

## 悬浮粒子的光学散射相关测量与分析方法

曾楠\*, 杨立坤

清华大学深圳国际研究生院, 广东 深圳 518055

**摘要** 从技术上获取悬浮粒子与光相互作用的指标体系,从理论上模拟悬浮粒子与光相互作用的过程和机制,进而借助光散射技术对悬浮粒子的微物理属性进行定性定量的识别、区分和反演,是相关领域研究者的关注焦点。光学测量中的偏振散射分析,不仅能实现原有粒子散射过程的检测,还能借助偏振矢量分析有效扩展实验数据的信息维度,从而为不同粒子类别和属性差异的细化识别提供可能。本文针对悬浮粒子的测量与分析问题,从测量技术、计算理论、实测数据分析几个方面对光散射相关进展进行了综述,并重点关注了基于粒子散射偏振分析提取的悬浮粒子研究进展。

**关键词** 悬浮粒子; 偏振测量; 散射特性

**中图分类号** X831 **文献标志码** A

**DOI:** 10.3788/AOS231206

## 1 引言

气溶胶是液体或固体微粒均匀地分布在气体中形成的相对稳定的悬浮体系,组成气溶胶的粒子就是悬浮粒子。环境中影响人类的悬浮粒子大多为粒径在 0.1~10  $\mu\text{m}$  范围内的气溶胶,相较于大粒径的粒子,它们不易沉淀到地表,不仅可以传播很远的距离,而且可以在大气中存在数周至数月之久<sup>[1]</sup>,因此对人类造成的潜在危害更大。常见的气溶胶来源主要为天然形成和人类生产活动产生两种。天然形成的气溶胶有雾、沙尘和森林植物的渗出物等,而霾、烟尘等空气中的颗粒污染物等则是典型的人为来源<sup>[2]</sup>。环境气溶胶是大气系统中不可或缺的成分之一,深度参与各种大气物理化学过程例如降雨、气候演化等,还会对地球的辐射平衡和大气能见度产生显著影响<sup>[3-4]</sup>。然而,随着工业化和现代化程度的加深,气溶胶对于公众健康的不利影响也逐渐暴露出来<sup>[5]</sup>。比如,细小颗粒物(例如  $\text{PM}_{2.5}$  和  $\text{PM}_{10}$ )能够沉积在中央呼吸系统和外周呼吸系统的不同位置,导致呼吸道阻塞和炎症,干扰人体正常气体交换<sup>[6]</sup>。已有研究表明,纳米尺寸的颗粒物甚至可以穿透人体空气与血液交换屏障,直接参与血液循环,最终在心脏、肝脏甚至大脑等主要器官沉积,导致中枢神经系统疾病发作<sup>[7]</sup>。因此,脑卒中、帕金森病和阿尔茨海默病的发病机理与空气污染和气溶胶微粒有着潜在关联<sup>[8]</sup>。

大气气溶胶污染物具有种类多、成分复杂等特点<sup>[9-10]</sup>,且不同地区和不同产生过程的气溶胶在多个属

性维度上有所差异。随着大气污染物组成和源解析研究的推进,研究人员日益认识到气溶胶污染物特征分析和谱库数据建立的重要性。目前对于在线监测的实时反馈数据,以及对颗粒物多维度理化特征的同步提取和复合表征等研究方面,还有极大的提升空间。

气溶胶的属性一般通过形貌结构、化学成分和颗粒直径 3 个参数确定。不同的物质组成表现出独特的物化性质,并反映了多样的物质来源。正确地认识、量化并表征气溶胶的物理属性对于评估潜在的健康危害和环境影响格外重要。只有检测出悬浮粒子中高消光、重毒性、危害性成分的含量,才能通过制定相应的政策方针实施相应的治理和管控。此外,不同悬浮粒子的成分、结构、形态、尺度不尽相同,尽可能实时和细化地获取不同来源悬浮粒子的属性分布信息,才能为环境和医学等领域的分析研究提供充分的科学依据。

悬浮粒子的测量方法可分为非光学测量方法和光学测量方法。非光学测量方法可以对气溶胶进行浓度测量、成分分析等,如滤膜称重法、压电晶体法、硅碳化物场效应晶体管法、锥形元件振荡微天平法、 $\beta$ 射线衰减法等<sup>[11-13]</sup>。该类方法应用历史悠久,技术成熟,但基于这些方法的仪器成本高昂,并且需要定期维护和校准。

悬浮粒子的光学检测机理通过观察入射光照射到待测粒子后发生的变化,来实现对悬浮粒子属性信息的提取,这类方法主要包括飞行时间质谱法、消光光谱法等<sup>[14-15]</sup>。相比于非光学方法,光学方法具有以下几个优点:1)能够实现颗粒物检测的动态实时观测;2)具有高度的无损性、非接触性,可以在不接触样品表面的

收稿日期: 2023-07-03; 修回日期: 2023-07-31; 录用日期: 2023-08-11; 网络首发日期: 2023-08-30

基金项目: 深圳市基础研究重点项目(JCYJ20200109142820687)

通信作者: \*zengnan@sz.tsinghua.edu.cn

条件下对样品进行检测而不对样品造成损伤,且可以有效降低耗材成本。本文针对悬浮粒子的测量与分析问题,从测量技术、计算理论、实测数据分析几方面对光散射相关进展进行了综述,并重点关注了基于粒子散射偏振分析提取的悬浮粒子研究进展。

## 2 悬浮粒子光散射相关测量技术

### 2.1 光散射技术概论

当粒子的粒径、折射率、结构形态等因素发生改变时,散射球面上的光强分布也会发生改变。根据粒子数量的不同,光散射法一般可以分为粒子集群散射法和单粒子散射法<sup>[16-18]</sup>。粒子集群散射法的主要特点是入射光照射粒子群时,会与多个颗粒物发生散射作用,如:光子相干法通过观察由布朗运动导致的多普勒效应下的光谱频移,就可以反推出粒子的粒径分布;夫琅禾费衍射法沿着入射激光的照射方向在粒子群后方放置透镜,衍射条纹与粒子的粒径、入射激光波长有关,由此可以计算悬浮粒子的粒径。

