

文章编号: 0258-7025(2007)03-0411-06

反常衍射近似在测量圆柱形粒子粒径分布中的应用

唐红, 孙晓刚, 原桂彬

(哈尔滨工业大学自动化测试与控制系, 黑龙江 哈尔滨 150001)

摘要 在光全散射法颗粒粒径测量中, 基于米氏(Mie)理论的计算方法只能求出均匀球形粒子的消光系数, 而且计算复杂。通过反常衍射近似(ADA)代替米消光系数, 可以简化粒径分布的反演过程。对使用反常衍射近似方法计算圆柱形粒子消光系数的可行性以及限制条件进行深入的研究, 并在非独立模式算法下, 采用遗传算法反演粒径分布。仿真结果表明, 当粒子的相对折射率在一定范围内时, 利用反常衍射近似反演圆柱形粒子的粒径分布是完全可行的, 反演结果稳定、可靠。对消光值测量结果加入3%相对误差时, 反演误差为5.7%。该方法具有简单、直观、计算速度快等优点, 适合颗粒粒径的在线测量。

关键词 散射; 粒径测量; 光全散射; 粒径分布; 反常衍射近似; 圆柱形粒子

中图分类号 TH 74; TN 247 文献标识码 A

Application on Circular Cylinder Particle Size Distribution Based on Anomalous Diffraction Approximation

TANG Hong, SUN Xiao-gang, YUAN Gui-bin

(Department of Automation Measurement & Control, Harbin Institute of Technology, Harbin, Heilongjiang 150001, China)

Abstract In total light scattering particle sizing technique, the calculation of extinction efficiency based on Mie theory can only be applied to the homogeneous spherical particles, what is important is that the Mie theory is expensive in both time and resources. Using the anomalous diffraction approximation (ADA) instead of Mie extinction efficiency can simplify the inversion of particle size distribution. The feasibility and limitations of using the anomalous diffraction approximation for calculating the extinction efficiency of circular cylinder particles are investigated. The genetic algorithm is used to inverse the particle size distribution under the dependent model algorithm. Simulation experiments illustrate that it is feasible to use the anomalous diffraction approximation to inverse the circular cylinder particle size distribution in the total light scattering technique, and the inversion results are steady and reliable. The inversion error is 5.7% when 3% relative error is put in the extinction measurement values. The method has advantages of simplicity, rapidity, and suitability for in-line particle size measurement.

Key words scattering; particle sizing; total light scattering; particle size distribution; anomalous diffraction approximation; circular cylinder particle

1 引言

在光全散射法粒径测量中, 消光系数的计算是个关键问题。应用米氏(Mie)方法能够得到粒子散射的解析解和精确的数值结果, 易于进行定性和定

量分析。但要求粒子严格呈球形, 而且计算繁琐, 使得粒径反演占用大量的时间和内存资源, 显然满足不了快速在线测量的要求。对于非球形粒子, 米氏理论不再准确地反映这类粒子的散射特性, 但是在真实测量的场合, 被测微粒往往不是理想的球体。

收稿日期: 2006-08-21; 收到修改稿日期: 2006-10-23

基金项目: 国家自然科学基金(50336010)资助项目。

作者简介: 唐红(1980—), 女, 辽宁锦州人, 博士研究生, 主要从事粒度测量和热物性测试的研究。

E-mail: tangbenben@126.com

导师简介: 孙晓刚(1967—), 男, 黑龙江人, 教授, 博士生导师, 主要从事热物性研究。E-mail: sxg@hit.edu.cn

研究表明,以球体为模型的反演结果因形体的影响与实际测量结果存在较大的差异,从而降低了测量的精度和准确性。如 T 矩阵法、有限差分域法等,计算方法极其复杂。反常衍射近似(ADA)恰恰能够满足上述要求,具有原理简单,计算速度快等优点,用于计算球形和非球形粒子的消光系数。

粒子的形状具有多样性,必须选择恰当的模型来模拟真实的粒子形状。较为常见的非球形模型有旋转椭球和圆柱。在大气中的气溶胶以及纺织纤维物品中,圆柱形是一种非常普遍的粒子形状。本文采用反常衍射近似计算圆柱形粒子的消光系数,在此基础上,利用基本遗传算法反演粒径分布,并对该方法进行了仿真实验验证。

