

文章编号 : 0253-2239(2002)03-0363-06

任意形体微粒分布的概率表述及其测量方法

王亚伟¹⁾²⁾ 贺安之²⁾ 刘晓燃²⁾

(1), 江苏大学理学院, 镇江 212013
(2), 南京理工大学理学院, 南京 210094

摘要: 对任意形体的三维微粒, 引入了等相位二维散射截面的概念, 建立了半椭圆概率组合模型, 提出了形体特征参数 η 、影响因子 $T(\eta)$ 与其形体概率分布函数 $P(\eta)$ 的概念, 以特征分布函数 $P(a, \eta)$ 取代了球形粒度概率分布函数 $P(a)$, 在洛伦兹-米(Lorenz-Mie)散射理论的基础上, 建立了 $P(a, \eta)$ 的数学反演方程和实验测量方法。理论结果经非球形煤粉微粒的实验验证, 效果较好。

关键词: 微粒; 形体; 概率分布函数; 散射; 测量

中图分类号: O436.2 文献标识码: A

1 引 言

应用光散射原理对微粒粒度分布特性的测量是一个既古老又充满新意的研究课题。Mie 对基于球体的电磁散射进行了严格的求解, 但是计算相当复杂。因此, 在实际微粒粒度分布测量中, 往往采用一些近似的算法, 如 Shifrin 法^[1]、Phillips-Twomey 法^[2]、T-矩阵法^[3]、夫琅和费衍射法^[4]、迭代法^[5]等等。但是, 在真实测量的场合, 被测微粒往往不是理想的球体, 研究结果表明此形体的差异破坏了上述各反演方法的基本条件, 从而降低了测量的精度和准确性。为此, 许多学者对各种模型的散射特性展开了研究, 亦已取得了一定的进展^[5,6]。如 Jenes^[7]在特定散射角度处利用光的偏振状态来获取粒子形状特征的方法。然而, 上述各种方法不能用一种普适性的模型和反演理论来表示, 从而不能取得广泛的应用。对此, 本文根据微粒的光散射特征, 对任意形体的三维粒子引入等相位二维散射截面的概念, 提出此具有任意形体的二维图像可以看成是由两个不同形体特征参数 η 的半椭圆组成, 用形体概率分布函数 $P(\eta)$ 来标志由任意形体粒子组成的粒子群的形体概率分布特征。以几何等效面积圆的半径 a 表示该粒子的粒子尺度(简称粒度), 用球形粒度概率分布函数 $P(a)$ 标志该粒子群的粒度概率分布特征。最终引入微粒特征分布函数 $P(a, \eta)$ 表示粒子群的尺度和形体的三维分布特征。基于粒子群散

射能量谱积分反演的方法, 建立了 $P(a, \eta)$ 的数学反演方程和测量方法, 为非球体微粒分布的测量提供了一个新的数学模型和反演方法, 有效地解决了粒子形体差异对粒子分布测量的影响, 完善了粒子物理分布特征的表示方法, 提高了测量结果的准确性, 大大拓展了测量的应用范围。同时还对影响因子 $T(\eta)$ 进行了理论计算, 经非球形粒子群煤粉实验验证, 获得了较好的实验结果。

2 微粒特征分布函数 $P(a, \eta)$ 及其反演

2.1 传统特征分布函数 $P(a)$

在微粒粒度分布的测量中, 粒子的散射光能量的空间分布往往作为反演的依据。Mie 基于麦克斯韦电磁理论, 对平行单色电磁波被位于均匀介质中任意粒径的各向同性小球散射的情况进行了推导, 得到了严格的解析表达式(称为洛伦兹-米理论)^[8]。

在实际测量应用中, 基于散射理论的粒度仪的测量方法较多。当采样气流中的半径为 a 、折射率为 n 的粒子穿越光敏区时(如图 1), 产生一个相应的散射光脉冲信号。取 $S(a, m)$ 代表粒子散射光收集立体角内总的有效散射截面; $\beta(x, y, z)$ 表示光学系统对粒子散射光的收集效率(一般为常数);

$I_0 \exp\left[-\frac{\alpha(x^2 + y^2)}{R^2(z)}\right]$ 为光敏区光强分布, R 为光敏区半径。光学传感器接收到的粒子散射光强为

$$I = S(a, m)\beta(x, y, z)I_0 \exp\left[-\frac{\alpha(x^2 + y^2)}{R^2(z)}\right]. \quad (1)$$

