

Восстановление массовой концентрации пыли в промышленных выбросах из результатов оптического зондирования

С.А. Лысенко, М.М. Кугейко*

*Белорусский государственный университет
220030, г. Минск, пр. Независимости, 4, Беларусь*

Поступила в редакцию 30.05.2011 г.

Разработана статистическая микрофизическая модель пыли, выбрасываемой в атмосферу предприятиями по производству цемента, учитывающая возможные вариации химического состава частиц, их концентрации и функции распределения по размерам. Смоделирован ансамбль микрофизических параметров пыли, и рассчитаны коэффициенты ослабления на длинах волн 0,355; 0,532; 1,064; 1,25; 1,56; 1,67 и 2,14 мкм из «окон прозрачности» отходящих газов на цементных заводах. На основе метода множественных регрессий оценены погрешности восстановления массовой концентрации пыли из результатов зондирования на длинах волн, соответствующих Nd:YAG-лазеру с генерацией третьей гармоники; установлены наборы из двух (0,532; 2,14 мкм) и трех (0,532; 1,56; 2,14 мкм) длин волн оптического зондирования, оптимальные в плане их информативности относительно концентрации и устойчивости соответствующих им решений обратной задачи к погрешностям оптических измерений и влиянию формы пылевых частиц; рассчитаны зависимости погрешностей восстановления концентрации из значений коэффициента ослабления на оптимальных длинах волн от погрешности оптических измерений. Установлена тесная корреляция между концентрацией пыли и ее коэффициентом ослабления на длине волны 2,14 мкм, позволяющая восстанавливать концентрацию из результатов одночастотного зондирования с погрешностью ~ 8%.

Ключевые слова: промышленные выбросы в атмосферу, цементная пыль, оптическое зондирование, обратная задача, множественные регрессии; industrial exhaust in atmosphere, cement dust, optical sensing, inverse problem, multiple regressions.

Введение

Деятельность многих отраслей промышленности неизбежно связана с выделением загрязняющих веществ в атмосферу. Так, в случае нарушения технологических процессов очистки отходящих газопылевых потоков при производстве строительных материалов (таких как цемент, стекло, кирпич, асфальтобетон и т. п.) в воздух выбрасывается большое количество пылевых частиц, отрицательно влияющих на окружающую среду и условия жизни людей.

В соответствии с действующими в настоящее время правилами и стандартами для количественной оценки выбросов твердых загрязняющих веществ (пыли) в атмосферу используется массовая концентрация пыли в выбросных газах. Основными средствами улавливания и контроля пыли являются электростатические и рукавные фильтры [1, 2]. Предварительно взвешенный фильтр последовательно подвергают осушке и повторному взвешиванию. Относительное увеличение массы приписывают массе твердых частиц, уловленных фильтром. До настоящего времени метод считается эталонным.

Однако он требует строгого выполнения длительных операций и высокой квалификации. В результате загрязнение воздуха выявляется лишь по прошествии значительного промежутка времени после его возникновения.

Лазерно-локационные методы, обладающие мощным потенциалом для оперативного и дистанционного определения характеристик аэрозольных выбросов, пока не вполне устраивают санитарно-гигиенические и эпидемиологические службы, поскольку методически не аттестованы. При этом следует отметить, что к настоящему времени разработаны достаточно эффективные подходы к определению коэффициента аэрозольного ослабления в газопылевом шлейфе от локального источника. В первую очередь это относится к двухлучевому методу [3], использующему предположение о равенстве средних значений коэффициентов ослабления и обратного рассеяния фоновой атмосферы вдоль двух направлений зондирования — через аэрозольный шлейф и через фоновую атмосферу вблизи устья шлейфа. В работе [4] предложена легко автоматизируемая модификация данного метода, использующая помехоустойчивый алгоритм безпорогового определения границ аэрозольного шлейфа на трассе зондирования [5].

* Сергей Александрович Лысенко (lisenko@bsu.by);
Михаил Михайлович Кугейко (kugeiko@bsu.by).

Наибольшие методические трудности, не позволяющие провести метрологическую аттестацию лазерно-локационных систем, связаны с решением задачи восстановления массовой концентрации из оптических измерений. Так, в случае одночастотного лидарного зондирования переход от коэффициента аэрозольного ослабления $\varepsilon(\lambda)$ к массовой концентрации M аэрозоля осуществляется с использованием расчетного или эмпирического коэффициента $K = M\varepsilon(\lambda)$, связывающего данные параметры [6]. Значение коэффициента K не является строго детерминированным, а может изменяться в широких пределах в зависимости от микроструктуры аэрозоля [3, 6]. Многочастотные лидарные измерения коэффициента аэрозольного ослабления позволяют в значительной степени устранить произвол в выборе значения коэффициента K , поскольку в этом случае некоторые оценки параметров распределения аэрозольных частиц по размерам могут быть получены в результате решения обратной задачи [7], сводящейся к обращению интегрального уравнения первого рода:

$$\varepsilon(\lambda) = NC_{ext}(\lambda) = N \int_0^{\infty} \pi r^2 Q(m(\lambda), x) f(r) dr, \quad (1)$$

где N – счетная концентрация частиц, мм^{-3} ; C_{ext} – интегральное сечение ослабления полидисперсного ансамбля частиц; r – характерный размер частицы; $Q(m(\lambda), x)$ – фактор эффективности ослабления, известный из теории рассеяния света на отдельной частице [8, 9]; $m = n + i\chi$ – комплексный показатель преломления вещества частиц (КПП); $x = 2\pi r/\lambda$; $f(r)$ – функция распределения частиц по размерам.

Большинство существующих лидаров работает на длинах волн видимого и ближнего ИК-диапазонов [10–12], наиболее информативных относительно частиц субмикронного аэрозоля, т.е. имеющих размер от 0,1 до 1,0 мкм. Однако размеры промышленных аэрозолей дисперсионного происхождения лежат в диапазоне от единиц до десятков микрон [1–3, 6], вследствие чего спектральный ход их коэффициента ослабления в видимой области спектра близок к нейтральному. Данное обстоятельство приводит к плохой обусловленности системы уравнений (1), соответствующей длинам волн оптического зондирования, и, как следствие, к сильной зависимости решения обратной задачи от погрешностей оптических измерений. По этой причине немаловажной является оценка погрешностей оптических измерений и оптимального количества длин волн зондирования, при которых решение обратной задачи (1) дает выигрыш в точности определения концентрации аэрозоля по сравнению с использованием коэффициента связи K . Как показано в [13], для подобных оценок с успехом может использоваться метод множественных регрессий, позволяющий оценивать информативность оптических измерений с учетом их погрешностей.