单粒子散射法的主要特点是其每次记录的信号都

来自单个悬浮粒子,因此又被称为粒子计数法。它的原理一般是在散射平面上放置数个测量装置,以同时记录粒子的多通道散射信息。与粒子集群散射法相比,单粒子散射法的核心在于测量装置的数量和分布位置,以及由此产生的多维数据处理方法和解析理论<sup>[19]</sup>。

### 2.2 群悬浮粒子检测技术

在大气气候预测领域,群悬浮粒子测量具有较大的应用价值。影响气候预测的关键因素之一是气溶胶悬浮粒子的微观物理属性,包括悬浮粒子的复折射率、粒径等。已有研究表明,复折射率是大气颗粒化学成分的光物理反映,定量测量复折射率能够为气溶胶种类识别和分类提供重要的参考依据<sup>[20]</sup>。Han等<sup>[21]</sup>分别设计了用于测量气溶胶尺寸分布的空气动力学粒度光谱仪(APS)探头和用于测量总光散射系数的积分浊度计,可以分别对气溶胶悬浮粒子的散射系数、粒径和复折射率进行测量。图1(a)所示为三波长积分浊度计的光散射测量,通过空气动力学粒度光谱仪对气溶胶的尺寸分布进行测量;图1(b)所示为气溶胶复折射率随时间的变化。

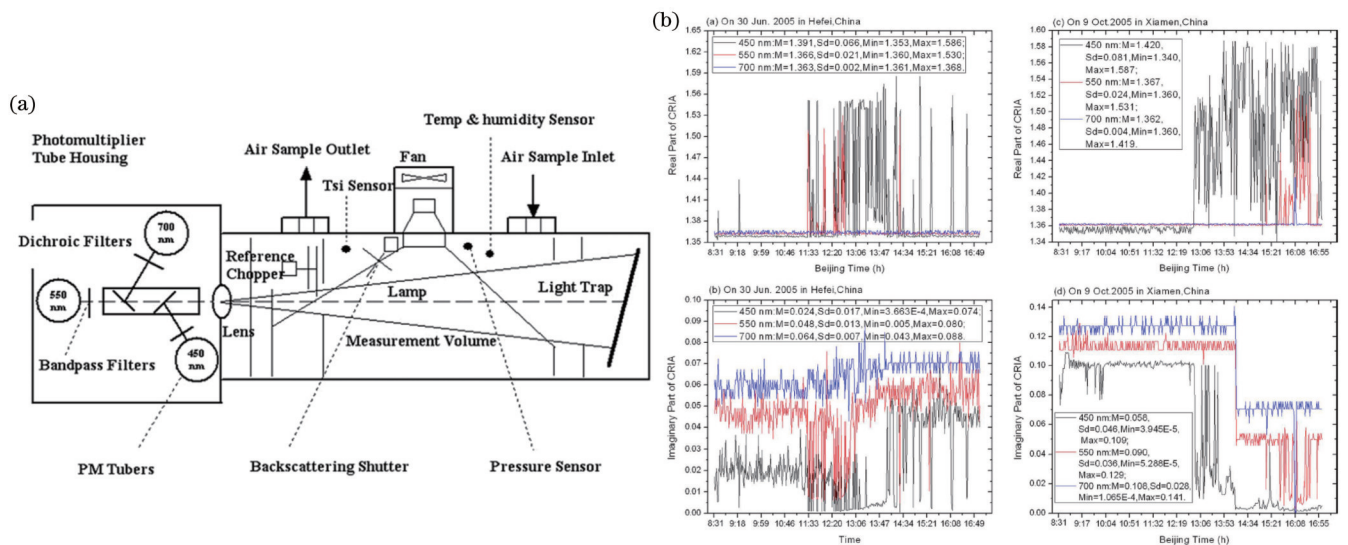


图1 积分浊度计示意图及复折射率测量结果<sup>[21]</sup>。(a)三波长积分浊度计构成;(b)气溶胶复折射率的变化

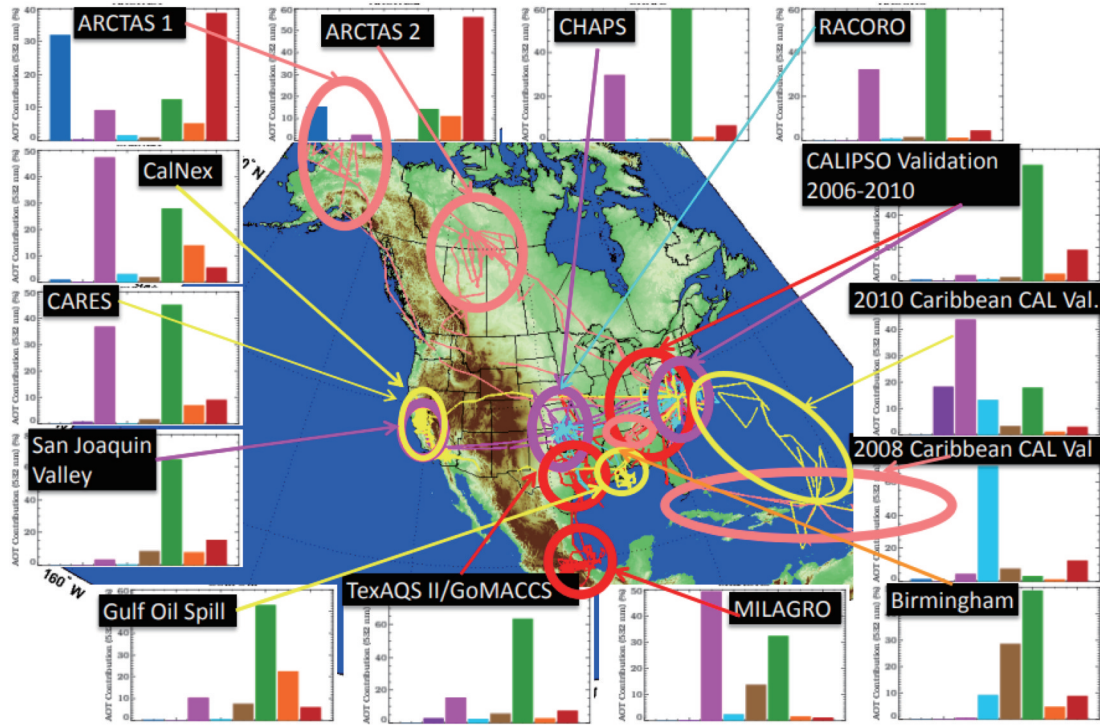
Fig. 1 Schematic of integral turbidimeter and results of complex refractive index measurement<sup>[21]</sup>. (a) Structure of three-wavelength integral turbidimeter; (b) changes in complex refractive index of aerosol