2 圆柱形粒子在反常衍射近似下的消光系数

反常衍射近似^[1]是一种计算粒子消光系数和吸收系数的有效方法,理论基础是非涅耳衍射理论。它要求粒子满足两个条件: $x = 2\pi a/\lambda \gg 1$, $|m-1| \ll 1$, 其中, x 为有效尺度参数, λ 为入射光波长, a 为粒子的因次,对于球形粒子, a 为粒子半径,对于圆柱形粒子, a 为圆柱底面半径, m 表示粒子相对于周围介质的折射率。在上述两个条件限制下,通过粒子的散射光线传播方向不发生改变,只是相位上引入一个延时,因此粒子的消光主要是由穿过粒子的光线和未穿过粒子的光线相干涉引起的^[1]。

根据反常衍射理论,前向散射振幅函数为^[2]

$$S(0) = \frac{k^2}{2\pi_p} \iint [1 - \exp(-i\phi)] dP, \quad (1)$$

式中 $k = 2\pi/\lambda$ 为真空中的波数; P 为与入射光方向垂直的粒子投影面积; ϕ 为相位延时, $\phi = kl(m-1)$, $m = m_r - im_i$ 为相对介质的复折射率, l 为光线在粒子中传播的距离。

利用光学定理,粒子的消光系数可以表示为

$$Q_{ad} = \frac{4\pi}{k^2 P} \text{Re}[S(0)], \quad (2)$$

式中 Re 表示 $S(0)$ 的实部。

无限长圆柱形粒子($a/h \ll 1$)的消光系数^[1]

$$Q_{ad} = \pi \text{Re}[H_1(\rho) + iJ_1(\rho)], \quad (3)$$

式中 $\rho = 2x(m-1)/\sin\theta = 4a\pi(m-1)/\sin\theta$, θ 为入射光线与圆柱轴对称轴 z 轴的夹角。当 $\theta = 90^\circ$, 入射光线垂直于圆柱 z 轴; $H_1(\rho)$, $J_1(\rho)$ 为第一类一阶斯

特鲁维(struve)函数和贝塞耳(Bessel)函数。

图 1(a), (b) 为 $\theta = 90^\circ$, 在不同折射率条件下根据式(3) 计算出的消光系数与入射光线相位延时 $2x(m_r - 1)$ 的关系曲线。与 T 矩阵方法不同, 反常衍射近似由标量电磁场理论推导而出, 它与入射光的偏振状态无关。从图中可以看出, 由反常衍射近似计算的消光系数曲线包含了正确的几何极限(当 $x \rightarrow \infty$, $Q_{ad} \rightarrow 2$, 当 $x \rightarrow 0$, $Q_{ad} \rightarrow 0$), 并准确地反映了消光系数极值的位置, 与真值误差很小。增加折射率实部, 消光系数的纹波加强, 振荡频率也随之增加; 增加折射率虚部, 消光系数的纹波减小, 振荡频率也随之减弱。随着折射率 m 的增大, 由反常衍射近似计算的消光系数和真值之间的误差增大。这主要是由于较大的相对折射率不满足原始反常衍射近似对粒子折射率的要求。研究表明, 尽管反常衍射近似准确地反映了消光系数极值的位置, 但是近似结果比精确值偏低, 这种偏离主要是由于反常衍射近似忽略边界效应的结果。所以, 对于相对折射率较大或尺寸远大于入射光波长的粒子, 不能把它的边界看成明显有别于周围介质, 应当考虑粒子曲率对入射光的影响。琼斯(Jones)给出了边界效应对消光系数的影响的数学表达式^[3]

$$Q_{edge} = \frac{c_0}{(x \sin\theta)^{2/3}}, \quad (4)$$

$$Q_{ext} = Q_{ad} + Q_{edge}. \quad (5)$$

图 1(c) 给出了当 $\theta = 90^\circ$, $m = 2 - i0.1$, 考虑边界效应之后, 根据式(5) 计算的消光系数曲线。在考虑边界效应之后, 反常衍射近似与真值吻合得非常好。边界项的使用降低了反常衍射近似对折射率严格限制的要求。图 1(d) 为 $\theta = 60^\circ, 30^\circ$, $m = 1.33 - i0.01$ 时, 根据式(5) 计算的消光系数曲线。当光线倾斜入射时, 无限长圆柱粒子不再像球形粒子, 对不同方向的入射光, 其消光系数也随之改变。