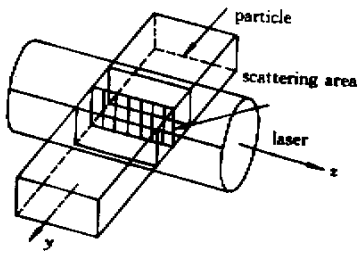


Fig. 1 Scattering cavity of the counter

(1) 式表明粒子散射光强不仅与粒径有关,还与粒子折射率以及在光束中的位置 (x, y, z) 有关。但是在实际测量应用中通常忽略粒子折射率以及粒子在光敏区中位置的影响,并采用概率分布函数对微粒群粒度分布进行表述^[9]。设有一群数目较大的粒子群组成一个集合 A , 共有 N 个粒子。对单个粒子分别用 a 表示该粒子尺度,令 $n(a_i)$ 表示具有粒度 a_i 的 $(i=1, \dots, N)$ 粒子数,则粒度为 a_i 的概率为:

$$P(a_i) = \frac{n(a_i)}{N} \times 100\% \quad (2)$$

若 $N \rightarrow \infty$, a 可以看作是连续变量 $a_{\min} \leq a \leq a_{\max}$, 则粒度概率分布函数为 $P(a)$, 且有

$$\int_{a_{\min}}^{a_{\max}} P(a) \lambda da = 1 \quad (3)$$

2.2 微粒特征分布函数 $P(a, \eta)$

在实际测量中,被测对象往往不是理想球体,空间的取向性、光敏区内微粒运动的稳定性、散射因子、消光因子、吸收因子的变化等因素均需考虑^[10], 所以对于不同形体的微粒群,必须考虑形体的影响。设 a, η 分别表示粒子尺度和形体特征参数(其物理意义将在后面的讨论中进一步说明),设这 N 个粒子群共有 M 种形体。 $P(\eta_i) = [n(\eta_i)/M] \times 100\%$ 为形体概率分布,当 $M \rightarrow \infty$ 可得形体概率连续分布函数 $P(\eta)$, 且有

$$\int_{\eta_{\min}}^{\eta_{\max}} P(\eta) \lambda d\eta = 1 \quad (4)$$

至此,我们可以设定集合 A 中出现粒度为 a 、形体为 η 的概率分布为 $P(a, \eta)$, 称为微粒特征分布函数。 $P(a, \eta)$ 是 $P(a)$ 与 $P(\eta)$ 的概率积,有 $P(a, \eta) = P(a)P(\eta)$, 且有

$$\int_{a_{\min}}^{a_{\max}} \int_{\eta_{\min}}^{\eta_{\max}} P(a, \eta) \lambda da d\eta = 1 \quad (5)$$

其中

$$\left. \begin{aligned} P(\eta) &= \int_{a_{\min}}^{a_{\max}} P(a, \eta) \lambda da, \\ P(a) &= \int_{\eta_{\min}}^{\eta_{\max}} P(a, \eta) \lambda d\eta, \end{aligned} \right\} \quad (6)$$

$P(\eta)$ 与 $P(a)$ 两函数彼此独立,分别是微粒形体概率分布函数和微粒粒度分布函数。

2.3 $P(a, \eta)$ 的反演方程

设 I 为收集立体角内 N 个粒子散射总能量, I^s 为收集立体角内 N 个球形粒子散射总能量, I^r 为相同粒度粒子由于形体变化对 I^s 的改变, V 为光能经光电传感器转换后所得到的电压响应值, $P(V)$ 表示电压为 V 的概率分布, $P^s(V)$ 表示球形粒子的电压概率分布, $P^r(V)$ 表示形体修正电压概率分布, H 表示光电转换因子, V_{\min}, V_{\max} 分别表示响应电压最小和最大值。对于理想球体有

$$I^s = \int_{a_{\min}}^{a_{\max}} I^r(a) n(a) \lambda da \quad (7)$$

其中 $I^r(a)$ 是不同粒度的粒子单次散射的响应,在散射法测量理论中可以认为仅仅是粒度 a 的函数^[9]。对于光电传感器输出的电压响应有

$$V(a) = HI(a) \quad (8)$$

则对于理想球体总电压响应为

$$V^0 = N \int_{V_{\min}}^{V_{\max}} P^s(V) \lambda dV \quad (9)$$

联立式(7)式、(8)式、(9)式,有

$$I^s = \frac{N}{H} \int_{V_{\min}}^{V_{\max}} P^r(V) \lambda dV \quad (10)$$

因为

$$I^s = N \int_{a_{\min}}^{a_{\max}} P^r(a) I(a) \lambda da = \frac{N}{H} \int_{V_{\min}}^{V_{\max}} P(V) \lambda dV \quad (11)$$