在气溶胶悬浮粒子识别领域,激光雷达技术由于能够提供纵向轮廓的气溶胶分布信息而被广泛用到气溶胶的监测和识别中。激光雷达通过向天空发射高能脉冲激光,激光在传播过程中会受到大气颗粒物的反射或者散射,这些带着颗粒物散射信息的后向散射光经大孔径透镜接收,可反演出气溶胶的垂直分布信息,如光学厚度、背向散射系数等<sup>[22-23]</sup>。由于激光雷达是基于群粒子多次散射的综合结果,对相似的气溶胶具有较差的区分识别度,不能给出粒子的分布谱信息,时间分辨率较低;基于后向散射的探测方式,导致激光雷达只有有限的探测角度<sup>[24]</sup>。为提高对不同气溶胶的识

别度,多种模式的探测方式被耦合到激光雷达的探测中。Costabile等<sup>[25]</sup>提出一种根据悬浮粒子光谱光学特性对气溶胶群体进行分类的方案。Groß等<sup>[26]</sup>提出一种基于高光谱分辨率激光雷达(HSRL)的悬浮粒子识别方案,对雷达系数与线性偏振度参数的二维图进行分析,从而实现气溶胶类型的判定,但是这类方法只能识别有限数量的气溶胶且局限于双组分混合物的分析。图2显示了该HSRL在北美洲的测量结果,该结果显示了每次HSRL测量的8种气溶胶粒子光学深度之和。

### 2.3 单悬浮粒子检测技术

对于高浓度的气溶胶集合,体散射的测量方式容

图 2 基于 HSRL 的测量结果<sup>[26]</sup>Fig. 2 Measurement results based on HSRL<sup>[26]</sup>

易受到多次散射效应的影响,从而导致实验误差,而单粒子散射法是一种有效且实用的测量方法。其中光学流式细胞仪可以实时、高通量地实现单粒子散射光的检测,进而可以结合荧光信号实现单粒子的分类、识别和计数。已有研究人员基于流式细胞仪的原理,设计出对悬浮粒子的光学检测仪。Kaye 等<sup>[27]</sup>设计了一种基于空间光散射的悬浮颗粒检测仪,图 3(a)为该仪器的组成原理图,实验人员通过角散射光和荧光强度来定性分析粒子的种类,可以有效避免生物气溶胶的假阳性检测。Ding 等<sup>[28]</sup>设计了可以测量多角度散射光的仪器,如图 3(b)所示。该仪器可以实现 3 个散射角度( $0^\circ$ 、 $120^\circ$ 、 $240^\circ$ )下每分钟 250~500 个悬浮粒子的测量和信号采集,实验结果证明了其在识别球形和不规则颗粒上的可行性。Renard 等<sup>[29]</sup>设计了一种连续颗粒监测器,基于小角度散射光实现了环境中悬浮粒子浓度的实时监测。Parks 等<sup>[30]</sup>将有源微流控和光流体技术集成到单个 PDMS 芯片中,证明了通过微流控芯片操纵和检测单个荧光颗粒的可行性。

上述测量方法仅依据散射光强度或荧光强度,对悬浮粒子的分析功能多局限于对粒径或浓度的测量,难以实现对成分和形态的分析。偏振作为光的基本属性之一,已经被广泛应用到各种精密光学测量场景中,并逐渐显示出优势。偏振对于颗粒物的微观物理特性等较为敏感,在单悬浮粒子检测中引入偏振测量可以有效扩充实验数据的特征维度,提高悬浮粒子识别能力。由单粒子的理论模拟结果可知,尺寸、复折射率和

形状是影响散射光束偏振状态的主要因素,因此基于散射光偏振状态的测量与提取是单悬浮粒子分析技术发展的重要方向。

#### 2.4 偏振光悬浮粒子测量技术

偏振作为光的基本属性之一,已经被广泛应用到各种精密测量场景中,并逐渐显现出优势。在生物医学领域内,偏振图像测量比纯光强测量更能揭示样品的结构特征<sup>[31]</sup>;在光学弱测量领域,光子的偏振态被选为系统的本征态,显著改善了测量的信噪比,被测物理量得以被系统耦合放大几个量级<sup>[32]</sup>;在遥感观测领域,激光雷达和光学遥感系统通过加装偏振模块,实现了植被叶绿素<sup>[33]</sup>、微生物<sup>[34]</sup>和海洋无机物<sup>[35]</sup>空间分布的精确评估。

上述研究均表明,仅测量光散射强度的分析能力有限,缺乏足够的信息维度和表征灵敏度,难以获得颗粒物粒径、成分、形态、结构以及更为复杂的物理属性。引入偏振分析后的粒子信息提取降低了对散射空间角度的依赖性,增加了新的基于偏振矢量的信息维度,此时将入射光和散射光的信息从单一的光强维度表示转化为四维斯托克斯矢量表示,可以实现更加细致的颗粒物物理属性研究,为识别悬浮粒子的粒径、形态、结构及更为复杂的物理属性提供保证。

图 4 显示了悬浮粒子的散射偏振测量过程:入射光与悬浮粒子接触后会产生散射现象,散射角  $\theta$  定义为散射光与前向光的夹角,  $e$  表示不同角度光强信号的分布。在水平散射面的不同散射角方向放置偏振分析

