = \sum_{i=1}^k g\left(\frac{x_i}{2}\right),$$

где k - число точек экстраполяции.

Таким образом, по измеренной в эксперименте функции спектральной прозрачно-

сти $g(v) = \ln(I_0/I)$ можно найти функцию распределения частиц дисперсной среды по размерам $f(r)$.

Точность приведенной расчетной схемы зависит от спектрального диапазона и оценена в работе [3] в 15-20 %. В диапазоне длин волн $200 < \lambda < 800$ нм при $m \approx 1$ диапазон корректно измеряемых размеров микрокапель $0.1 < r < 1$ мкм.

В настоящей работе для определения спектра размеров частиц ЭГД струи использовалась лабораторная установка для измерения индикатрис и спектров поглощения (рис.1). Источником света при измерениях методом малоуглового рассеяния яв-

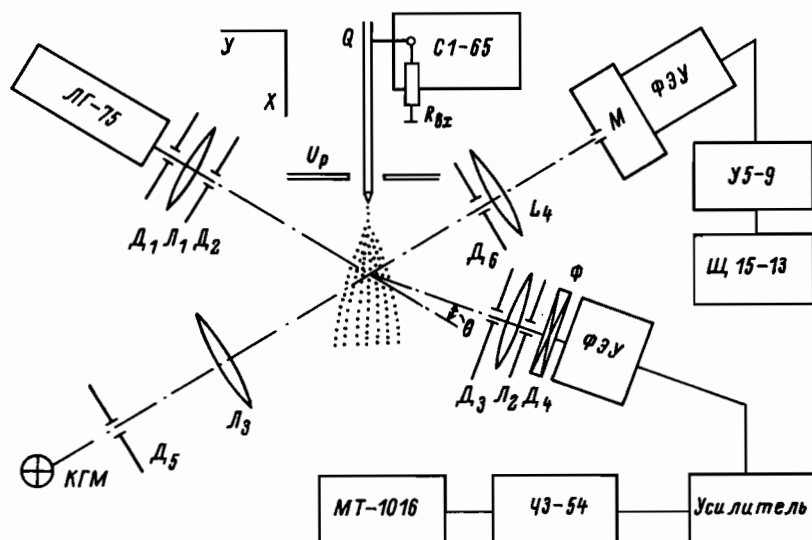


Рис.1. Схема установки для измерения распределений размеров микрокапель ЭГД струи.

лялся He-Ne лазер ЛГ-75 ($\lambda = 0.6328$ мкм). Рассеянный свет регистрировался ФЭУ-79, сигнал с которого через широкополосный усилитель подавался на частотометр ЧЗ-54, итоговые данные выводились на цифропечатающее устройство. Приемная часть установки смонтирована на гониометре. Диафрагмы D_1 и D_2 и линза L_1 , фокусирующая луч в плоскость диафрагмы D_3 , исключают возможность паразитной засветки и позволяют проводить измерения начиная с угла $\theta = 0.5^\circ$. Интерференционный фильтр Φ с полосой пропускания 13.5 нм служит для уменьшения фоновой засветки ФЭУ. Линза L_2 , передающая изображение в плоскость диафрагмы D_4 , а также диафрагмы D_3 и D_4 определяют величину фотометрируемого объема и угловое разрешение установки.

При измерении спектральной прозрачности источником света являлась кварцевая галогенная лампа КГМ-6, 3х15, излучающая в диапазоне 180-800 нм. Линза L_3 фокусирует свет на диафрагму D_6 , так что факел ЭГД струи просвечивается сходящимся лучом света. Линза L_4 установлена на двойном фокусном расстоянии от оси ЭГД струи и входной щели монохроматора M , d_5 , d_6 - апертурные диафрагмы. На выходе монохроматора установлен ФЭУ-100, сигнал с которого через электрометрический усилитель подается на цифровой вольтметр.

В работе исследовалось распределение по размерам микрокапель ЭГД струи эти-

лового спирта, распыляемого через капилляр диаметром 0.15 мм. Капилляр с анти-электродом установлены на координатном устройстве с двумя степенями свободы, позволяющем проводить зондирование факела распыления по длине и сечению.