Большие возможности в экологическом мониторинге промышленных аэрозолей дисперсионного происхождения открывают существующие и развивающиеся источники широкополосного когерентного излучения в области спектра, информативной относительно крупных частиц ($\lambda > 1$ мкм) [14, 15]. В связи с этим актуальным является развитие методической базы для надежной интерпретации локационных измерений системами на основе данных источников.

Настоящая статья посвящена анализу информативности и интерпретации многочастотных измерений коэффициента ослабления цементной пыли относительно ее микрофизических характеристик, а также выбору длин волн оптического зондирования, являющихся наиболее оптимальными в плане их информативности относительно массовой концентрации пыли и устойчивости соответствующих им решений обратной задачи (1) к погрешностям оптических измерений.

Статистическая микрофизическая модель цементной пыли в промышленных выбросах

Для анализа информативности аэрозольных оптических измерений с использованием метода множественных регрессий необходимо получение представительной выборки оптических и микрофизических характеристик аэрозоля. Выборка коэффициентов ослабления и массовой концентрации цементной пыли в выбросах получена на основе разработанной статистической микрофизической модели пыли, параметры которой рассматриваются в данном разделе.

Функция распределения частиц по размерам. Спектр размеров промышленных аэрозолей дисперсионного происхождения хорошо описывается логарифмически нормальным распределением [1, 3, 6]:

$$f(r) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma r} \exp \left[-\frac{1}{2} \left(\frac{\ln(r/r_m)}{\sigma} \right)^2 \right], \quad (2)$$

где r – радиус сферической частицы с эквивалентным объемом, r_m – модальный радиус; σ – стандартное отклонение для $\ln r$. В соответствии с существующей классификацией пыли [2] цементная пыль, выбрасываемая в атмосферу, относится к мелкодисперсной группе. По данным [3, 16], подавляющее большинство частиц такой пыли имеют размер менее 2,5 мкм, при этом эффективный радиус частиц r_{eff} (отношение третьего момента $f(r)$ ко второму) находится в области 0,6 ... 1,2 мкм [3].

В качестве модели вариаций параметров r_m и σ использовались равномерные распределения, требующие лишь указания диапазона возможных вариаций параметров. Исходя из данных [1, 3, 16], выбраны следующие диапазоны $r_m = 0,3 \dots 1,0$ мкм; $\sigma = 0,2 \dots 0,7$. При этом контролировалось, чтобы эффективный радиус частиц r_{eff} не выходил из диапазона 0,6 ... 1,2 мкм.

Комплексный показатель преломления. Химический состав цемента достаточно сложен и может значительно отличаться в зависимости от применяемого сырья и способа производства клинкера. Основные составляющие цемента – это известь CaO, кремнезем SiO₂, оксид алюминия Al₂O₃ и гематит Fe₂O₃ [2, 17]. Химический состав портландцемента представлен в основном известью и кремнеземом, глиноземистый цемент, кроме оксидов кальция и алюминия, содержит в небольших количествах также оксиды железа, магния MgO, титана TiO₂ и др.

В табл. 1 приведены диапазоны вариаций объемного содержания основных составляющих портландцемента и глиноземистого цемента, выбранные на основании анализа литературных данных по химическому составу цемента различных марок [2, 17, 18].

Таблица 1

Диапазоны вариаций объемных концентраций компонентов цемента и воды (за счет гигроскопичности) в составе частиц пыли

Компонент	v, %	
	Портландцемент	Глиноземистый цемент
CaO	52–70	26,2–45
Al ₂ O ₃	2,6–7	26,2–70
SiO ₂	15,7–25	3,5–15
Fe ₂ O ₃	0,26–5	1,5–10
MgO	0,09–4,5	0,09–1,0
H ₂ O	0,2–12,6	0,2–12,6

В настоящее время в литературе (и на электронных носителях) имеется достаточно подробная информация о спектрах КПП таких составляющих цемента, как SiO₂, Al₂O₃, Fe₂O₃ и MgO [19–21]. Однако данные по КПП оксида кальция ограничены лишь областью спектра $\lambda = 0,43 \div 0,66$ мкм [22]. При этом именно содержание CaO в составе портландцемента характеризуется наибольшими колебаниями и обуславливает наибольшую изменчивость его КПП. В связи с этим при статистическом моделировании спектров КПП цементной пыли $m(\lambda)$ спектр КПП оксида кальция $m_{CaO}(\lambda)$ при $\lambda > 0,66$ мкм задавался в виде линейной функции

$$m_{CaO}(\lambda) = m_{CaO}(\lambda_{0,66}) + [\xi - m_{CaO}(\lambda_{0,66})] \frac{\lambda - \lambda_{0,66}}{\lambda_{2,0} - \lambda_{0,66}},$$

где $\lambda_{0,66} = 0,66$ мкм, $\lambda_{2,0} = 2,0$ мкм; $m_{CaO}(\lambda_{0,66}) = 1,83$ [22]; параметр ξ , имеющий смысл КПП CaO на длине волны $\lambda_{2,0}$, выбирался случайным образом из диапазона 1,65–1,80. КПП цементной пыли рассчитывался как линейная комбинация КПП отдельных компонентов цемента и воды (за счет гигроскопичности) с учетом их объемных концентраций v_j :

$$m(\lambda) = v_{CaO} m_{CaO}(\lambda) + v_{SiO_2} m_{SiO_2}(\lambda) + v_{Al_2O_3} m_{Al_2O_3}(\lambda) + v_{Fe_2O_3} m_{Fe_2O_3}(\lambda) + v_{MgO} m_{MgO}(\lambda) + v_{H_2O} m_{H_2O}(\lambda).$$

На рис. 1 приведены спектральные зависимости действительной $n(\lambda)$ и мнимой $\chi(\lambda)$ частей КПП компонент цемента и воды, используемые в настоящей статье (мнимые части КПП CaO, Al₂O₃, MgO малы и в расчетах полагались равными нулю).