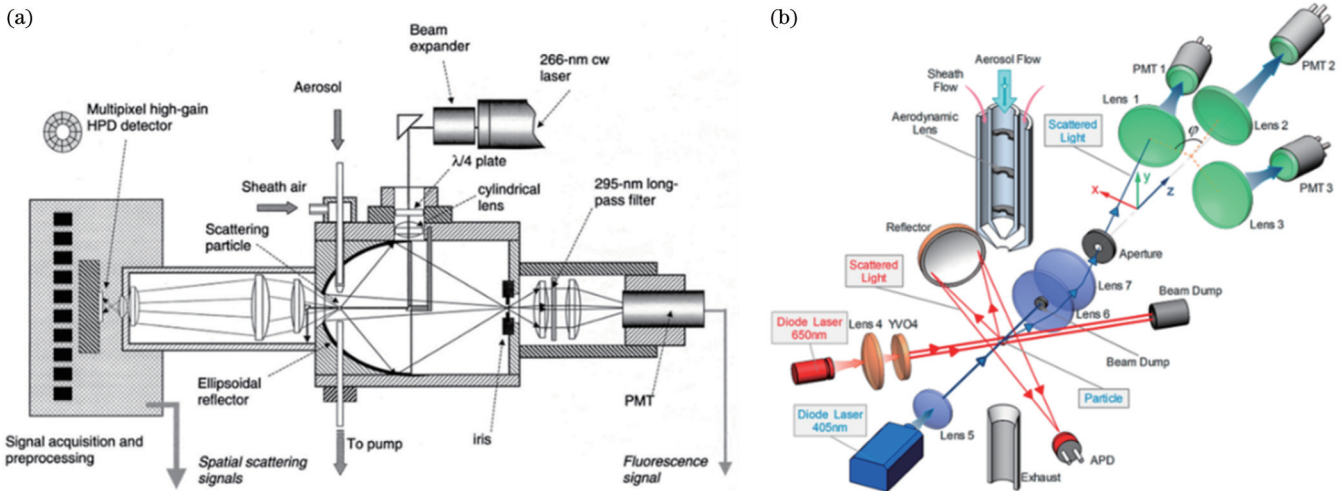


图 3 两种基于空间光散射的悬浮颗粒检测仪器原理图。(a)基于单角度的悬浮粒子散射光测量仪器构成<sup>[27]</sup>;(b)基于多角度的悬浮粒子散射光测量仪器构成<sup>[28]</sup>

Fig. 3 Schematic of two suspension particle detection instruments based on spatial light scattering. (a) Schematic of a measurement instrument based on single-angle scattering light of suspended particles<sup>[27]</sup>; (b) schematic of a measurement instrument based on multi-angle scattering light of suspended particles<sup>[28]</sup>

装置,可在获取侧向散射信号的同时了解光的偏振状态。已有研究<sup>[36-37]</sup>表明,前向 $10^\circ$ 散射角的光强信号虽然对于颗粒物的粒径敏感,但侧向散射光( $30^\circ\sim 150^\circ$ )的偏振分布对于颗粒物的物化性质有着更强的区分能力。

在将偏振光散射法用于悬浮粒子单粒子散射的研究中,Kobayashi等<sup>[38]</sup>利用 $120^\circ$ 检测散射光中s光和p光的比例及单粒子散射强度来实现对尘土和炭黑的监测,Wang等<sup>[39]</sup>利用后向 $120^\circ$ 散射光偏振态的变化来实现不同种类海藻的区分,Li等<sup>[36]</sup>借助单一偏振指标实现对高吸收性炭黑悬浮粒子的特异识别。Chen等<sup>[40]</sup>设计了一种基于单角度偏振散射测量的仪器,如图5(a)所示,利用该仪器测量球、椭球和纤维束3种样品

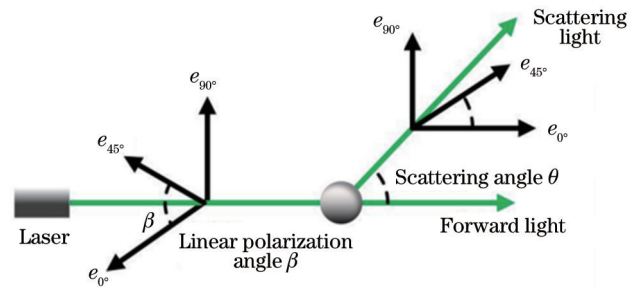


图 4 悬浮粒子的散射测量原理

Fig. 4 Principle of scattering measurement of suspended particles

在 $85^\circ$ 散射角下的偏振指标,其平均值和方差如图5(b)所示,证明了该实验装置识别粒子形态的可行性。

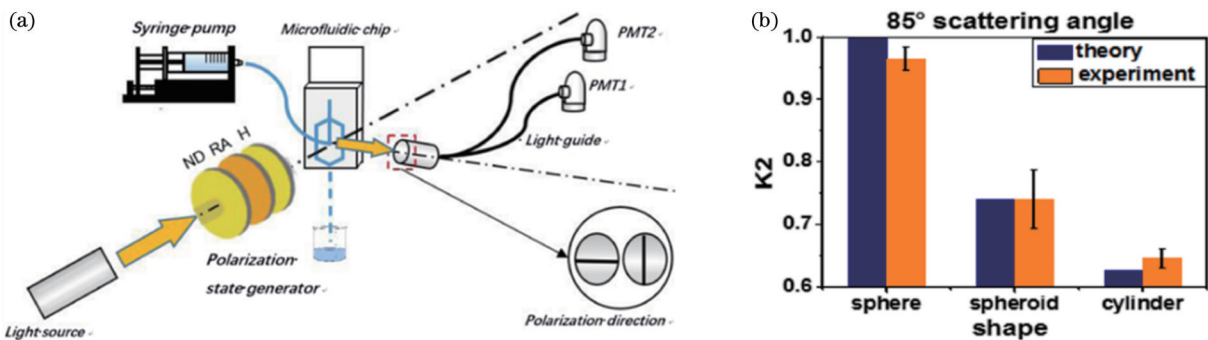


图 5 基于单角散射偏振的悬浮粒子测量装置及测量结果<sup>[40]</sup>。(a)装置构成;(b)测量结果

Fig. 5 Suspended particle measuring device based on single angle scattering polarization and its measurement results<sup>[40]</sup>. (a) Composition of the device; (b) results of the measurement