Измерение малоугловых распределений проводилось в интервале углов $0.5-6.5^\circ$ с шагом 0.5° . Многократные измерения, из которых вычитались собственные шумы ФЭУ и фоновая засветка, в каждой точке усреднялись. Интенсивность рассеянного света, вызванная изменением величины фотометрируемого объема при изменении θ , определялась по формуле [11]

$$L = \frac{2fd_4}{4f \sin \theta - (d_3 + d_4) \cos \theta} + \frac{2fd_4}{4f \sin \theta + (d_4 - d_3) \cos \theta}, \quad (8)$$

где f - фокусное расстояние линзы L_2 ; d_3 и d_4 - диаметры диафрагм, в эксперименте равные соответственно 0.15 и 0.1 мм; θ - фотометрируемый угол.

Функция $g(\nu)$ (5) строилась по разностному сигналу с ЭГД струей и без струи в каждой измеряемой точке спектрального диапазона.

Обработка экспериментальных данных и вычисление функций распределения проводились на ЭМ в соответствии с выражениями (3) и (4) с учетом (8), а также (6) и (7). Интегралы вычислялись по формуле Симпсона.

Исследование факела ЭГД распыления проводилось в двух основных режимах: в режиме автопульсаций, когда жидкость периодически распыляется в виде заряженных стрезков струй, впоследствии распадающихся на микрокапли; и в режиме гармонического распыления, при котором осуществляется периодическая эмиссия микрокапель.

В режиме автопульсаций при измерениях методом малоуглового рассеяния обнаружена эволюция спектров размеров частиц. Их структура была установлена при зондировании сфокусированным лазерным лучом различных областей факела распыления по его длине (X) и сечению (Y). На рис.2 показан спектр размеров микрокапель

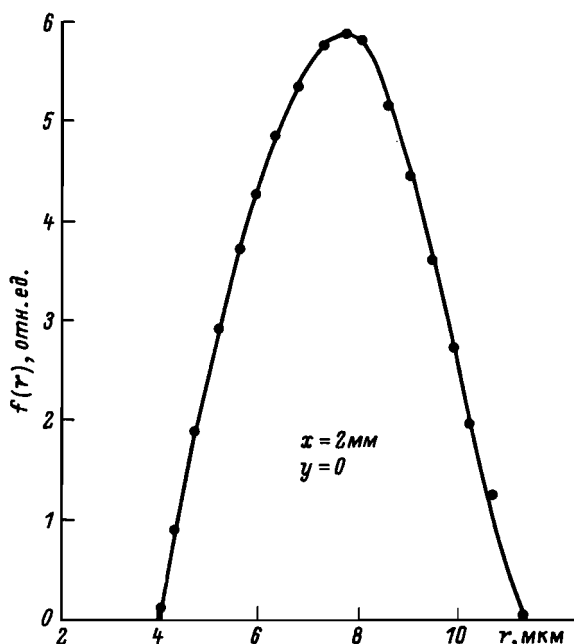


Рис.2. Спектр размеров микрокапель в режиме автопульсаций вблизи капилляра.

ЭГД струи, распыляемой в воздухе при атмосферном давлении в режиме автопульсаций (расход жидкости $Q = 0.14$ мкл/с; потенциал распыления $U_p = 2.6$ кВ), измеренный на расстоянии $X = 2$ мм от торца капилляра на оси струи ($Y = 0$). Здесь микрокапли струи имеют достаточно широкое распределение по размерам с максимумом $r = 7.5$ мкм. На рис.3 представлены распределения, измеренные в двух точках фа-