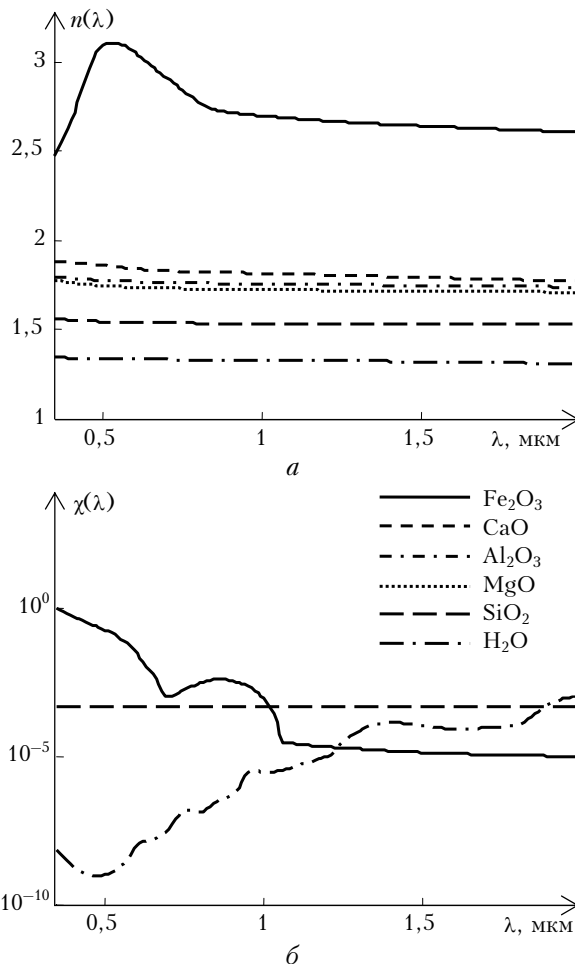


Рис. 1. Спектры действительной (а) и мнимой (б) частей комплексных показателей преломления основных составляющих цемента и воды, используемые в расчетах

Для рассматриваемых компонент частиц, за исключением гематита при $\lambda \leq 0,5$ мкм, характерны слабое поглощение и почти нейтральная зависимость $n(\lambda)$. В связи с этим очевидно, что отмеченные выше вариации спектральной зависимости $m_{CaO}(\lambda)$ при $\lambda \geq 0,66$ мкм позволяют в достаточной мере учесть как неопределенность литературных данных по этой зависимости, так и присутствующие в составе цемента (в малых количествах) химические компоненты, не рассматриваемые в настоящей статье.

Для портландцементной пыли вариации объемных концентраций SiO₂, Al₂O₃, Fe₂O₃, MgO и H₂O осуществлялись независимо в диапазонах, приведенных в табл. 1. Концентрация CaO рассчитывалась как

$$v_{CaO} = 1 - v_{SiO_2} - v_{Al_2O_3} - v_{Fe_2O_3} - v_{MgO} - v_{H_2O}.$$

При этом производился контроль получаемой величины v_{CaO} на выход из диапазона значений, характерных для портландцемента (см. табл. 1). Аналогично осуществлялись вариации концентраций CaO , SiO_2 , Fe_2O_3 , MgO , H_2O и расчет $v_{Al_2O_3}$ для глиноземистого цемента.

Концентрация частиц. Массовая концентрация цементной пыли в зависимости от мощности источника и расстояния от него может изменяться на несколько порядков. Исходя из этого в нашей модели варьировалась не сама массовая концентрация, а ее десятичный логарифм в диапазоне от $-1,0$ до $1,0$ (т.е. $M = 0,1 \dots 10 \text{ мг/м}^3$), что полностью охватывает диапазон ее значений, полученных в экспериментах [2, 3, 6, 16].

Эффективная плотность вещества обводненных пылевых частиц ρ определяется аналогично их КПП в соответствии с объемным содержанием компонентов цемента и воды в составе частиц. При этом используются следующие значения плотностей компонентов [23]:

$$\begin{aligned} \rho_{CaO} &= 3,35 \text{ г/см}^3, \quad \rho_{SiO_2} = 2,65 \text{ г/см}^3, \\ \rho_{Al_2O_3} &= 4,0 \text{ г/см}^3, \quad \rho_{Fe_2O_3} = 5,24 \text{ г/см}^3, \\ \rho_{MgO} &= 3,58 \text{ г/см}^3, \quad \rho_{H_2O} = 1,0 \text{ г/см}^3. \end{aligned}$$

Таким образом, микрофизическая модель цементной пыли определяется девятью параметрами: M , r_m , σ , объемные содержания компонентов пыли (SiO_2 , Al_2O_3 , Fe_2O_3 , MgO , H_2O — для портландцемента и CaO , SiO_2 , Fe_2O_3 , MgO , H_2O — для глиноземистого цемента) и параметр ξ спектра $m_{CaO}(\lambda)$. По известным правилам моделирования равномерно распределенных случайных величин выбирался набор параметров и рассчитывался коэффициент ослабления пыли на длинах волн оптического зондирования. Объем выборки оптических и микрофизических характеристик цементной пыли составляет 10^3 реализаций, причем одна половина выборки соответствует портландцементу, другая — глиноземистому цементу.

Выбор спектральных участков зондирования

Выбор длин волн оптического зондирования цементной пыли обусловлен, во-первых, практическими возможностями генерации лазерного излучения на этих длинах волн, во-вторых — требованием минимального влияния на результат оптических измерений поглощения газовыми составляющими, присутствующими в отходящих газах на цементных заводах. Относительно первого аспекта следует отметить, что в настоящее время для зондирования атмосферного аэрозоля широко используются системы, построенные на основе Nd:YAG-лазера. Однако в ближайшее время в практику оптического зондирования могут твердо войти системы на основе широкополосных источников когерентного излучения, открывающие большие возможности в оптических измерениях крупных частиц естественного и антропогенного происхождения (частицы обла-

ков, туманов, пыли и т.п.) [15]. В связи с этим при выборе спектральных участков зондирования для данных источников излучения будем руководствоваться только требованием их попадания в «окна прозрачности» газопылевого потока, выбрасываемого в атмосферу цементными заводами.

В зависимости от способа производства цемента и используемого при этом топлива (природный газ, уголь, мазут и т. д.) в атмосферу могут выбрасываться такие газы, как H_2O , N_2 , O_2 , CO , CO_2 , SO_2 , SO_3 , NO , NO_2 [2]. Из них только пять газов (H_2O , CO , CO_2 , SO_2 , NO) имеют полосы поглощения при $\lambda < 2,5 \text{ мкм}$ [20].

Для выбора «окон прозрачности» газопылевого потока, выбрасываемого в атмосферу, проведен расчет его спектрального пропускания $T(\lambda)$ с учетом вышеотмеченных газовых компонентов. Расчет молекулярного пропускания $T_m(\lambda)$ осуществлялся прямым (line-by-line) методом — суммированием коэффициентов поглощения $k_{ij}(\lambda)$ в отдельных линиях поглощения (индекс j) различных газов (индекс i):

$$T_m(\lambda) = \prod_{i=1}^5 \left\{ \exp \left[-\rho_i L \sum_j k_{ij}(\lambda, t, p, \rho_i) \right] \right\},$$

где L — длина трассы; t и p — температура и давление в выбросе; ρ_i — концентрации газов, г/м^3 . Параметры тонкой структуры полос поглощения газов брались из базы данных HITRAN-2004 [20]. На рис. 2 приведен спектр пропускания однородного газопылевого облака.