由于粒子在空间中的姿态不是固定的, 在入射光方向不变的情况下, 它们的夹角 θ 也是随时变化的。所以无限长圆柱粒子在任意方向上的消光系数可表示为

$$\bar{Q}_{ad} = \frac{\int_0^{\pi/2} Q_{ad} P \sin\theta d\theta}{\int_0^{\pi/2} P \sin\theta d\theta}, \quad (6)$$

$$\bar{Q}_{edge} = \frac{1.159595c_0}{x^{2/3} + \pi/(4|m-1|)}, \quad (7)$$

式中 $c_0 = 0.996193$,

$$\bar{Q}_{ext} = \bar{Q}_{ad} + \bar{Q}_{edge}. \quad (8)$$

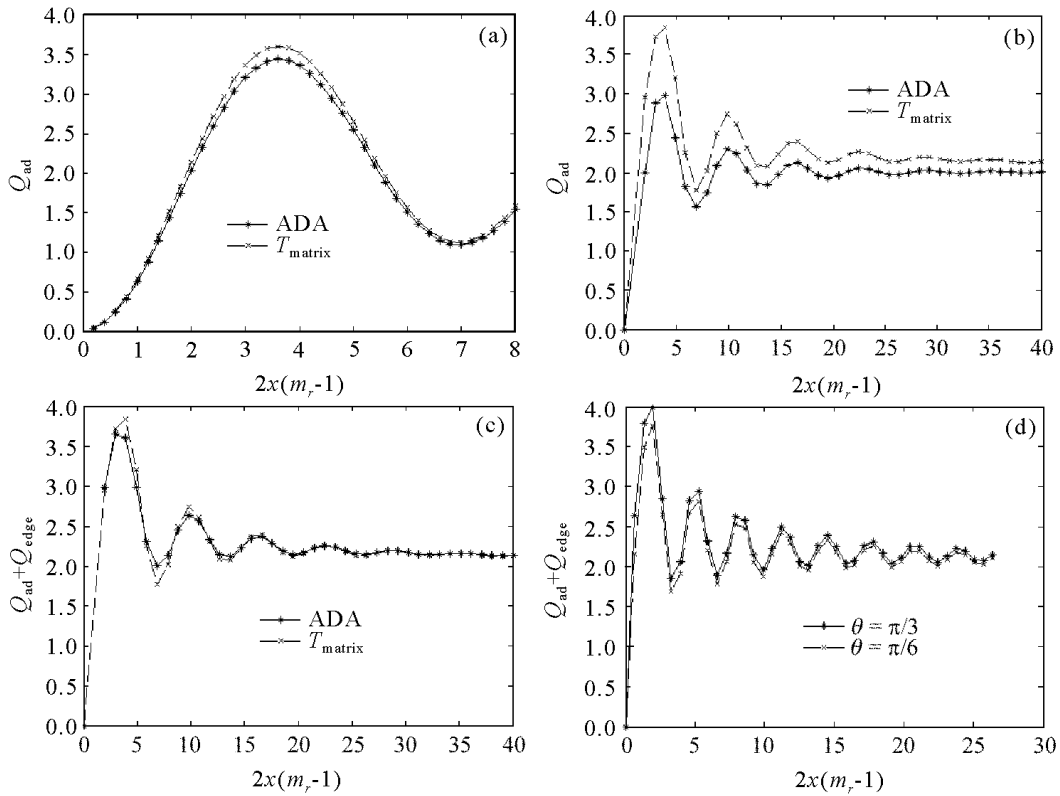


图 1 无限长圆柱粒子的消光系数

(a) $m = 1.1 - i0$, TM 模式; (b) $m = 2 - i0.1$, TE 模式;
(c) $m = 2 - i0.1$, TM 模式; (d) $m = 1.33 - i0.01$, TM 模式

Fig.1 Extinction efficiency of infinite circular cylinder particle

(a) $m = 1.1 - i0$, TM mode; (b) $m = 2 - i0.1$, TE mode;
(c) $m = 2 - i.10$, TM mode; (d) $m = 1.33 - i0.01$, TM mode