Li等<sup>[36,41]</sup>设计了图6(a)所示的悬浮粒子偏振散射测量装置,该仪器可以在1s内获得约 $2\times 10^4$ 个粒子的信号并记录这些信号,实现空气中悬浮颗粒物的实时高通量测量。该仪器的检测部分拥有4个独立的光纤

束通道,用于接受单个悬浮粒子的散射光脉冲信号。图6(b)所示为3种不规则形态样品的扫描电子显微镜(SEM)图像,从左到右依次为石墨、硫酸铵、二氧化硅。图6(c)所示为样品在散射角为 $60^\circ$ 和 $115^\circ$ 下归一

化处理后的偏振矢量参数  $Q$ 、 $U$  的平均值和分布。图 6 (d) 所示为该实验装置现场测量结果与热光学分析设备测量结果的对比,验证了该装置在实时监测特定颗

粒物浓度方面的可靠性。在后续研究中,该装置还进一步实现了对多种悬浮粒子的精准识别和悬浮粒子复折射率的估算和反演<sup>[37]</sup>。

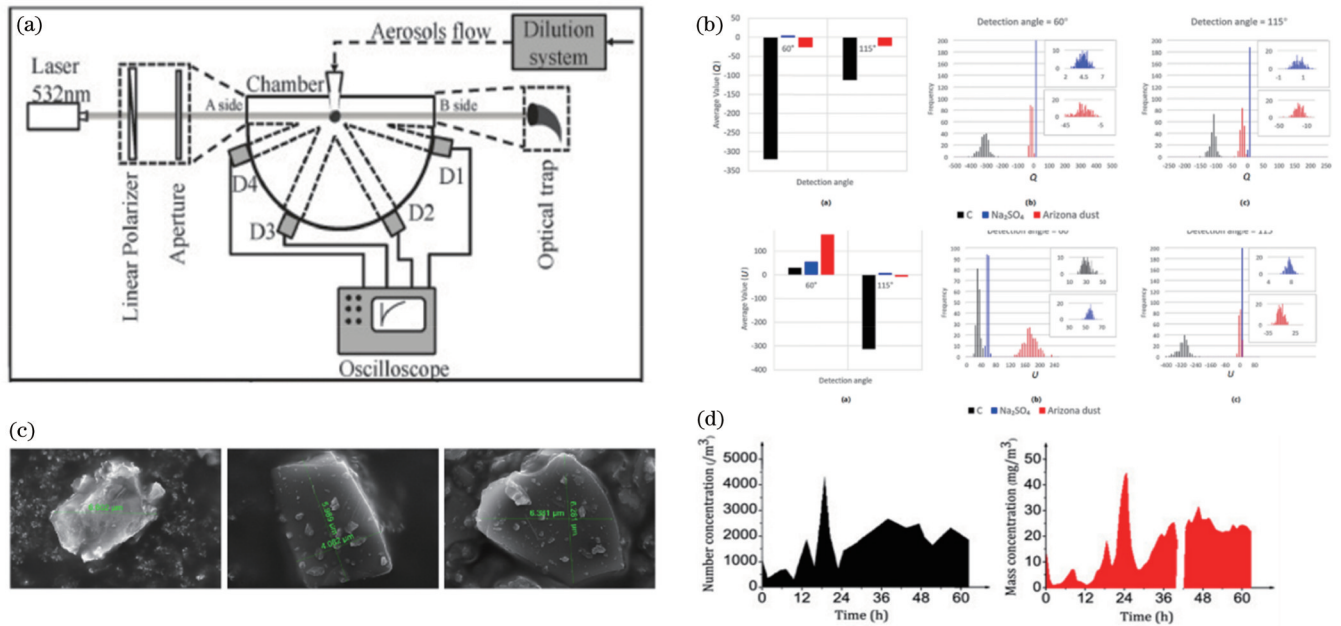


图 6 基于散射偏振的悬浮粒子测量装置及测量结果<sup>[36,41]</sup>。(a) 仪器构成; (b) 测量结果; (c) 样品的 SEM 图像; (d) 测量结果与光学分析设备测量结果的对比

Fig. 6 Suspended particle measuring device based on scattering polarization and its measurement results<sup>[36,41]</sup>. (a) Composition of the device; (b) results of the measurement; (c) SEM images of the samples; (d) comparison of measurement results with those of optical analysis equipment

总的来说,偏振散射检测技术相比仅基于散射光强度或荧光强度的单悬浮粒子检测方法具有以下优点:1) 对小粒径悬浮粒子的属性差异较敏感,偏振测量装置仅需在传统光散射系统中引入起偏及检偏模块,且易与荧光等光学技术并行检测;2) 偏振分析所提供的光矢量信息增加了粒子检测的数据维度,从而有利于不同测量对象的分类区分和属性反演。

### 3 悬浮粒子散射过程的理论计算

通过实验对散射体的偏振光学特性进行测量是一个正向过程,而对散射过程的理论推导和模拟则是一个逆向过程。通过模拟计算,不仅可以帮助研究人员找出能够反映散射体微观物理属性的特异性指标,还能为测量结果提供理论解释,并通过测量结果逆推出散射体的粒径、折射率、吸收系数、形态结构等信息。

#### 3.1 群粒子散射过程的模拟计算

在对群粒子的散射过程模拟计算的研究中,由于其散射过程较为复杂,难以通过麦克斯韦方程对多个散射体的散射过程进行严格的理论计算和解释,目前一般通过辐射传输理论来求解。辐射传输理论是定量研究经过群粒子的多次散射和吸收后,辐射场的统计光学散射特性变化规律的理论<sup>[42]</sup>,其主要的解析方法包括蒙特卡罗模拟、分离坐标法和近代解析求解,其中蒙特卡罗模拟是目前求解辐射传输方程的最为有效方