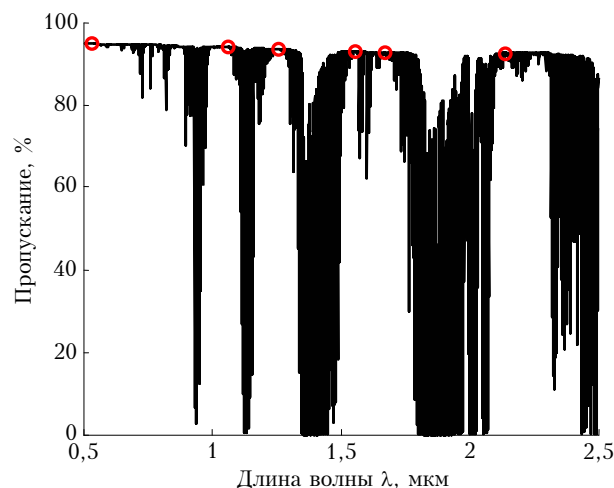


Рис. 2. Спектральное пропускание однородного газопылевого облака при длине трассы $L = 10 \text{ м}$, концентрациях газовых компонентов: H_2O — 76 г/м^3 , CO — $5,2 \text{ г/м}^3$, CO_2 — 300 г/м^3 , NO — $0,21 \text{ г/м}^3$, SO_2 — $1,8 \text{ г/м}^3$, параметрах функции распределения частиц пыли по размерам: $r_m = 0,7 \text{ мкм}$; $\sigma = 0,4$ и массовой концентрации пыли $M = 10 \text{ мг/м}^3$. Кружками отмечены длины волн, для которых производился расчет коэффициента ослабления

Видно, что в спектральных диапазонах $1,24$ – $1,28$; $1,55$ – $1,56$; $1,665$ – $1,685$; $2,137$ – $2,149 \text{ мкм}$ отсутствуют сильные полосы поглощения газовых компонентов, а значит, ослабление излучения обусловлено в основном пылевыми частицами.

Оптическое зондирование в связи с этим целесообразно осуществлять на длинах волн из этих диапазонов. Нами для расчета коэффициента ослабления $\epsilon(\lambda)$ цементной пыли выбраны длины волн 1,25; 1,56; 1,67 и 2,14 мкм, возможность генерации излучения на которых обусловлена наличием существующих лазерных источников [14, 15]. Кроме того, расчет $\epsilon(\lambda)$ производился и для длин волн 0,355; 0,532 и 1,064 мкм, соответствующих лидарной системе на основе Nd:YAG-лазера с генерацией третьей гармоники.

Расчет коэффициента ослабления

Согласно данным [3, 16], большинство частиц цементной пыли имеют продолговатую форму, ввиду чего для расчета их коэффициента ослабления следует использовать модели, учитывающие данное обстоятельство. В последнее время часто используется модель смеси хаотически ориентированных сплюснутых и вытянутых сфероидов [8]. Однако правомерность такой модели применительно к частицам цементной пыли нуждается в обосновании. Кроме того, в литературе отсутствует информация о распределении пылевых частиц по параметру формы эквивалентных по объемам сфероидов. Тем не менее эта модель позволяет оценить влияние несферичности частиц на их коэффициент ослабления. В табл. 2 приведены значения интегральных сечений ослабления $C_{ext}(\lambda)$ полидисперсного ансамбля сфероидных частиц с параметром формы $\chi = 2,0$ (отношение осей сфероида), рассчитанные для $\lambda = 0,532; 1,064; 1,25; 1,56; 1,67$ и 2,14 мкм на

основе метода Т-матриц [8] и теории Ми [9] (для эквивалентных по объему сфер).

Расчет $C_{ext}(\lambda)$ произведен для максимального и минимального по модулю КПП частиц цементной пыли на указанных длинах волн и двух значений модального радиуса функции распределения частиц по размеру (2) $r_m = 0,6; 1,0$ мкм (при неизменном значении параметра $\sigma = 0,2$), соответствующих значению эффективного радиуса $r_{eff} = 0,66$ и 1,1 мкм. Отсутствие аналогичных результатов для $\lambda = 0,355$ мкм связано с плохой сходимостью метода Т-матриц при больших значениях параметра $x = 2\pi r/\lambda$. Из табл. 2 видно, что лишь для $\lambda = 0,532$ и 2,14 мкм различия δC_{ext} в значениях $C_{ext}(\lambda)$, рассчитанных для эквивалентных по объему сферических и сфероидных частиц, находятся в пределах погрешности лидарных измерений коэффициента ослабления (~10%) [4, 6]. Для других λ различия могут достигать 21%, что в дополнение к погрешностям оптических измерений будет сказываться и на точности восстановления массовой концентрации пыли из спектральных измерений ее коэффициента ослабления.

В настоящей статье рассматривается задача выбора наиболее информативных длин волн оптического зондирования относительно массовой концентрации пыли и оценки погрешностей восстановления концентрации из данных оптического зондирования. Для ее решения с учетом вышеизложенных сложностей практического применения метода Т-матриц для расчета коэффициента ослабления цементной пыли будем использовать теорию Ми [9].

Таблица 2

Интегральные сечения ослабления $C_{ext}(\lambda)$ полидисперсного ансамбля сфероидных частиц с параметром формы $\chi = 2,0$, комплексным показателем преломления m и параметрами распределения по размерам r_m и $\sigma = 0,2$, рассчитанные по методу Т-матриц (ТМ) и по формулам теории Ми

r_m , мкм	ТМ	Ми	δC_{ext} , %	ТМ	Ми	δC_{ext} , %
	$\lambda = 0,532$ мкм					
	$m = 1,74 + 0,002i$			$m = 1,91 + 0,012i$		
0,6	3,223	3,147	2,2	3,305	3,067	7,2
1,0	8,744	8,026	8,2	8,668	7,992	7,8
$\lambda = 1,064$ мкм						
	$m = 1,70 + 10^{-4}i$			$m = 1,84 + 0,0i$		
0,6	4,702	4,281	8,9	4,308	3,508	18,0
1,0	9,446	8,272	12,4	9,128	8,905	2,4
$\lambda = 1,25$ мкм						
	$m = 1,69 + 10^{-4}i$			$m = 1,83 + 0,0i$		
0,6	4,953	4,883	1,4	4,806	4,373	9,0
1,0	10,46	8,216	21,4	9,585	8,432	12,0
$\lambda = 1,56$ мкм						
	$m = 1,664 + 10^{-4}i$			$m = 1,819 + 0,0i$		
0,6	4,536	4,680	3,3	5,089	5,106	0,3
1,0	12,462	10,83	13,0	11,044	8,666	21,5
$\lambda = 1,67$ мкм						
	$m = 1,65 + 10^{-4}i$			$m = 1,81 + 0,0i$		
0,6	4,219	4,373	3,6	5,009	5,089	1,6
1,0	13,0	11,9	8,5	11,69	9,399	19,6
$\lambda = 2,14$ мкм						
	$m = 1,6 + 1,23 \cdot 10^{-4}i$			$m = 1,79 + 4,1 \cdot 10^{-5}i$		
0,6	2,620	2,760	5,3	4,005	4,169	4,2
1,0	13,13	13,43	2,3	13,71	12,98	5,3

Влияние несферичности частиц на точность решения обратной задачи восстановления массовой концентрации пыли оценивается путем наложения на рассчитанные спектральные значения коэффициента ослабления заданных случайных отклонений, учитывающих отмеченный факт.