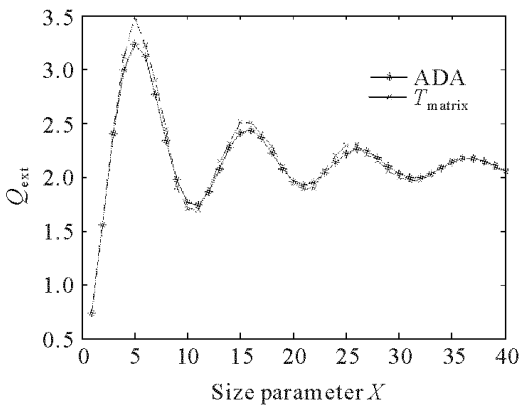


图 2 任意方向无限长圆柱粒子的消光系数

Fig.2 Extinction efficiency of random orientated infinite circular cylinder particle

图 2 为 $m = 1.3 - i0.01$ 时,根据式(8)计算的无限长圆柱粒子在任意方向上的消光系数曲线。积分之后的反常衍射近似曲线与真值基本一致,而且随着尺寸参数 x 的增大,反常衍射近似与真值之间的误差逐渐减小,最大误差出现在消光系数的主极大位置。

图 3 为有限长圆柱粒子的几何示意图。有限长

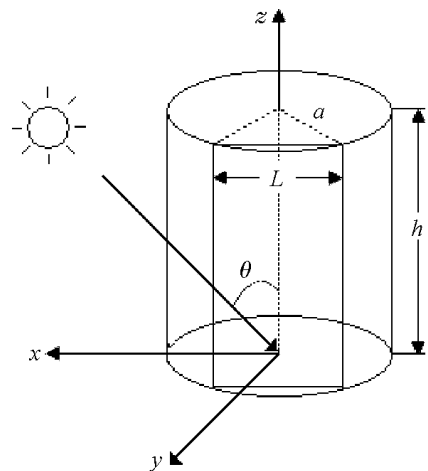


图 3 有限长圆柱粒子的几何示意图

Fig.3 Geometry of a finite circular cylinder

圆柱形粒子在一个固定方向 θ 上的消光系数以及边界项可以根据式(9)和式(10)计算求出^[4]

$$\bar{Q}_{ad} = 2\text{Re} \left\{ \int_0^{\pi/2} \left[1 - \exp\left(-i\rho \frac{\cos\phi}{\sin\theta}\right) \right] \cos\phi d\phi \right\}, \tag{9}$$

式中 $\rho = 2x(m - 1) = 2ka(m - 1)$ 。

$$Q_{\text{edge}} = \frac{4c_0 \int_0^{\pi/2} a/h [(\cos^2 \theta \cos^2 \chi + \sin^2 \chi)^{1/2} (\cos^2 \chi / \sin^2 \theta + \sin^2 \chi)^{1/2}] d\chi + 2c_0}{(ka \sin \theta)^{2/3} [2 + \pi(a/h) \cot \theta]} \quad (10)$$

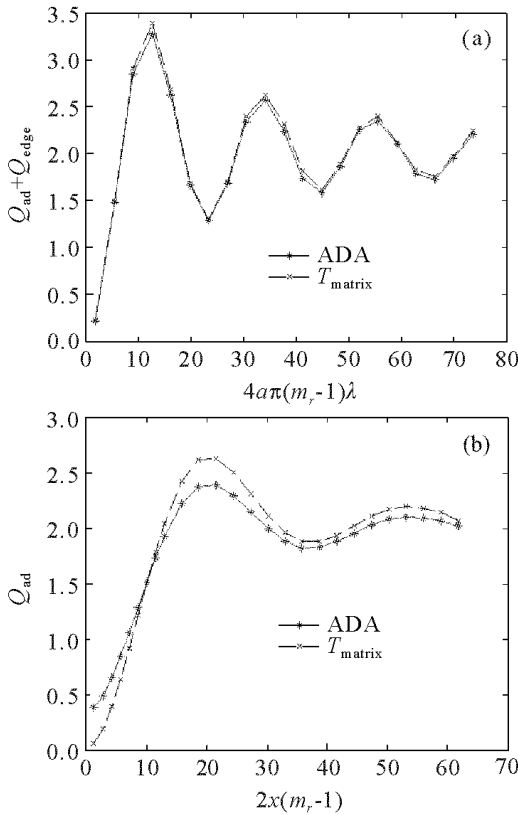


图 4 有限长圆柱粒子在不同入射方向下的消光系数
(a) 法向入射, $m = 1.3 - i0.01, \theta = 90^\circ$;