法之一。蒙特卡罗模拟是一种随机统计方法,通过模拟大量光子与粒子的相互作用,从而得到偏振散射光的统计分布特性。Li 等<sup>[43]</sup>设计开发了后向和多角度多组分的蒙特卡罗模拟程序,从理论上证明具有特定散射角的一些斯托克斯参数可以对水溶性颗粒、水滴和沙子等进行分类,初步研究表明偏振检测在空气污染监测的源解析中具有一定的应用潜力。

#### 3.2 单粒子散射过程的模拟计算

为了求解偏振光在群粒子中的传播过程,必须求解单粒子散射特性,因为它是求解群粒子辐射传输方程的基础。对单粒子散射过程的模拟计算方法较多,主要方法的对比和介绍<sup>[44-51]</sup>如表 1 所示。

在 1908 年, Gustav Mie 给出了对各向同性球的计算结果。其方法的核心是将入射光和散射光在球坐标系下表达成球谐函数的形式,并根据散射小球的表面电磁场约束求解出散射光球谐函数的系数,进而表示整个散射光。因此米散射一般也被称为米解 (Mie solution),即 Maxwell 方程组对散射体为一个各向同性球时的严格解。米解是严格解,而不是一个近似解,适用于任意粒径的球,包括在瑞利散射范围的球。一个由米散射得到的球散射矩阵有极高的对称性,对于其他形态的粒子,它们的散射矩阵显然会随着自身取向的变化而变化。一般情况下研究其在随机取向下的平均散射矩阵,或者令此散射体遍历所有取向,并求其

表 1 不同单粒子散射模拟计算方法的对比  
Table 1 Comparison of different single particle scattering simulation methods

Method	Process	Advantage	Disadvantage	Ref.
SVM	Separate variables, boundary conditions	Fast speed and high precision	Only ellipsoids can be calculated	[44-45]
FDTD	Difference and lattice point solutions to solve Maxwell equations	Get the overall information and any shape that changes over time	Difficult to deal with boundary issues	[46-48]
Mie	Solve Maxwell equations	Fast speed and higher precision	Only balls can be calculated	[49]
DDA	Abstract to multiple dipoles	Can get the overall information over time, arbitrary shape	Slow speed and the accuracy increases slowly with the number of dipoles	[50-51]

产生的散射矩阵的平均矩阵。

对于任意粒子光散射物理过程的模拟计算方法非常多, T-matrix 的核心是将入射光场和出射光场进行球谐函数分解后, 得到系数之间的转换矩阵; 基于微分方程的方法主要有分离变量法 (SVM)、有限时域差分 (FDTD) 法、有限元方法 (FEM)、离散米形式 (DMF) 等; 基于体积分的方法主要有极子法 (MoM)、离散偶极子近似 (DDA) 法; 基于面积分的方法主要有零场法 (NFM) 等。

SVM 的核心思想是认为散射过程的 Maxwell 方程组可以用分离变量的方法求解, 从而将方程组的解用球谐函数进行展开, 并用电磁场的边界条件解出入射光和出射光的球谐函数的系数关系<sup>[44-45]</sup>。SVM 方法的最大优势为: 它是通过直接求解方程得到的, 中间不存在近似过程, 因此精度非常高。但是, 边界条件的限制使其能求解的散射体类型有限, 它一般只能用来求解旋转椭球体 (椭圆绕其长轴或短轴形成的立体图形), 或者更进一步到多个旋转椭球体的联合。

FDTD 法先在空间中以一个长方体包裹散射体, 再将空间离散化, 对于其中的每个格点建立时间上的差分方程, 随后逐步迭代模拟光入射粒子的过程<sup>[46-48]</sup>。此方法的优势是物理图像非常清晰、编程简单, 支持模拟任意形态的散射体, 支持模拟任意形式 (比如脉冲光) 的入射光; 其劣势是边界条件处理难度大, 当它用长方体包裹粒子时, 长方体边界处的非粒子区域虽然和长方体外在物理上都属于介质区域, 没有任何区别, 但是在微分方程里, 二者却有区别。

FEM 和 FDTD 法类似, 不同的是 FEM 先将 Maxwell 方程组变换到频域, 再将其离散化求解。对应到数学方法上, FDTD 法是求解双曲微分方程的初值问题, 而 FEM 是求解椭圆方程的边界条件问题。FDTD 法遇到的边界条件问题, 在 FEM 中被转化为如何使得散射光场满足远场条件 (或辐射条件)<sup>[52]</sup>。FEM 的优势和 FDTD 法相同, 都是编程上易于实现, 支持计算任意形态的散射体。

DMF 的主要思想是先采用球坐标系描绘散射场, 在进行离散化得到差分方程时, 并不离散化所有的坐标, 只离散粒径和天顶角, 保留方位角, 这样依旧可以

将电磁场表示为球谐函数的形式<sup>[49]</sup>。DMF 的优势是其自动满足远场条件, 劣势是只能用来计算轴对称粒子, 使用范围有限。

MoM 和 DDA 法的核心都是先将介质内部的电磁场写作电磁场的格林积分的形式, 随后离散化整个散射体区域, 对散射过程的求解被退化为线性方程组的求解。MoM 和 DDA 法的区别在于这个方程组的未知量的选取, MoM 选的是总场强<sup>[53]</sup>, 而 DDA 法选的是激发场。DDA 法先将散射体划分为多个微元, 并将每个微元视作一个偶极子。整个散射过程最终会被等效为这些偶极子在相互作用以及外场下达到的平衡分布, 散射光则是这些偶极辐射之和。体积分法的主要优势在于支持任意形态、非均匀的散射体, 以及各向异性的散射体, 它还自动满足远场条件; 它的劣势是精度随着模型的精细化程度缓慢增长, 并且消耗大量的计算资源。

