

## **Bevezetés**

A fényszórás tanulmányozása és az azt felhasználó aeroszol mérés technikai módszerek fejlesztése közel egy évszázados múltra tekint vissza. A fejlődés még töretlenül tart, hiszen ismereteink bővülésével egyre újabb tartományok vizsgálata válik szükségessé, valamint a megoldandó problémák bonyolultságából adódóan még nem minden paraméter mérésére létezik kiforrott, általánosan elfogadott módszer. Például a fényszóráson alapuló részecske méretmeghatározás alapvetően függ a választott geometriai elrendezéstől, a részecskék összetételétől, törésmutatójától és alakjától is. Ezen paraméterek ismerete jelentősen hozzájárul az aeroszolk viselkedésének megértéséhez, ami elengedhetetlen például az éghajlatot befolyásoló tényezők tanulmányozásakor, a levegőszennyezettség, valamint annak egészségügyi vonatkozásainak vizsgálatakor.

Az optikai részecskeszámláló és eloszlásmérő műszerek, amelyeket a szakirodalomban gyakran aeroszol spektrométereknek neveznek, az egy részecskéről szórt fényt detektálják, mialatt az áthalad az érzékelő térfogaton, amely meg van világítva egy fényalábbal. Fényforrásként leggyakrabban lézert használnak. A szórt fény intenzitásából azután meghatározzák a részecske méretét. Ismert geometriák és áramlási viszonyok mellett ezután kiszámolható a részecskék koncentrációja és méreteloszlása. Egy ideális berendezésben a szórt intenzitás monoton függvénye a részecskeméretnek és független annak anyagától is, ami egyértelmű méret mérést eredményezhetne. A valóságban azonban nem ez az eset áll fenn. A berendezés válaszfüggvénye, ami a részecskéről adott térszög alatt kiszórt intenzitás, nem feltétlenül monoton függvénye a részecske méretének. A válaszfüggvény függ a detektálási térszögtől, a részecske anyaga által meghatározott törésmutatótól és alakjától is. Az ilyen típusú műszerek legnagyobb hátránya, hogy a mérendő részecskék optikai tulajdonságainak megfelelően minden anyaghoz újra kell őket kalibrálni, különben jelentős hibával kell számolnunk.

Manapság sok különböző típusú optikai részecske számláló van forgalomban. Azok amelyek előre szórási geometriával dolgoznak, kevésbé érzékenyek a törésmutató valós részének változására és a válaszfüggvényük viszonylag monoton abszorbeáló részecskékre, de nagyon nagy oszcillációt mutat átlátszó (nem abszorbeáló) részecskékre, különösen a 0.7 - 3.0  $\mu\text{m}$  tartományban. Másrészt viszont azok a

berendezések, amelyek nagy térszögből gyűjtik a szórt fényt viszonylag monoton válaszfüggvénnyel rendelkeznek átlátszó részecskékre de elnyelő részecskék esetén jelentős lehet a méretmeghatározási hiba, különösen a 0.3  $\mu\text{m}$  alatti tartományban.

A részecskék törésmutatójának és alakjának (alakfaktorának) mérésére már léteznek többé kevésbé kidolgozott módszerek, de még mindegyik csak jelentős megszorításokkal alkalmazható. Az egyik ilyen módszer a részecskéről az előre és a hátra szórt intenzitás analizálásával ad becslést a törésmutatóra, és ha már ismert a törésmutató, akkor javítja a méretmeghatározás felbontását. A törésmutató becslése azonban csak egy durva becslés, csak annyi dönthető el, hogy a részecskék átlátszóak, vagy erősen elnyelők. Az alak meghatározására is kidolgoztak egy módszert, ami a mért szórási kép és az elmélet által különböző alakú részecskékről számolt szórási kép összehasonlításán alapul. A módszer hátránya, hogy az alak és az orientáció függvényében a variációk száma igen nagy, és az optikai tulajdonságok is tovább bonyolítják a helyzetet.

## **Célkitűzések**

A bevezetőben foglaltak alapján a munkám során a következő célokat tűztem ki:

Az előre és hátra szórást mérő rendszer tapasztalatai alapján egy új módszer kidolgozása az aeroszol részecskék méretének és komplex törésmutatójának egyidejű mérésére, ahol a méretmeghatározás nem függ a törésmutatótól. E célból a kéthullámhosszú megvilágítást és mindkét hullámhosszra az előre és a hátra szórást mérő rendszer paramétereinek meghatározása és optimalizálása. A kidolgozott módszer analizálása a mért paraméterek pontosságának és felbontásának vizsgálatával. A méretmeghatározás pontosságának vizsgálata a részecske méret függvényében. A mért méret és törésmutató eloszlás torzulásának vizsgálata szimulációval.