(b) 任意方向入射, $m = 1.1 - i0.01, a/h = 1/2$

Fig. 4 Extinction efficiency of finite circular cylinder particle for different incidence

(a) perpendicular incidence, $m = 1.3 - i0.01, \theta = 90^\circ$;

(b) random orientated, $m = 1.1 - i0.01, a/h = 1/2$

图 4(a)给出了在法向入射时 ($\theta = 90^\circ$) 有限长圆柱粒子的消光系数曲线。在固定方向上的 Q_{ad} 仅与圆柱半径 a 有关,与圆柱高 h 无关。但是任意方向下的有限长圆柱粒子的 Q_{ad} 与 a, h 有关。图 4(b)为在任意入射方向下有限长圆柱粒子 ($a/h = 1/2$) 的消光系数。当粒子相对周围介质的折射率趋近于 1 时,无需考虑粒子的边界效应,所得近似结果与真值非常接近。

从上面的仿真结果可以看出,由反常衍射近似计算的消光系数与理论值基本吻合,这种差别对粒径反演的结果影响会更小,证明反常衍射近似是一种很有效的近似简化方法。在考虑边界效应后,减小了反常衍射近似对粒子尺寸以及折射率的限制,从而提高反常衍射近似方法的应用范围。

3 圆柱形粒子粒径分布反演

非球形粒子一般需要两个或两个以上的参数来表征其粒径分布特性,而目前非球形粒子的分布还没有一个确定的表达式。本文采用 $f(a, r)$ 表示圆柱形粒子粒径分布函数,即单位体积内具有底面半径 a 以及高 h 与 a 之比 $r = h/a$ 的粒子体积频率百分比。对于无限长圆柱粒子,颗粒系中 r 的变化忽略不计,只需底面半径 a 一个参数来表征粒径分布。依据朗伯-比尔(Lambert-Beer)定律,可以得出^[5,6]

$$\ln \frac{I_k}{I_{0k}} = -\tau \times L = -LN \int_{a_{\min}}^{a_{\max}} \int_{r_{\min}}^{r_{\max}} Q_{\text{ext}}(\lambda_k, m, a, r) \times P(a, r) \times f(a, r) / V(a, r) da dr, \quad (11)$$

式中 $Q_{\text{ext}}(\lambda_k, m, a, r)$ 为粒子在任意方向上的消光系数,这里通过反常衍射近似方法进行计算, $P(a, r)$ 为粒子平均投影面积,如果颗粒系中的粒子排列整齐,方向大致统一, $Q_{\text{ext}}(\lambda_k, m, a, r)$ 也可看成是在某个固定方向上的消光系数,对应的 $P(a, r)$ 应该为在此方向上的投影面积^[7]。 I_k/I_{0k} 为第 k 个波长下的消光值, $V(a, r)$ 为粒子体积, N 为颗粒系粒子总数, L 为被测颗粒系的厚度。

光全散射颗粒粒径测量方法分为独立模式算法和非独立模式算法^[8]。在实际测量中,许多被测颗粒的尺寸常常符合某种已知的分布函数,这时采用非独立模式算法求解粒径分布函数则更为简便。为了描述联合分布函数 $f(a, r)$,这里假定变量 a, r 彼此独立,即 $f(a, r) = f_a(a) f_r(r)$,并且 a, r 服从同一分布函数。实际上,这种假设可以通过电子透镜实验来证实。

以颗粒系粒径服从 $R-R$ 分布函数为例,阐述在非独立模式下如何利用遗传算法反演圆柱形粒子的粒径分布函数。 $R-R$ 分布函数形式为^[9]

$$f(D) = \frac{\sigma}{D} \times \left[\frac{D}{\bar{D}} \right]^{\sigma-1} \times \exp \left[- \left[\frac{D}{\bar{D}} \right]^\sigma \right], \quad (12)$$