NFM 的核心是基于格林函数的面积分。它首先假定散射体在其表面的场源内部产生的场与入射光场相消 (这是其命名的来源), 由此解得表面场源; 然后, 由表面场源的格林函数积分得到散射场<sup>[54]</sup>。NFM 的优势是精度高, 在处理轴对称粒子时速度非常快; 劣势是处理非轴对称粒子时速度慢, 而且需要手动调整球谐函数展开时的截止参数, 容易遇到收敛上的问题。

模拟算法发展依赖于计算机的计算能力。从对计算机计算能力的需求、可计算散射体的形态、是否只计算平均散射矩阵来看, 上述模拟方法及其对应的计算程序可以大致分为两类: 第一类算法关注散射体的平均散射矩阵, 以及散射体的消光、吸收、散射截面等信息, 并不计算某个特定取向下的散射矩阵。这一类算法一般对散射体的形态有特定的要求, 具有一定的对称性 (比如椭球等), 难以计算任意形状的散射体。这类算法对计算机计算能力、储存能力的要求不高, 且计算精度较高。这一类算法如米散射法、SVM、DMF 等, 也可先计算出 T-matrix, 再给出平均散射矩阵。相对于第一类算法, 第二类算法既可以给出散射体在任意取向下的散射矩阵, 而非平均散射矩阵, 也可计算消光、吸收、散射截面等信息。这一类算法一般不对散射体的形态提出要求, 而是通过将空间离散化的方式来接收任意形态散射体的信息。它们对计算机计算能力

的要求比第一类算法高得多,在大粒径(5 μm 以上)的情况下,对计算资源的消耗较大,其计算结果往往没有第一类算法精确。第二类算法包括 FDTD 法、FEM、DDA 法等。

随着计算机计算能力的不断提高,DDA 法已经成为一种获得不规则散射体信息的有效方法。Draine<sup>[50]</sup>将 DDA 法引入到散射体的计算中,基于 DDA 法完成了对孤立的均匀球体和两个连续球体的散射过程和吸收过程的计算。Chen 等<sup>[51]</sup>开发了基于 DDA 法的 NMDDA 法,将 DDA 法采用 Nvidia 公司显卡进行计算,采用 GPU 加速技术,大幅度提升了 DDA 法的计算速度和输出结果的全面性,并且通过对污染物悬浮粒子实际检测和模拟计算的对比,证明了 NMDDA 法的准确性。

### 4 悬浮粒子的光学信息提取

表征悬浮粒子的两种主要技术是测量技术和理论计算模拟技术。当前粒子的实测信号模式包含从单个或几个离散信号<sup>[55-56]</sup>到大角度范围内的连续一维<sup>[57]</sup>和二维光散射图案<sup>[58]</sup>,而理论计算方法覆盖了球形颗粒的 Lorenz-Mie (LM) 理论<sup>[59-60]</sup>到表面和体积离散方法<sup>[61]</sup>,分别适用于任意形状的均质和非均质颗粒。

悬浮粒子通常具有宽的尺寸、复杂的结构和形态以及复合的微观物理特征。在光与粒子的相互作用中,偏振态的变化包含了粒子微观物理特性的丰富信

息<sup>[35,62]</sup>,因此悬浮粒子复合属性的一些细化区分和量化提取研究多采用偏振散射测量信号,如偏振光学粒子计数器<sup>[38]</sup>。该计数器通过散射信号确定粒径,并通过偏振信号提取形态特征,定性地表征颗粒的类型。Liao 等<sup>[37]</sup>根据获取的偏振测量信号来检索气溶胶复合物的折射率。

悬浮粒子测量得到的数据往往是复杂的时序脉冲信号,因此开发合适的数据分析算法至关重要。目前,悬浮粒子检测数据分析方法主要为多维偏振谱图、神经网络、属性反演算法等。

#### 4.1 多维偏振谱图的应用

每种悬浮粒子都具有自己独特的粒径、折射率、形态等复合的微观物理属性,仅通过单一光学指标难以实现多种粒子的精准区分,引入高维度的偏振矢量组数据是一种提升粒子信息获取能力的途径。在多通道并行的偏振散射测量中,不同的悬浮粒子具有不同的偏振中心谱,即多维偏振指标的均值组合,以指标分布的两倍方差来衡量偏振特征分辨率时,发现这种指标组合具有较好的稳定性。因此实际运用中将未知悬浮粒子的偏振中心谱与已知粒子进行比对,可以有效提升悬浮粒子的分类识别能力。

Liao 等<sup>[63]</sup>研究了不同样品的偏振中心谱及偏振指标分布,如图 7 所示。他们在悬浮粒子偏振散射信号的研究中,为了方便分析不同入射光下散射光斯托克