Folyadékokban lebegő részecskék méretének és alakfaktorának mérésére alkalmas módszer kidolgozása. A részecskéről szórt impulzus amplitúdójának és hosszának mérésén alapuló rendszerben a mért paraméterek elméleti értékeinek meghatározása. Az ezt az elvet megvalósító berendezéssel felvett detektor jelek összevetése az

elmélettel. Az alakfaktor mérés lehetőségének vizsgálata, az alaktól való függés beépítése az elméleti modellbe. A mért paraméterek, valamint a méret és az alak közötti összefüggés meghatározása.

Az SZFKI-ban kifejlesztett és megépített optikai részecskeszámlálók megvizsgálása és továbbfejlesztése egy atomreaktor katasztrófa szimulációs kísérlethez, ahol fel kell készíteni azokat a várható magas hőmérsékleti és koncentráció tartományokra. A berendezések beépítése a kísérleti környezetbe, tesztelése és a mérések elvégzése. A mérések után a berendezések ellenőrzése az esetleges, a mérést befolyásoló átmeneti (eltömődés) és tartós (deformációk, lézertiódia és detektor) károsodások szempontjából. A mért adatok kiértékelése, a koncentráció, a gőzáram és a hőmérséklet közötti kapcsolat megállapítása a kísérlet különböző szakaszaiban. A mért méreteloszlás és változásának tanulmányozása az egyes szakaszokban. A kapott eredmények összevetése a többi mért paraméterrel.

### **Vizsgálati módszerek**

Az aeroszol részecskék méretének és komplex törésmutatójának mérésére kifejlesztett módszer modellszámításaihoz a Mie elméletet vettem alapul, ami monokromatikus síkhullámmal megvilágított, homogén, gömb alakú részecskék esetén adja meg a szórt fény jellemzőit. Ez alapján hoztam létre azokat az programokat, amelyek adott megvilágító hullámhossz, komplex törésmutató és méret esetén kiszámolják az adott irányba vagy egy térszögbe szórt intenzitást. Mivel a módszer a négy mért értékből nem analitikusan határozza meg a méretet és a törésmutatót, az adatkiértékelő eljárást szimulálva vizsgáltam a mért paraméterek és a kimenő paraméterek közötti összefüggéseket, az eredmény pontosságát és felbontását.

Az impulzus amplitúdó és jelhossz mérésén alapuló módszer vizsgálatához az extinkció számolására szintén a Mie elmélet alapján készítettem programot. Mivel a jelalakra is szükség van a számításokhoz, a részecske felület és a beeső Gauss nyaláb konvolúciójából képzett együtthatóval korrigáltam az extinkciót. Azonos sebességet feltételezve az így kapott jelek egy adott komparációs szintnél vett hosszát vettem a repülési időnek, vagyis a jelhossznak. Az alakfaktor vizsgálatához gömb alakú részecskék helyett forgási ellipszoid részecskéket vettem, ahol a két

tengely aránya határozza meg az alakfaktort. Az LQB-1-200-L-T folyadéktisztaság mérő berendezéssel mért oszcilloszkóp jelekhez amplitúdó illesztéssel határoztam meg az elméleti számoláshoz szükséges paramétereket.

Az atomreaktor katasztrófa szimulációs kísérlethez az SZFKI-ban kifejlesztett APC-03-2B és APC-01-02 aeroszol részecske számláló berendezéseket használtam. A méréshez a második műszer mérőfeje át volt alakítva úgy, hogy mobilisan közvetlenül a mintavételezési pontra csatlakozott, ezáltal növelve a mérési hatásfokot. A berendezések mérési ciklusidejét úgy határoztuk meg, hogy az illeszkedjen a lejátszódó folyamatok dinamikájához, vagyis a kezdeti 10 s-os ciklust a kritikus szakaszban 5 s-ra változtattuk a megfelelő felbontás érdekében. Az adatok (mért részecske méretek) mindkét berendezésben egy-egy sokcsatornás analízatorba gyűltek, azonnal megadva a méreteloszlást.