式中 \bar{D} 为特征尺寸参数,单位为 μm , σ 为无因次的分布参数, σ 值越大,颗粒的分布越窄。

通过优化算法可以反演出粒径分布参数 ($\bar{D}_a, \sigma_a, \bar{D}_r, \sigma_r$)。由于反演的参数比较多,用一般的优化算法如最小二乘法, Powell 法等,若初始起点选择

得不好,很容易陷入局部极小值。而遗传算法是一种基于生物进化论和自然遗传学说的自适应全局优化算法,通过选择、交叉、变异等遗传操作实现全局优化,具有较强的搜索能力以及较好的稳定性。

表 1 基本遗传算法的参数设置

Table 1 Settings used in simple GA inversion

Parameter	Setting
Population size	50
Scaling function	Proportional
Selection function	Stochastic uniform
Elite count	2
Crossover fraction	0.6
Mutation function	Adaptive feasible
Crossover function	Two points
Generations	200

表 1 给出了基本遗传算法的参数设置。在非独立模式下,遗传算法的目标函数较为简单,采用基本遗传算法即可得到全局最优解。图 5(a)为有限长圆柱粒子的粒径分布反演结果。假定被测颗粒系 h 与 a 之比 r 仅有 1, 1.1, 2, 2.5 四种取值,半径 a 在 $0.1 \sim 5 \mu\text{m}$ 范围内,服从 $(3, 3.2, 1.6, 4) R-R$ 分布, $m = 1.1 - i0.01$, 颗粒系中的粒子取向各不相同。由于要对 $(\bar{D}_a, \sigma_a, \bar{D}_r, \sigma_r)$ 四个分布参数进行反演,需要计算有限长圆柱粒子在 5 个波长下任意方向上的消光系数。5 个光波由激光器产生。经过遗传算法得到的反演结果为 $(3.0457, 3.3556, 1.4413, 3.6975)$,这是在理想情况下反演的结果。实际测量中会不可避免地引入误差,为了验证反常衍射近似方法反演的可靠性,模拟计算了测量误差对反演结果的影响。图 5(a)同时给出了在第 1, 3 两波长处对消光值加上 3% 的相对误差后得出的粒径分布曲线,粒径分布参数的反演结果为 $(2.9138, 3.5478, 1.3782, 3.3745)$,测量误差为 5.7%。以上计算都是在 Athlon3000 上完成的,非独立模式下,采用遗传算法的反演时间在 2 s 以内。可以看出,采用文中提出的方法,反演结果接近真值,很好地反映实际粒径分布,计算速度快,在测量误差达 3% 时仍有较高的精度。图 5(b)给出了假定颗粒系均为 $r = 2$,底面半径 a 服从 $(3, 3.2) R-R$ 分布的有限长圆柱粒子,采用等体积球形以及无限长圆柱两种模型的反演结果,并且给出了在第 2 个波长处对消光值加上 3% 的相对误差后得出的分布曲线。如图所示,若被测颗粒系为圆柱形粒子,使用有限长或无限长圆柱粒

子模型最接近真实情况;若采用等体积球来等效,则会产生很大的误差。因此在不明确圆柱粒子的高与底面半径比的情况下,可以把粒子看成是无限长圆柱,这样既不会产生过大误差,也减少了反演参数。