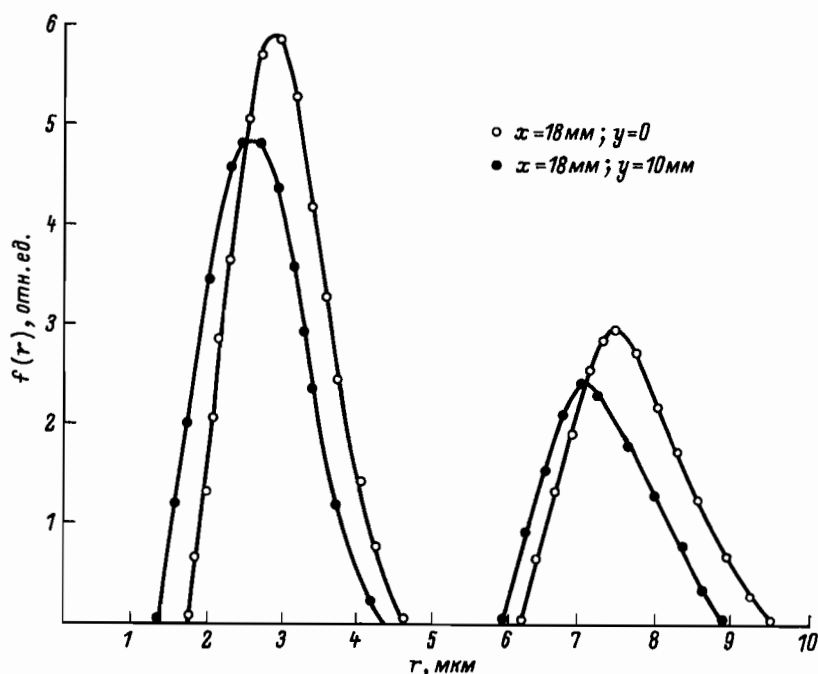


Рис.3. Спектры размеров микрокапель в факеле распыления в режиме автопульсаций.

келя струи: $X = 18$ мм, $Y = 0$ и $X = 18$ мм, $Y = 10$ мм. Спектр микрокапель в этих точках состоит из двух линий с максимумами $r_1 = 7.5$ мкм и $r_2 = 2.8$ мкм – на оси струи и $r_1 = 7.1$ мкм и $r_2 = 2.6$ мкм – на периферии. Как отмечалось в работе [6], резкое обрывание функций распределения на краях связано с ограниченностью интервала измерений индикатриом. В настоящей работе это было подтверждено серией машинных экспериментов по восстановлению известных функций распределений.

В режиме гармонического распыления ($Q = 0.14$ мкл/с, $U_p = 3.0$ кВ), который характеризуется функцией распределения микрокапель, показанной на рис.4, а, метод малоуглового светорассеяния не обнаруживает существенных структурных изменений спектра размеров вниз по потоку. Однако в [1] показано, что в режиме гармонического распыления должны эмиттироваться микрокапли с начальным размером $r_0 \sim 0.1$ – 1 мкм. Таким образом, в этом случае приходится работать на пределе возможностей метода малоуглового рассеяния и изменение спектра размеров может остаться незамеченным. Поэтому для исследования спектров микрокапель в режиме гармонического распыления необходимо пользоваться методом спектральной прозрачности, корректно работающим именно в этой области размеров частиц в указанном спе-

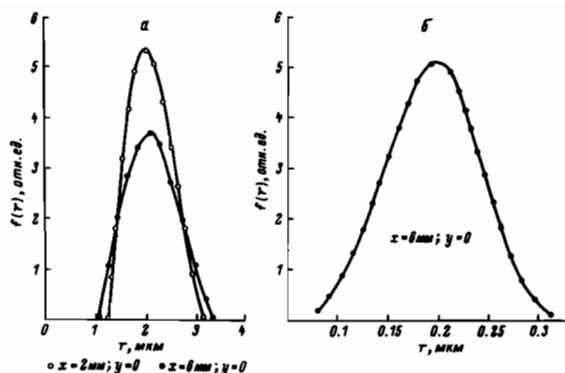


Рис.4. Спектры размеров микрокапель в режиме гармонического распыления.
а - метод малых углов; б - метод спектральной прозрачности.

ктральном диапазоне. На рис.4, б распределение, измеренное этим методом, имеет один максимум, что качественно совпадает с результатом, приведенным на рис.4, а, однако средний размер микрокапель оказывается равным 0.2 мкм, что согласуется с оценками работы [1] и является более правильным результатом. Тем не менее очевидно, что метод спектральной прозрачности можно использовать для исследования только начального участка струи, поскольку микрокапли этанола с начальным размером 0.1–1 мкм в воздухе при атмосферном давлении полностью испаряются на длине пролета 1 см, т.е. размер микрокапель быстро выходит за пределы применимости метода при удалении от капилляра.