Анализ информативности коэффициента аэрозольного ослабления на длинах волн оптического зондирования

Регрессионный метод решения обратных задач предполагает, что искомые микрофизические параметры аэрозоля (в частности, его массовая концентрация) могут быть найдены при помощи некоторой статистической функции от измеряемых оптических характеристик аэрозоля. В настоящей статье в качестве функциональной связи между массовой концентрацией M цементной пыли и спектральными значениями ее коэффициента ослабления $\epsilon(\lambda_i)$ использовались кубические полиномы следующего вида:

$$\ln M = a + \sum_{i=1}^{N_\lambda} \sum_{k=1}^3 b_{ik} [\ln \epsilon(\lambda_i)]^k, \quad (3)$$

где N_λ — число длин волн оптического зондирования; a и b_{ik} — коэффициенты регрессии, вычисляемые на основе выборки оптических и микрофизических характеристик аэрозоля с использованием метода наименьших квадратов. В общем случае вместо $\epsilon(\lambda_i)$ в (3) может присутствовать любой набор оптических характеристик аэрозоля, измеряемых на практике, а вместо M — любая микрофизическая характеристика аэрозоля.

Влияние погрешностей оптических измерений на результат восстановления искомых микрофизических характеристик аэрозоля оценивается на модельной выборке оптических и микрофизических характеристик аэрозоля путем проведения замкнутого численного эксперимента. Для каждой реализации параметров аэрозоля осуществляется расчет его искомых микрофизических характеристик с использованием соответствующих им уравнений (3) при наложении погрешностей на оптические характеристики, присутствующие в (3). Полученные значения микрофизических характеристик сравниваются с их «точными» (модельными) значениями. После перебора всех реализаций вычисляются средние по выборке погрешности, отражающие информативность рассматриваемых оптических измерений относительно искомых микрофизических характеристик.

Об эффективности восстановления массовой концентрации пыли из многочастотных измерений ее коэффициента ослабления можно говорить лишь в сопоставлении с соответствующими результатами для одночастотных измерений. Иными словами, следует сравнить погрешности восстановления M из многочастотных измерений $\epsilon(\lambda)$ (путем решения обратной задачи) с относительным среднеквадратическим отклонением коэффициента связи $K = M/\epsilon$.

Средние значения коэффициентов связи K для $\lambda_1 = 0,355$, $\lambda_2 = 0,532$ и $\lambda_3 = 1,064$ мкм, полученные по результатам вышеописанного статистического моделирования, составляют 1,5; 1,45 и 1,26 мг · км/м³ соответственно, их относительные среднеквадратичные отклонения — 22; 23 и 31%. Более точное восстановление M из измерений $\epsilon(\lambda_2)$ на основной длине волны Nd:YAG-лазера (с погрешностью ~18%) возможно с использованием полиномиальной регрессии (3), которая с учетом значений коэффициентов a и b_{ik} имеет вид

$$\ln M = 0,4004 + 1,0374 \ln \epsilon(\lambda_2) - 0,0187 [\ln \epsilon(\lambda_2)]^2 - 0,0203 [\ln \epsilon(\lambda_2)]^3. \quad (4)$$

Оценим погрешности восстановления M из многочастотных измерений $\epsilon(\lambda)$. В начале рассмотрим измерения $\epsilon(\lambda)$ ($\lambda_1 = 0,355$; $\lambda_2 = 0,532$; $\lambda_3 = 1,064$ мкм) лидарной системой с Nd:YAG-лазером в качестве источника. На рис. 3 приведены зависимости погрешности восстановления M из измерений $\epsilon(\lambda)$ на одной (λ_2), двух (λ_2, λ_3) и трех ($\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3$) длинах волн оптического зондирования от погрешности $\delta\epsilon$ измерений $\epsilon(\lambda)$.

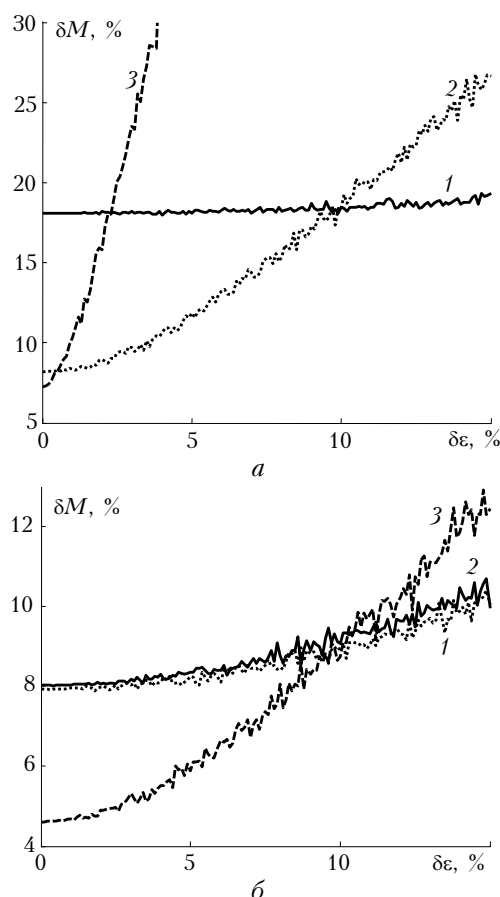


Рис. 3. Зависимости средней по выборке погрешности δM восстановления массовой концентрации пыли от погрешности $\delta\epsilon$ измерений $\epsilon(\lambda)$ на длинах волн оптического зондирования: 1 — $\lambda = 0,532$ мкм (а) и 2,14 мкм (б); 2 — $\lambda = 0,532$; 1,064 мкм (а) и 0,532; 2,14 мкм (б); 3 — $\lambda = 0,355$; 0,532; 1,064 мкм (а) и 0,532; 1,56; 2,14 мкм (б)

Видно, что решение обратной задачи (1) [в виде явной статистической функции (3)], соответствующее трехчастотным измерениям $\varepsilon(\lambda)$, является сильно чувствительным к $\delta\varepsilon$, что не позволяет рекомендовать их для практического использования. Так, уже при $\delta\varepsilon = 3\%$ погрешность восстановления M превышает соответствующую погрешность для одночастотных измерений $\varepsilon(\lambda_2)$, что лишает смысла проведение трехчастотного зондирования.