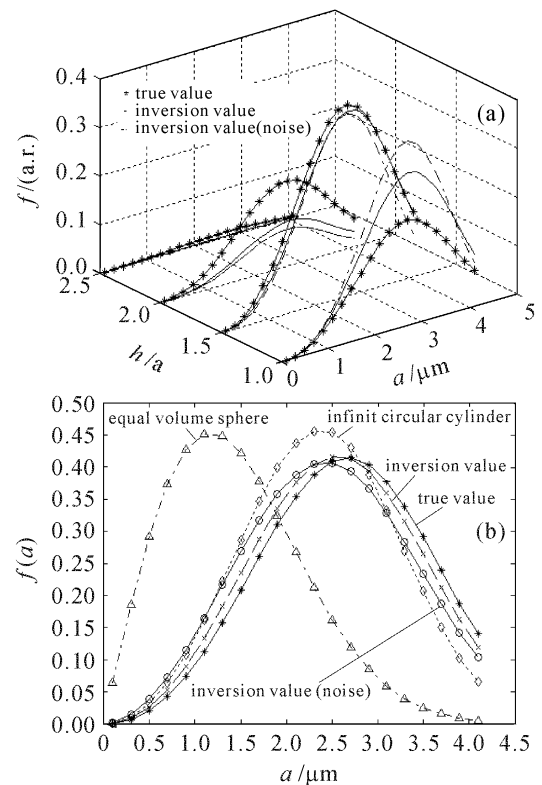


图 5 有限长圆柱粒子粒径(a)和等效粒径(b)分布反演结果

Fig. 5 Inverse results of finite circular cylinder (a) and equivalent (b) particle size distribution

4 结 论

基于反常衍射近似,提出一种反演圆柱形粒子粒径分布的计算方法。通过反常衍射近似,消光系数的计算时间大大缩短,解决了光全散射法粒径在线测量一个至关重要的问题。深入研究了使用反常衍射近似计算圆柱形粒子消光系数的可行性以及应用条件,并在非独立模式下采用基本遗传算法进行了仿真实验验证。结果表明,当粒子的相对折射率在一定范围内时,采用文中提出的方法,反演结果稳定可靠,较好地反映实际粒径分布,计算速度快,在测量误差达 3% 时仍有较高的精度,因而具有很好的应用前景。

致谢 本文的 T 矩阵源程序代码由荷兰 Nikolaos C. Skaropoulos 以及英国 D. Mackowski 提供,在此表示感谢。

参 考 文 献

- 1 Yang Ye, Zhang Zhenxi, Yang Xinhui *et al.*. Comparison and analysis of Mie scattering and anomalous diffraction of spheres with refractive index near 1 [J]. *Applied Optics*, 1997, **18**(6): 12~15
杨 晔,张镇西,杨新惠 等. 相对折射率趋近于 1 的颗粒 Mie 散射与反常衍射的分析比较[J]. *应用光学*, 1997, **18**(6):12~15
- 2 Jianqi Zhao, Yinqiao Hu. Bridging technique for calculating the extinction efficiency of arbitrary shaped particles [J]. *Appl. Opt.*, 2003, **42**(24):4937~4945
- 3 G. R. Fournier, B. T. N. Evans. Approximations to extinction from randomly oriented circular and elliptical cylinders [J]. *Appl. Opt.*, 1996, **35**(21):4271~4282
- 4 Wenbo Sun, Qiang Fu. Anomalous diffraction theory for randomly oriented nonspherical particles; a comparison between original and simplified solutions [J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 2001, **70**:737~747
- 5 Juho-Pertti Jalava, Veli-Matti Taavitsainen, Heikki Haario *et al.*. Determination of particle and crystal size distribution from turbidity spectrum of TiO₂ pigments by means of T-matrix [J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 1998, **60**(3):399~409
- 6 Su Mingxu, Ren Kuanfang, Grehan G. *et al.*. The effect of light multiple scattering on particle sizing by using light extinction method [J]. *Acta Optica Sinica*, 2004, **24**(5):696~699
苏明旭,任宽芳,Grehan G. 等. 光复散射对消光法粒径测量的影响:复散射模型与数值模拟[J]. *光学学报*, 2004, **24**(5):696~699
- 7 Cuiping Yao, Zheng Li, Zhenxi Zhang. New algorithm and system for measuring size distribution of blood cells [J]. *Chin. Opt. Lett.*, 2004, **2**(6):343~346
- 8 Xu Feng, Cai Xiaoshu, Su Mingxu *et al.*. Study of independent model algorithm for determination of particle size distribution [J]. *Chinese J. Lasers*, 2004, **31**(2):223~228
徐 峰,蔡小舒,苏明旭 等. 独立模式算法求解颗粒粒径分布的研究[J]. *中国激光*, 2004, **31**(2):223~228
- 9 Wang Naining. Optic Measurement Technology of Particle Size and Its Application [M]. Beijing: Atomic Energy Press, 2000. 212~223
王乃宁. 颗粒粒径的光学测量技术及应用[M]. 北京:原子能出版社, 2000. 212~223