解得 $P(a) = P(V) \frac{d \ln I(a)}{da}$ (12)

由此可见,从散射电压响应概率分布函数的测定和能量分布的计算中可以反演出微粒群粒度分布函数 $P(a)$ 。对于任意形体的微粒群,从散射理论的结果可知其形体的变化对其散射谱是有影响的。但是一般情况下,对于某个微粒群其形体变化是不太大的(如图6所示的粉形体分布显微图),因此可以将微粒形体变化的影响认为是微扰,从而有:

$$I(\eta, a) = I(a) + I(\eta), \quad (13)$$

$$I = \int_{a_{\min}}^{a_{\max}} \int_{\eta_{\min}}^{\eta_{\max}} n(a, \eta) [I(a) + I(\eta)] da d\eta \quad (14)$$

其中 $I(\eta, a)$ 是粒度为 a 形体为 η 的微粒的散射响应, $I(a)$ 是形体微扰项, $I(\eta)$ 是其标准球形微粒的散射响应, I 为总散射响应。因为

$$P(a, \eta) = n(a, \eta) / (NM),$$

$$P(a) = n(a) / N, \quad P(\eta) = n(\eta) / M,$$

所以,由(14)式解得

$$P(V) = P^s(V) + HI(\eta)P^r(\eta) \frac{d\eta}{dV}. \quad (15)$$

$$\text{令 } L(\eta) = \left[\frac{d \ln I^r(\eta)}{d\eta} \right]^{-1}, \quad (16)$$

将(16)式代入(15)式得

$$P(V) = P^s(V) + L(\eta)P^r(\eta), \quad (17)$$

(17)式被称为反演方程。(17)式中 $P(V)$ 为实验测量值, $P^r(\eta)$ 可通过图像法测量得到,因此 $L(\eta)$ 的测定对其测量的数学反演的成功是个关键。

3 半椭圆组合模型与其形体概率分布函数

3.1 等相位散射截面

对于任意形体的三维粒子从其散射效果来看均可以视作由一个等相位物(equivalent phase object)面(也即为等相位的二维散射截面)所产生的散射^[11]。不同形体、不同取向、不同大小,对应应有不同形体的等相位物面,同时也产生了不同的散射结果,也即存在着不确定性。但是,对于大量粒子组成的系统存在着统计确定性,实际测量中我们所关心的也正是这种统计分布。因此,可以将此面作为粒子形体的标志面,对任意形体的等相位物面取其等效面积圆半径 a 作为粒子大小的量度(简称为粒度)。粒度为 a 的粒子数对所有粒数的比例表示了它的占有几率,可用 $P(a)$ 表示,称为该粒子群的粒度概率分布函数。

3.2 任意形体的等相位物面半椭圆组合模型与其形体概率分布函数 $P^r(\eta)$

等相位物面的任意性给粒子形体的表示和确定带来了困难,尽管 a 可以表示粒子的大小,但是,形体不能用简单的模型表示。对此,我们用两个半椭

圆的组合来表示任意形体的等相位物面来解决此问题。令 $\eta = b/c$ 表示半椭圆的两轴半径之比,称为形貌因子。图2所示分别为假设的几种形体的等相位物面,从图中可见任意形体的等相位面,皆可以用渐近半椭圆的代数和表示。

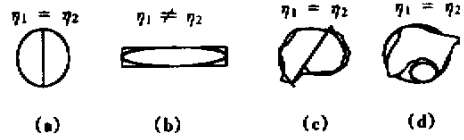


Fig. 2 Equality oblate model for arbitrary shape

在实际测量中我们所关心的是粒子群的形体的分布状态而不是单个粒子的形体,同样,在形体对米散射理论的影响方面关心的是统计分布性的影响而不是个体的影响。因此对 N 个粒子组成的系统,设系统具有 M 个不同的 η 值,则称系统有 M 个形体态,显然有 $M \leq 2N$ 。形体因子为 η 的状态数 n 与 M 的比值表示了该形体对全形体态的占有几率,用 $P^r(\eta)$ 表示,称为形体概率分布函数,它表征了粒子群形体的分布特征。