Более устойчивым к погрешностям $\delta\varepsilon$ является решение обратной задачи (1), соответствующее измерениям $\varepsilon(\lambda)$ на двух длинах волн. Как видно из рис. 3, *a*, при $\delta\varepsilon < 10\%$ результаты восстановления M с использованием регрессии (3), соответствующей λ_2 и λ_3 , превосходят по точности аналогичные результаты, получаемые на основе (4). Однако, судя по данным, представленным в табл. 2, влияние формы частиц на $\varepsilon(\lambda_3)$ может достигать 18%, что в совокупности с погрешностями оптических измерений приведет только к ухудшению точности восстановления M по сравнению с использованием для этой цели одночастотных измерений $\varepsilon(\lambda_2)$.

Рассмотрим, как изменится точность восстановления M с привлечением дополнительных длин волн оптического зондирования — $\lambda_4 = 1,25$; $\lambda_5 = 1,56$; $\lambda_6 = 1,67$; $\lambda_7 = 2,14$ мкм. Для оценки информативности и выбора оптимальных (в плане точности восстановления M) длин волн важно проанализировать степень взаимозависимости измеряемых спектральных значений $\varepsilon(\lambda_i)$ ($i = 1, \dots, 7$). Это означает, что необходимо определить количество независимых компонент, содержащихся в вариациях спектра коэффициента ослабления цементной пыли, обусловленных изменениями микрофизических характеристик пыли. Такой анализ может быть проведен на основе рассмотрения собственных чисел нормированной ковариационной матрицы

$$S(\lambda_i, \lambda_j) = \frac{1}{\sigma(\lambda_i)\sigma(\lambda_j)} \sum_{k=1}^K (\varepsilon^k(\lambda_i) - \overline{\varepsilon(\lambda_i)})(\varepsilon^k(\lambda_j) - \overline{\varepsilon(\lambda_j)}), \quad (5)$$

где k — номер реализации оптических и микрофизических характеристик цементной пыли; $K = 10^3$ — полное число реализаций; $\overline{\varepsilon(\lambda_i)}$ и $\sigma(\lambda_i)$ — среднее значение и дисперсия коэффициента ослабления на длине волны λ_i ($i = 1, \dots, 7$). На рис. 4, *a* приведены элементы первой строки ковариационной матрицы (5) — $S(\lambda_1, \lambda_j)$, $j = 1, \dots, 7$.

Высокий уровень корреляции между значениями $\varepsilon(\lambda)$ свидетельствует о том, что вариации спектральной зависимости коэффициента ослабления цементной пыли могут быть аппроксимированы линейной функцией небольшого числа случайных переменных — коэффициентов разложения по системе собственных векторов ковариационной матрицы (5), соответствующих наибольшему собственным числам [23]. Так, на первое собственное число приходится 97,04% суммарной дисперсии $\varepsilon(\lambda)$, на первые два — 99,50%, на первые три — 99,96%.

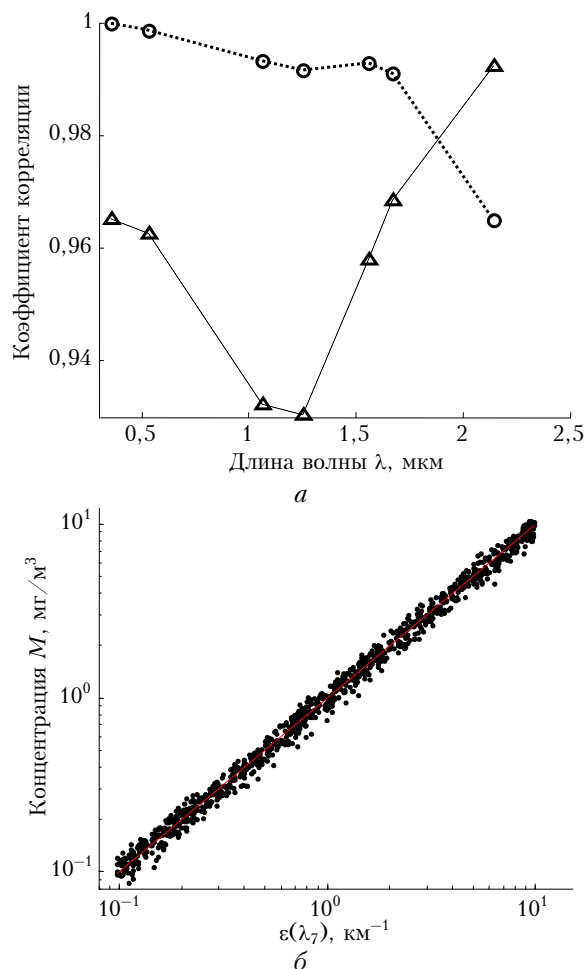


Рис. 4. Оптико-микроструктурные корреляции цементной пыли: *a* — элементы ковариационной матрицы $S(\lambda_1, \lambda_j)$, $j = 1, \dots, 7$ (кружки) и коэффициент корреляции между $\varepsilon(\lambda)$ и M (треугольники); *b* — корреляционная связь между $\varepsilon(\lambda_7)$ и M

Таким образом, количество независимых компонент в спектрах $\varepsilon(\lambda)$ относительно не велико и измерение $\varepsilon(\lambda)$ на двух–трех длинах волн позволяет извлечь большую часть принципиально доступной информации о микрофизических характеристиках пыли, содержащейся в спектрах $\varepsilon(\lambda)$. Причем коэффициент разложения $\varepsilon(\lambda)$ по первому собственному вектору тесно связан с массовой концентрацией пыли (коэффициент корреляции составляет 0,96), т.е. концентрация в первом приближении может быть восстановлена с использованием коэффициента ослабления на одной длине волны. Для выбора длины волны оптического зондирования, являющейся наиболее информативной относительно M , проведен расчет спектральной зависимости коэффициента корреляции между $\varepsilon(\lambda)$ и M (рис. 4, *a*). Его немонотонный спектральный ход обусловлен осциллирующей зависимостью фактора эффективности ослабления $Q(x, m)$ в (1) от параметра $x = 2\pi r/\lambda$. Высокие значения коэффициента корреляции при $\lambda = \lambda_7$ объясняются попаданием максимума кривой $Q(x, m)$, соответствующей λ_7 ,

в диапазон радиусов частиц от 0,9 до 1,15 мкм. На этот диапазон приходится и максимум объемного распределения частиц, что и обуславливает высокую чувствительность $\epsilon(\lambda_7)$ к M . Корреляционная связь между $\epsilon(\lambda)$ к M приведена на рис. 4, б. Данная связь может быть аппроксимирована полиномом вида (3) со следующими коэффициентами:

$$\ln M = 0,1571 + 1,0097 \ln \epsilon(\lambda_7) - 0,0041 [\ln \epsilon(\lambda_7)]^2 - 0,0051 [\ln \epsilon(\lambda_7)]^3. \quad (6)$$

Погрешность восстановления M с использованием (6) составляет 8,2%.