### **Új tudományos eredmények**

1. Mérési módszert dolgoztam ki az aeroszol részecskék méretének és komplex törésmutatójának egyidejű meghatározására, amely kéthullámhosszú megvilágító- valamint az előre és a hátra szórást egyidejűleg mérő detektor- rendszeren alapul. Meghatároztam a mért adatok és a méreteloszlás, valamint a törésmutató közötti összefüggéseket különböző mintavételezési feltételek mellett. A módszer előnye, hogy nagy felbontással, a törésmutatótól függetlenül képes meghatározni a méretet a 0.1 - 10  $\mu\text{m}$  tartományban, valamint mérni a törésmutatót a 1.1 - 2.5 valós és a 0 - 1 képzetes tartományban. [2,5,22]

2. Megvizsgáltam a fenti módszer pontosságát ideális és valós környezetben, figyelembe vettem az optikai és elektronikai (detektor) zajt. Megmutattam, hogy  $\pm 10\%$  zaj esetén is jó felbontással mérhető mind a méret, mind a komplex törésmutató. Szimulációs modellt dolgoztam ki a valós és a mért méreteloszlás összehasonlítására. Megvizsgáltam a méret és a komplex törésmutató eloszlásának változását különböző feltételek mellett. [3,5]

3. Új mérési eljárást dolgoztam ki a folyadékokban lebegő részecskék méreteloszlásának meghatározására, amely az impulzus amplitúdó és jelhossz

egyidejű mérésén alapul és az általunk fejlesztett LQB-1-200-L-T folyadéktisztaság mérő berendezésben valósult meg. A módszerrel kiterjeszhető a méretmeghatározás tartománya és csökkenthető a mérési hiba. [1,4,16,20,21,23]

4. A berendezésben alkalmazott módszerre megvizsgáltam a javasolt eljárással az alakfaktor becslésének a lehetőségét. Az impulzus amplitúdójának és hosszának egyidejű mérése esetén összefüggést találtam ezen értékek és az alakfaktor között. Adott impulzus amplitúdó mellett a jelhosszból becslés adható az alakfaktorra. [15,17]

5. Két, az SZFKI-ban épített részecskeszámlálóval részt vettem az EU 5. keretprogramjának részeként lefolytatott CODEX B4C nukleáris katasztrófa szimulációs kísérletben. A részecskeszámláló berendezéseket továbbfejlesztettem a magas hőmérsékletű nukleáris aeroszolok vizsgálatára. A beépített berendezésekkel megmértem a felszabaduló aeroszolok méreteloszlásának és koncentrációjának hőmérsékletfüggését. Megállapítottam a rendszerbe bevezetett gőz és a felszabaduló aeroszolok koncentrációváltozásai között létrejövő korrelációt. [30]

#### **Az értekezés témájához kapcsolódó folyóiratcikkek**

1. A. Nagy, *Application of airborne particle counters APC-03-2, APC-03-2A and liquidborne particle counter LQB-1-200 under different contamination conditions*, Journal of Aerosol Science, vol 28s, 255-256, 1997.
2. A.Czitrovsky, P.Jani, A.Nagy, C.Schindler, W.W.Szymanski, *An Approach to a Simultaneous Assessment of Aerosol Particle Size and Refractive Index by Multiple Angle Detection*, Journal of Aerosol Science , vol 31, pp 761-762, 2000.
3. A.Nagy, W.W. Szymanski, A. Czitrovsky, P. Jani, *Modeling of a new optical aerosol particle analyzer for the simultaneous measurement of size, complex refractive index and density*, Journal of Aerosol Science , vol. 32, 83-84, 2001.
4. Czitrovsky A., Nagy A., Jani P., *Berendezés folyadékok tisztaságának meghatározására, lebegő részecskék méreteloszlásának és koncentrációjának*

*optikai mérésével*, Műszerügyi és mérés technikai közlemények, 62. Szám 21-26. old., 1998.

5. W.W. Szymanski, A. Nagy, A. Czitrovsky and P. Jani, *A new method for the simultaneous measurement of aerosol particle size, complex refractive index and particle density*, Measurement Science & Technologie, vol. 13. pp. 303-307, 2002.
6. A.Czitrovsky, J.Frecska, P.Jani, L.Matus, A. Nagy, *Size distribution of aerosols released from heated LWR fuel rods*, Journal of Aerosol Science, vol 27s, 467-468, 1996.
7. P.Jani, A.Czitrovsky, A.Nagy, R.Hummel, *Investigation of size distribution and concentration of aerosols released at CODEX AIT experiments*, Journal of Aerosol Science, vol 30s, 101-102 , 1999.
8. P. Jani, A. Nagy, A. Czitrovsky, *Aerosol particle size determination using a photon correlation laser Doppler anemometer*, Journal of Aerosol Science, vol 27s, 531-532, 1996.
9. P. Jani, A Nagy, A. Czitrovsky, *On the calibration procedures of laser particle counters*, Journal of Aerosol Science, vol. 28s, 265-266, 1997.
10. P. Jani, A. Nagy, A. Czitrovsky, *Single nanoparticle size measurement algorithm using photon correlation techniques*, Journal of Aerosol Science, vol 29s, 419-420, 1998.
11. P. Jani, A. Nagy, Z. Lipp, A. Czitrovsky, *Velosizer – photoncorrelation LDA system*, J. of Aerosol Science, vol. 31, pp. 390-391, 2000.
12. P.Jani, Z.Lipp, A.Nagy, A.Czitrovsky, *Propagation delay statistics of scattered intensities*, Journal of Aerosol Science , vol. 32, 87-88, 2001.
13. P.Jani, M.Koniorczyk, A.Nagy, A.Czitrovsky, *Probability distribution of scattered intensities*, Journal of Aerosol Science , vol. 32, 563-564, 2001.
14. P.Jani, M.Koniorczyk, A.Nagy, Z.Lipp, B.Bartal, A.László, A.Czitrovsky, *Probability distribution of scattered intensities*, Journal of Aerosol Science, vol. 33 issue 5 pp. 697-704, 2002.