3.3 形体影响因子函数 $T(\eta)$ 的确定

从(17)式分析可见因形体变化而对散射产生的影响势必会对 $P^s(a)$ 和 $P(a, \eta)$ 的精确测定产生影响,对此,必须求出 $I^r(\eta)$ 的分布。设光敏区光强分布为高斯分布,取粒子散射截面为椭圆模型并认为在光敏区的中心处。考虑到 $I^r(\eta)$ 的物理意义,定义形体影响因子 $T(\eta)$,且有

$$I^r(\eta) = k_1 T(\eta), \quad (18)$$

其中 k_1 为常数因子, $T(\eta)$ 为椭圆截面对圆截面在高斯分布光敏区中散射的影响,从而有形体影响因子函数 $T(\eta)$ 推导如下:

$$\eta = b/c, \quad \pi a^2 = \pi bc,$$

令 $T(a, \eta)$ 表示粒度为 a 的粒子由于形体的变化而对标准球形粒子散射能量的修正,所以有

$$T(a, \eta) = \int_0^{bb\sqrt{1-\eta^2/c^2}} \int_0^{\sqrt{a^2-y^2}} \exp\left(-\frac{x^2+y^2}{R^2}\right) dx dy - \int_0^{\sqrt{a^2-y^2}} \int_0^{\sqrt{a^2-y^2}} \exp\left(-\frac{x^2+y^2}{R^2}\right) dx dy, \quad (19)$$

其中 R 为高斯光敏区半径,从以上诸式可以求得形体影响因子分布函数为

$$T(a, \eta) = -\frac{1}{4a^2\sqrt{\pi}} \sum_{k=0}^{\infty} \left[\frac{(-1)^k \eta^k a^{2k}}{R^{2k}} \Gamma\left(\frac{1}{2} + k, -\frac{a^2}{\eta R^2}\right) \frac{\Gamma(1/2 + k)}{\Gamma(1 + k)\Gamma(2 + k)} \right] T(a, 1), \quad (20)$$

其中 $T'(a, 1)$ 是(20)式中首项 $\eta = 1$ 形式的简记符。若令 $a = 10, 100$ 分别得得到 $T(\eta)$ 分布如图3。

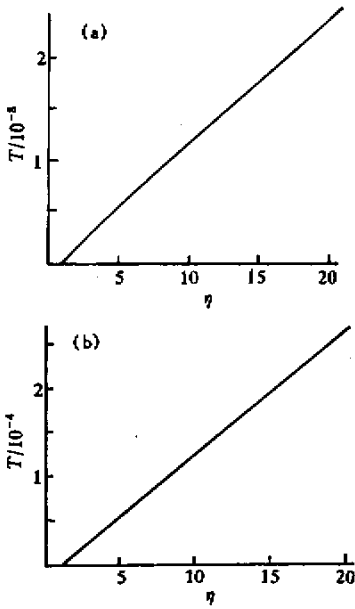


Fig. 3 The distribution of function $T(\eta)$.
(a) $a = 10$; (b) $a = 100$

显然可见 T 函数在一定的形变区间内其分布为线性, 可以不考虑 a 的影响表示为

$$T = k_2 \eta - k_2, \quad (21)$$

其中 $\eta \geq 1, k_2$ 为 T 函数分布曲线的斜率, 表示了因形变对散射产生影响的速率。

$$I'(\eta) = k_1 T(\eta) = k_1 k_2 \eta - k_1 k_2,$$

令 $k = k_1 k_2$, 得 $I'(\eta) = k\eta - k$, 代入(16)式、(17)式得

$$P(V) = P'(V) + \frac{T(\eta)P''(\eta)}{k}, \quad (22)$$

或为

$$P(V) = \left[\frac{d \ln I'(a)}{da} \right]^{-1} P'(a) + \frac{T(\eta)P''(\eta)}{k}. \quad (23)$$

从(22)式、(23)式可以看出只要测定 $P''(\eta)$ 和 $P'(V)$ 后, 可以定义 $P'(V)$ 或 $P'(a)$, 其中 $P'(V)$ 为实验测量值, $\left[\frac{d \ln I'(a)}{da} \right]^{-1}$ 可以用标准粒子标

定^[13, 14], $P''(\eta)$ 可以用图像法测定。若 $\frac{T(\eta)P''(\eta)}{k}$ 为常数, 则 $P(V)$ 与 $P'(V)$ 具有相同的分布形貌, 此时可以用 $P(V)$ 按球体反演方法反演得 $P'(a)$, 从而得 $P(\eta, a) = P'(a)P''(\eta)$