Рассмотрим также результаты восстановления M из двух- и трехчастотных измерений $\epsilon(\lambda)$. Оптимальные длины волн оптического зондирования определяются точностью восстановления M и устойчивостью соответствующего им решения обратной задачи (1) к погрешностям измерения $\epsilon(\lambda)$. Выбор оптимальных λ производился путем компьютерного перебора всех возможных комбинаций из семи вышеуказанных λ и вычисления погрешностей восстановления M с использованием регрессий (3) при $\delta\epsilon = 10\%$. В результате получены оптимальные наборы из двух и трех длин волн: (λ_2, λ_7) и $(\lambda_2, \lambda_5, \lambda_7)$. Такой результат является вполне понятным, если учесть, что необходимым условием устойчивого решения обратной задачи (1) является отсутствие тесной корреляции между спектральными значениями $\epsilon(\lambda)$. Как видно из рис. 4, а, длины волн λ_2 (или λ_1) и λ_7 соответствуют наименьшему значению коэффициента парной корреляции между спектральными значениями $\epsilon(\lambda)$. Аналогично, второй набор λ соответствует минимуму коэффициента множественной корреляции между спектральными значениями $\epsilon(\lambda)$.

На рис. 3, б приведены зависимости погрешностей восстановления M с использованием регрессий (3), соответствующие оптимальным λ . Видно, что двухчастотные измерения $\epsilon(\lambda)$ практически не улучшают точности восстановления M по сравнению с измерением только $\epsilon(\lambda_7)$. Данное обстоятельство, по-видимому, обусловлено влиянием используемой в расчетах модели вариации спектрального хода КПП пыли, а именно большим различием и слабой корреляцией значений КПП оксида кальция $m_{CaO}(\lambda_{0,66})$ для λ_2 и λ_7 . Уменьшить неопределенность спектрального хода КПП пыли, а тем самым повысить точность восстановления M можно с использованием измерений $\epsilon(\lambda)$ на длинах волн λ_2 , λ_5 и λ_7 (см. рис. 3, б). При этом погрешность оптических измерений должна быть меньше 10%. Однако следует иметь в виду, что помимо погрешности оптических измерений на точность восстановления M будет также влиять и несоответствие формы частиц цементной пыли модели сферических частиц, используемой в расчетах $\epsilon(\lambda)$ при решении обратной задачи. Причем, как показывает анализ данных табл. 2, соответствующих λ_2 , λ_5 и λ_7 , замена несферических частиц эквивалентными по

объему сферами наиболее существенно сказывается на значениях $\epsilon(\lambda_5)$ (для частиц с параметром формы до 2,0 отличия в значениях $\epsilon(\lambda_5)$ могут превышать 20%), что лишает трехчастотные измерения $\epsilon(\lambda)$ преимуществ в точности восстановления M (см. рис. 3, б). В то же время влияние формы частиц на $\epsilon(\lambda_7)$ минимально. Таким образом, с учетом погрешностей измерения $\epsilon(\lambda)$ и влияния формы частиц на точность расчета $\epsilon(\lambda)$, можно заключить, что установленная корреляция между $\epsilon(\lambda_7)$ и M является наиболее оптимальным решением обратной задачи восстановления M из результатов оптического зондирования.

Заключение

Анализ результатов восстановления массовой концентрации цементной пыли M из данных оптического зондирования на длинах волн Nd:YAG-лазера с генерацией третьей гармоники, проведенный с учетом влияния погрешностей оптических измерений и формы пылевых частиц на точность решения обратной задачи, выявил предпочтительность использования статистической связи между M и $\epsilon(\lambda)$ при $\lambda = 0,532$ мкм. Полученное для аппроксимации этой связи уравнение (4) дает возможность восстанавливать M с погрешностью ~18%, что позволяет уверенно выявлять превышение предельно допустимых концентраций пыли, а значит, полученное уравнение может использоваться для решения задач санитарно-гигиенических и эпидемиологических служб.

С помощью метода главных компонент показано, что использование первых двух собственных векторов нормированной ковариационной матрицы (5) позволяет с высокой точностью аппроксимировать любую реализацию $\epsilon(\lambda)$ (на первые два собственных числа приходится более 99% суммарной дисперсии). Из данного факта можно заключить, что измерение $\epsilon(\lambda)$ на двух длинах волн позволяет извлечь большую часть принципиально доступной информации о микрофизических параметрах пыли, содержащейся в спектрах $\epsilon(\lambda)$. Причем для восстановления M с погрешностью ~8% достаточно измерения $\epsilon(\lambda)$ при $\lambda = 2,14$ мкм, соответствующей наибольшей корреляции между $\epsilon(\lambda)$ и M .

На основе регрессионного подхода к решению обратных задач выбраны наборы из двух ($\lambda = 0,532$; 2,14 мкм) и трех ($\lambda = 0,532$; 1,56; 2,14 мкм) длин волн оптического зондирования, оптимальные в плане их информативности относительно M и устойчивости соответствующих им решений обратной задачи к погрешностям оптических измерений. Получены зависимости погрешностей восстановления M из значений коэффициента ослабления на оптимальных длинах волн от погрешности оптических измерений $\delta\epsilon$. Показано, что при $\delta\epsilon < 10\%$ уравнение регрессий (3), соответствующее $\lambda = 0,532$; 1,56; 2,14 мкм, позволяет улучшить точность восстановления M по сравнению с использованием парной корреляции между ϵ ($\lambda = 2,14$ мкм) и M , однако выигрыш

в точности не существен (~2–3%) и, кроме того, требуется более детальный учет реальной формы пылевых частиц.