**Az értekezés témájához kapcsolódó, konferencia és egyéb kiadványokban megjelent publikációk**

15. A. Czitrovsky, A. Nagy, P. Jani, *Estimating the shape-factor of suspended particles in a liquidborne particle counter*, SPIE vol.3407 pp.250-255, 1998.
16. A. Czitrovsky, A. Nagy, T. Mosoni, P. Jani, K. Bodnár, Á. Illés, *A new sizing method for liquid-borne particles with high dynamic range*, SPIE, vol 3573, pp. 225-229, 1998.
17. A.Czitrovsky, A.Nagy, P.Jani, *Development of a new particle counter for simultaneous measurement of the size distribution, concentration and estimation of the shape-factor of liquid-borne particles*, SPIE vol.3749 pp.574-575, 1999.
18. Jani P., Nagy A., *A lézeres részecskeszámológ kalibrációjának Monte-Carlo modellezése*, Az aeroszolok dinamikája, hatása és vizsgálati módszerei, 81-85 old., Budapest, 1996.
19. Jani P., Nagy A., Czitrovsky A., *Aeroszol részecskeméret meghatározás fotonkorrelációs LDA rendszer segítségével*, Az aeroszolok dinamikája, hatása és vizsgálati módszerei, 76-80 old., Budapest, 1996.
20. A. Czitrovsky, A. Nagy, P. Jani, *Application of pulse duration measurement method for size distribution measurement of liquid-borne particles*, 16<sup>th</sup> Annual Conference of the American Association for Aerosol Research - 97, p. 229, Denver, Colorado, 1997.
21. Czitrovsky A., Nagy A., Jani P., *Két különböző jelfeldolgozási módszer összehasonlítása a folyadékokban lebegő részecskék méreteloszlásának meghatározására*, Kvantumelektronika-97, Budapest, P64 (3 old.), 1997.
22. Nagy A., W.W.Szymaski, Czitrovsky A., C. Schindler, Jani P., *Két hullámhosszú optikai rendszer alkalmazása aeroszol részecskék méretének és törésmutatójának egyidejű mérésére*, V. Magyar Aeroszol Konferencia, (Szeged), 2000.
23. Czitrovsky A., Nagy A., Jani P., *Széles dinamika tartományú folyadék-tisztaságmérő berendezés*, IV. Magyar Aeroszol Konferencia (Veszprém) 7.old.
24. P. Jani, A. Nagy, A. Czitrovsky, *Size distribution measurement of particles in LDA systems using backscattering geometry*, SPIE vol.3407 pp.262-266, 1998.
25. P.Jani, A.Nagy, A.Czitrovsky, *Nano-particle size distribution measurement in photon correlation experiments*, SPIE vol.3749 pp.458-459, 1999.
26. P. Jani, A. Nagy, Z. Lipp, A. Czitrovsky: *Simultaneous velocity and size measurement of particles in photon correlation experiments*: SPIE V. 4416 p 236-240. 2001.
27. P. Jani, A. Nagy, A. Czitrovsky, *Particle size measurement with a photon correlation LDA system*, 15th Annual Conference of the American Association for Aerosol Research - 96, p. 237, Orlando, Florida, 1996.
28. P. Jani, A. Nagy, A. Czitrovsky, *Monte-Carlo modeling of the calibration procedure of particle counters*, 16<sup>th</sup> Annual Conference of the American Association for Aerosol Research - 97, p. 424, Denver, Colorado, 1997.
29. Jani P., Nagy A., Czitrovsky A., *Nanorészecskék méretmeghatározása fotonkorrelációs módszerrel*, IV. Magyar Aeroszol Konferencia (Veszprém) 8.old.
30. P. Windberg, I. Nagy, L. Matus, M. Balaskó, Z. Hózer, A. Czitrovsky, A. Nagy, *Integral core degradation test with B4C control rod*, Int. Conf. Nuclear Energy in Central Europe (Slovenia, 2001.)