4 实验与讨论

作为对上述反演方法和模型正确性的验证, 我们采用了基于米散射原理的、大角散射腔结构的 Y09-9 型粒度分布测量仪对苯乙烯胶球粒子和煤粉(非球型粒子)进行实验。考虑到测量在大粒度情况下形体的影响较大, 因而可以不考虑折射率的影响。取粒径分布为 $38 \mu\text{m} \sim 105 \mu\text{m}$ 的粒子为样品。图4为医用的细胞显微镜系统摄得的苯乙烯胶球粒子的形体图, 图5为该仪器对苯乙烯胶球粒子测得的 $P'(V)$ 分布, 是一种近高斯分布, 说明该仪器测量球形粒子有较好的精度和分辨率。



Fig. 4 The shape of polystyrene

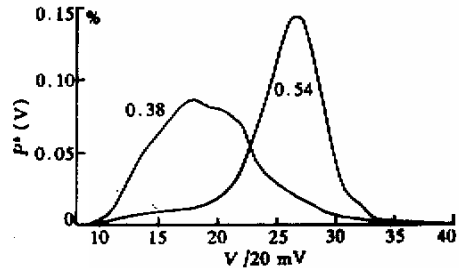


Fig. 5 The distribution $P'(V)$ for polystyrene

图6为用医用细胞显微系统摄得的煤粉粒子的形体图。现对煤粉粒子采用 Rasin-Rammle 煤粉粒子分布理论, 并考虑到筛分的特征, 煤粉 $P'(V)$ 分布如图7所示。

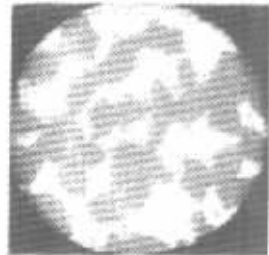


Fig. 6 The shape of the coal particles

从图6分析可以认为 η 取值范围为 $1 \sim 10$, 且 $P''(\eta)$ 为单值线性递减, 准确的 $P''(\eta)$ 分布有待日后 $P''(\eta)$ 的测量方法进一步的研究, 从图6中可见 η 大的粒子数在减少, 所以作了单值线性递减的假设, 在此范围内 $T(\eta)$ 为单值线性递增, 其积可以

认为是常数, 则 $P^*(V)$ 与 $P(V)$ 呈线性关系, 此时 $P^*(V)$ 可以用 $P(V)$ 代替。

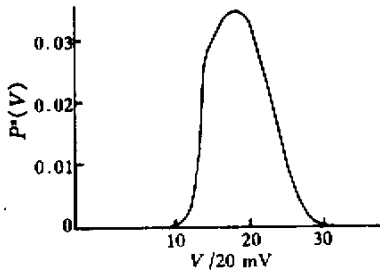


Fig. 7 The distribution $P^*(V)$ in ideal

图 8 为 YA09-9 粒度测量仪(电压通道分档范围 20 mV, 用 256 通道信号幅值甄别器测量信号)对煤粉粒子样体测定的 $P(V)$ 分布图, 此结果与图 7 的结果相似。所以在此情况下仍可以用 $P(V)$ 分布取代 $P^*(V)$ 分布, 理论与实验吻合得较好。

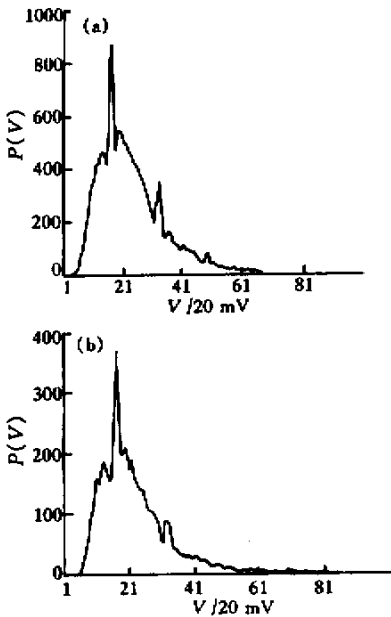


Fig. 8 $P(V)$ distribution for coal oblate without normalized.