Таким образом, установленная тесная корреляция между массовой концентрацией цементной пыли аэрозоля и ее коэффициентом ослабления на длине волны 2,14 мкм совместно с двухугловым методом определения оптической толщины аэрозольного шлейфа [3, 4] и алгоритмом безпорогового определения границ шлейфа на трассе зондирования [5] могут служить основой для эффективной методики оперативного определения массовой концентрации пыли в выбросах предприятий по производству цемента.

1. *Клименко А.П., Королев В.И., Шевцов В.И.* Непрерывный контроль концентрации пыли. Киев: Техника, 1980. 181 с.
2. *Лапшин А.Б.* Технология обеспыливания в производстве цемента. Новороссийск: Стромэкология, 1995. 150 с.
3. *Хмелевцов С.С., Коршунов В.А., Никитин В.М., Кобелев В.В.* Многоволновое и поляризационное лидарное зондирование аэрозольных промышленных выбросов // *Оптика атмосфер. и океана.* 2005. Т. 18, № 3. С. 232–237.
4. *Кугейко М.М., Лысенко С.А., Колчинский С.М.* Двухлучевой лазерно-локационный метод определения оптических характеристик выбросов из труб промышленных предприятий // *Вестн. БГУ.* Сер. 1. 2009. № 2. С. 14–19.
5. *Кугейко М.М., Кваченко С.В.* О выделении границ неоднородностей в лазерно-локационных исследованиях // *Вестн. БГУ.* Сер. 1. 2007. № 2. С. 22–26.
6. *Зуев В.Е., Зуев В.В.* Дистанционное оптическое зондирование атмосферы. СПб.: Гидрометеиздат, 1992. 232 с.
7. *Зуев В.Е., Наац И.Э.* Обратные задачи оптики атмосферы. Л.: Гидрометеиздат, 1990. 286 с.
8. *Mishchenko M.I., Travis L.D., Lacis A.A.* Scattering, absorption, and emission of light by small particles. New York: NASA Goddard Institute for space studies, 2004. 445 p.
9. *Борен К., Хаффман Д.* Поглощение и рассеяние света малыми частицами / Пер. с англ. М.: Мир, 1986. 660 с.
10. *Чайковский А.П., Иванов А.П., Балин Ю.С., Ельников А.В., Тулинов Г.Ф., Плюснин И.И., Букин О.А., Чен Б.Б.* Лидарная сеть CIS-LiNet для мониторинга аэрозоля и озона: методология и аппаратура // *Оптика атмосфер. и океана.* 2005. Т. 18, № 12. С. 1066–1072.
11. *Ельников А.В., Бурлаков В.Д., Долгий С.И., Зуев В.В., Невзоров А.В., Плюснин И.И., Сысоев С.М., Бушмелева К.И., Черный М.С.* Лидарная система для зондирования аэрозоля в г. Сургут в рамках проекта CIS-LiNet // *Оптика атмосфер. и океана.* 2006. Т. 19, № 11. С. 982–985.
12. *Самохвалов И.В., Бобровников С.М., Гейко П.П., Ельников А.В., Кауль Б.В.* Развитие высотного лидара Томского государственного университета как уникального комплекса для мониторинга атмосферы // *Оптика атмосфер. и океана.* 2006. Т. 19, № 11. С. 995–999.
13. *Лысенко С.А., Кугейко М.М.* Регрессионный подход к анализу информативности и интерпретации данных аэрозольных оптических измерений // *Ж. прикл. спектроскопии.* 2009. Т. 76, № 6. С. 876–883.
14. *Дианов Е.М.* Волоконные лазеры // *Успехи физ. наук.* 2004. Т. 174, № 10. С. 1139–1142.
15. *Матвиенко Г.Г., Веретенников В.В., Креков Г.М., Крекова М.М.* Дистанционное зондирование атмосферных аэрозолей с использованием фемтосекундного лидара белого света. I. Численное моделирование // *Оптика атмосфер. и океана.* 2003. Т. 16, № 12. С. 1107–1114.
16. *Хоботова Э.Б., Уханева М.И., Семенович Т.А., Махова О.Г., Пантелеева Н.М.* Определение химического и дисперсного составов цементной пыли // *Коммунальное хозяйство городов: Науч.-техн. сборник.* 2004. № 60. С. 119–123.
17. *Taylor H.F.W.* Cement Chemistry. L.: Academic Press, 1990. 475 p.
18. *Global quality management solutions for the laboratory.* Edition 2008/2009. (каталог на сайте www.lgcstandards.com)
19. *Зуев В.Е., Креков Г.М.* Оптические модели атмосферы. Л.: Гидрометеиздат, 1986. 256 с.
20. *Rothman L.S., Rinsland C.P., Goldman A., Massie S.T., Edwards D.P., Flaud J.-M., Perrin A., Camy-Peyret C., Dana V., Mandin J.-Y., Schroeder J., Mccann A., Gamache R.-R., Watson R.B., Yoshino K., Chance K.V., Jucks K.W., Brown L.R., Nemtchinov V., Varanasi P.* The HITRAN molecular spectroscopic database and hawks (Hitran Atmospheric Workstation): 1996 EDITION // *J. Quant. Spectrosc. and Radiat. Transfer.* 1998. V. 60, N 5. P. 665–710.
21. *URL:* <http://refractiveindex.info>
22. *Liu C.J., Sieckmann E.F.* Refractive index of calcium Oxide // *J. Appl. Phys.* 1966. V. 37, N 6. P. 2450–2452.
23. *URL:* <http://www.wikipedia.org>

S.A. Lisenko, M.M. Kugeiko. Retrieval of the mass concentration of dust in industrial emissions from data of optical sensing.

A statistical-microphysical model of the dust, emitted into the atmosphere by cement enterprises, is developed, which allows for possible variations of the chemical composition of particles, their concentration and size distribution. An ensemble of microphysical parameters of dust was simulated and extinction coefficient was calculated at wavelengths of 0.355, 0.532, 1.064, 1.25, 1.56, 1.67, and 2.14 μm from the windows of transparency of exhaust gas in cement plants. On the basis of multiple regressions method the errors of retrieval of mass concentration of dust from the data of optical sensing at wavelengths of Nd: YAG-laser with third harmonic generation, was estimated. The sets of two (0.532, 2.14 μm) and three (0.532, 1.56, 2.14 μm) wavelengths of optical sensing are established, which are optimal in terms of their information about the concentration, stability of inverse problem's solution to errors of optical measurements and to the effect of the shape of dust particles. Dependences of error in retrieval of concentration from extinction coefficient at optimal wavelengths on error of optical measurements were calculated. The close correlation between the concentration of dust and its extinction coefficient at wavelength of 2.14 μm was established, which allows us to extract the concentration from data of fixed-frequency optical sensing with an error of 8%.