Наблюдаемые вблизи капилляра в режиме автопульсаций полидисперсные распределения, связанные, по-видимому, с резонансным распылением микрокапель, требуют более строгого доказательства, поскольку до настоящего времени ЭГД распыление считалось способом получения монодисперсных заряженных частиц [12]. Прямая проверка этого результата была проведена при измерении спектров размеров при осаждении микрокапель ЭГД струй, полученных из расплавов высших спиртов нормального строения.

При распылении расплава $C_{14}H_{30}O$ с температурой плавления $44^\circ C$ при начальной температуре $70^\circ C$ в воздухе при атмосферном давлении микрокапли микронного размера остывают и кристаллизуются на длине пролета ~ 1 см и при осаждении на металлическую пластину сохраняют сферическую форму. Причем спекание соприкасающихся капель и заметное уменьшение их размера за счет сублимации становится заметным при комнатной температуре лишь через несколько недель. Поэтому метод позволяет проводить микрофотографическое исследование отпечатков факела ЭГД струи без введения поправок на расплывание и деформацию капель при ударе, т.е. лишен известных недостатков методов осаждения. Контроль режима распыления осуществляется осциллографированием. Из рис.5 видно, что наиболее мелкие капли эмиттируются в гармоническом режиме. В режиме автопульсаций распределения содержат две линии, что качественно совпадает с результатами, полученными методом малоуглового рассеяния.

Таким образом, комбинация методов малоуглового светорассеяния, спектральной прозрачности и осаждения ЭГД струй, полученных из расплавов, позволяет провести достаточно детальный анализ и установить закономерности начальной стадии развития ЭГД струй. Следует особо отметить, что при таком сочетании обеспечива-

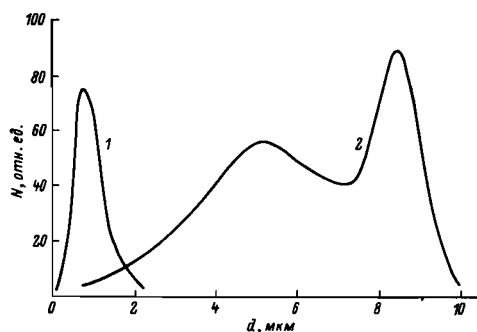


Рис.5. Спектры размеров микрокапель ЭГД струи расплава.

1 - режим гармонического рассеяния; 2 - режим автофлуоресценции.

ЛИТЕРАТУРА

1. Галль Л.Н., Краснов Н.В., Куснер Ю.С., Николаев В.И., Приходько В.Г., Симонова Г.В.// ЖТФ. 1984. Т.54, № 8. С.1559-1571.
2. Спурный К.П., Фуко Н.А., Сургин А.Г. Аэрозоли. М., 1964. 360 с.
3. Шифрин К.С.// Теоретические и прикладные проблемы рассеяния света. Минск, 1971. С.228-245.
4. Шифрин К.С.// Тр.ВЗЛТИ. 1956. № 2. С.153-162.
5. Шифрин К.С., Голиков В.И.// Тр.6-й Межд. обл. конф. АН СССР. М., 1960. С.351-356.
6. Шифрин К.С., Колмаков И.Б.// Изв. АН СССР. Сер. физика атмосферы и океана. 1966. Т.2, № 8. С.851-858.
7. Шифрин К.С., Колмаков И.Б.// Изв. АН СССР. Сер. физика атмосферы и океана. 1967. Т.3, № 12. С.1271-1279.
8. Шифрин К.С.// Изв. АН СССР. Сер. физика атмосферы и океана. 1966. Т.2, № 9. С.928-932.
9. Голубев А.Г., Ягодкин В.И.// Тр. ЦИАМ. 1978. № 828. С.1-21.
10. Шифрин К.С. Рассеяние света в мутной среде. М.; Л., 1951. 288 с.
11. Клубин В.В., Носкин В.А. Анализ рэлеевских спектров света, рассеянного растворами макромолекул, методом оптического смешения: Препринт ЛИЯФ. 1979. № 485.
12. Коженков В.И., Фуко Н.А.// Успехи химии. 1967. Т.45, № 12. С.2274-2284.