(a) For sample A; (b) For sample B

结论 本文的研究结果表明:

1) 半椭圆组合模型不仅可以表示二维粒子的形体, 而且对三维粒子可以进行轴旋转表示。所以适合于任意形体粒子的标志, 尤其适合于二维粒子群。

2) 粒度形体概率分布函数更全面更准确地表示了被测粒子群的统计分布特征, 采用此概念可大大提高测量结果的准确性和应用价值。

3) 本反演方法未涉及到具体的散射理论模型、测量仪器结构, 所以具有普适性。尤其适用于基于

散射能量的测量仪如 YA09-9 型等。对于形体参数分布范围不大, 形体概率分布函数与影响因子乘积为常数的情况下, 仍然可以用实验测量的响应函数作为球体微粒粒度分布的反演依据, 从而大大拓展该类测量仪的应用能力。

4) 当粒径 a 为亚微米量级或为百微米量级时, $T(\eta)$ 为非线性, 此时形体影响因子的模型、算法以及实验确定方法尚需进一步的研究。

5) 本理论模型仅适用于低浓度的微粒群(微粒间距大于 5λ), 且在光敏区内的散射为单次散射。

6) 关于 $P^*(\eta)$ 分布的快速测定方法有待进一步的研究。

参考文献

- [1] Shifrin K S, Kolmakov I B. Calculation of particle size spectrum from direct and integral values of the indicatrix in the small angle region. *Izv. USSR Acad. Sci. Atmos. Oceanic Phys.*, 1966, **3**: 749~753
- [2] Twomey S. On the numerical solution of Fredholm integral equations of the first kind by inversion of the linear system produced by quadrature. *J. Ass. Compute. Math.*, 1963, **10**: 97~101
- [3] Paramonov L E. T-matrix approach and the angular momentum theory in light-scattering problems by ensembles of arbitrarily shaped particles. *J. Opt. Soc. Am.*, 1995, **12**(12): 2698~2700
- [4] Riley J B, Agrawal Y C. Sampling and inversion of data in diffraction particle sizing. *Appl. Opt.*, 1991, **30**(33): 4800~4817
- [5] Mazon P, Muller S. Light scattering by ellipsoids in a physical optics approximation. *Appl. Opt.*, 1996, **35**(19): 3726~3735
- [6] Ping Y, Liu K N. Geometric-optics-integral-equation method for light scattering by nonspherical ice crystals. *Appl. Opt.*, 1996, **35**(33): 6568~6584
- [7] Card J B A, Jones A R A. Light scattering method to discriminate between coal and fly ash particles dispersed in air. *Combust Flame*, 1991, **86**: 394~402
- [8] Van de Hulst H C. *Light Scattering by Small Particles*, New York: John Wiley & Sons, 1957
- [9] Bian Baomin, Chen Xiaofi, He Anzhi. Researching on the amplify distribution function for signal scattering of counter. *J. South and East University* (东南大学学报), 1999, **29**(1): 150 (in Chinese)
- [10] Wang Yawei, He Anzhi. Analyzing about forming of multi-pick spectrum in Mie scattering of small particle. *J. Laser Technol.* (激光技术), 2000, **24**(5): 297~300 (in Chinese)
- [11] Chen B Q, Stamnes J J. Scattering by simple and nonsimple by the combined method of ray tracing and diffraction: Application to circular cylinders. *Appl. Opt.*, 1998, **37**(11): 1999~2010
- [12] Jones A R. Light scattering for particle characterization.

Proc. , Energy Combust. Sci. , 1999 , 25 : 1 ~ 54

- [13] Cheng Xiaofi. *The Application of Model and Single Processing for Counter*(尘埃粒子计数器信号传输与处理的数学建模及应用). [MS dissertation] Nanjing : Nanjing University of Science and Technology , 1999(in Chinese)

- [14] He Yuquan. *The System Design on Data Processing in the Visual Sections Model of Counter*(虚拟多通道数据采集系统的设计及其在尘埃粒子计数器中的应用). = [MS dissertation] Nanjing : Nanjing University of Science and Technology , 2000(in Chinese)

Probability Characterization Method of Arbitrary Particles Distribution and It's Measurement

Wang Yawei¹⁾²⁾ He Anzhi²⁾ Liu Xiaolan²⁾

(1) , Jiangsu University , Zhenjiang 212013

(2) , Nanjing University of Science and Technology , Nanjing 210094)

(Received 30 October 2000 ; revised 9 July 2001)

Abstract : A new half-oblate consisted model is built upon the probability distribution concept from the scattering characteristics of the particles. It is suggested that η represents the shape factor, $T(\eta)$ represents the shape-impact factor and $P(\eta)$ represents the shape-probability distribution. The size-distribution function $P^s(a)$ is substituted by the character distribution function $P(a, \eta)$. After that, a inversion equation of the function $P(\eta, a)$ and a method for the measurement are established upon the Mie scattering theory, which is supported by using arbitrary particles such as mineral particles in the experiment, and a good result is obtained.

Key words : particles ; shape ; character distribution function ; scattering ; measurement