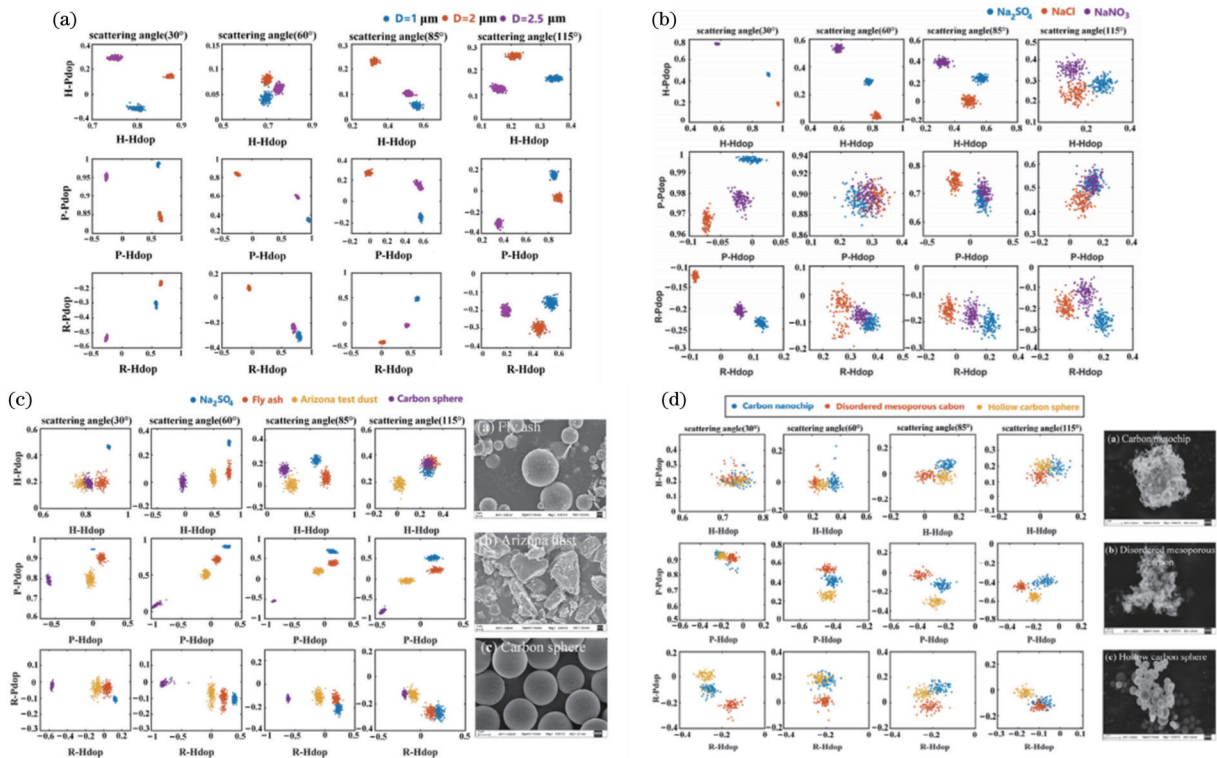


图 7 不同样品的偏振中心谱及偏振指标分布<sup>[63]</sup>。(a)不同粒径的气溶胶;(b)不同吸收特性的气溶胶;(c)不同形态的气溶胶;(d)几种成分类似但形状不规则的气溶胶

Fig. 7 Distribution of polarization center spectra and polarization indices of different samples<sup>[63]</sup>. (a) Aerosols with different particle sizes; (b) aerosols with different absorption characteristics; (c) aerosols with different forms; (d) several aerosols with similar compositions but irregular shapes

斯参量的变化,提出一种新的偏振指标记录方法,即

$$\begin{cases} H_{\text{dop}} = \frac{S_1}{S_0} \\ P_{\text{dop}} = \frac{S_2}{S_0} \end{cases}, \quad (1)$$

式中: $H_{\text{dop}}$ 为水平偏振态对应的偏振指标; $P_{\text{dop}}$ 为 $45^\circ$ 偏振态对应的偏振指标; $S_0$ 、 $S_1$ 、 $S_2$ 分别为偏振光对应的 Stokes 参量。他们在 4 个散射角度上开展测量,每个角度采用 3 种入射偏振态[(水平线偏振光(H)、 $45^\circ$ 偏振光(P)、右旋圆偏振光(R)]各获取 6 个偏振指标,即  $H_{\text{dop,H}}$ 、 $H_{\text{dop,P}}$ 、 $H_{\text{dop,R}}$ 、 $P_{\text{dop,H}}$ 、 $P_{\text{dop,P}}$ 、 $P_{\text{dop,R}}$ ,对单粒子共采集 24 个偏振指标。首先,检测不同粒径的气溶胶样品,结果如图 7(a)所示,证明了基于样品的偏振指标可以实现对不同粒径气溶胶的识别。其次,绘制了 3 种水溶性盐  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ 、 $\text{NaCl}$ 、 $\text{NaNO}_3$  的偏振指标散点图,结果如图 7(b)所示,证明了该方法可用于评估偏振参数与气溶胶折射率之间的关系。然后,对具有不同吸收特性的气溶胶进行研究,结果如图 7(c)所示,4 种类型的样本数据表现出不同的划分和聚类,其偏振参数值随着颗粒吸收特性的增加而减小,因此可以基于偏振指标进行气溶胶吸收性质或吸收型颗粒比例变化的研究。最后,对 3 种形态不规则的气溶胶样品——碳纳米片、无序介孔碳、空心碳球进行检测,这些样品具有复杂的不规则形态,检测和分析难度较高,检测结果如图 7(d)所示,结果显示,对于这些成分相似但形态不规则的气溶胶样品,基于多维偏振指标的检测可以实现精确识别,且 $45^\circ$ 线偏振入射态最适合这些颗粒物的区分<sup>[64]</sup>。

### 4.2 神经网络的应用

近年来,基于神经网络的计算机识别方法快速发展,已经在图像分类、人脸识别、语音识别等取得了积极成果。深度学习在光学领域也有相当多的应用,如基于深度学习方法的图像光学噪声消除和分辨率增强<sup>[65]</sup>以及光信号处理和特征提取<sup>[66]</sup>。

使用深度学习辅助悬浮粒子的检测和分析近年来也取得不少研究成果。Li<sup>[67]</sup>提出一种自动编码器残差网络,可以根据遥感数据估算  $\text{PM}_{2.5}$  浓度,从而获得较高的时空分辨率和精度。Wu 等<sup>[68]</sup>使用 CNN 辅助无标签生物气溶胶图像的重建和分类,在训练集上获得了较高的准确度( $>94\%$ )。Leśkiewicz 等<sup>[69]</sup>提出一个由 22 个密集神经网络和决策树组成的模型,该模型使用  $35^\circ$  和  $145^\circ$  的散射光和荧光信号对 48 种生物气溶胶颗粒进行分类,其神经网络的决策树如图 8 所示。上述研究将散射光和荧光信号用于气溶胶分类,在测试集上最终结果的准确度小于  $80\%$ ,在实测应用中还有提升空间。

深度学习中的模型(例如 CNN)可以视为功能强大的特征提取器,如用于多波段偏振成像系统中恢复丢失的信息<sup>[70]</sup>。最近的研究表明,多维偏振信号的引

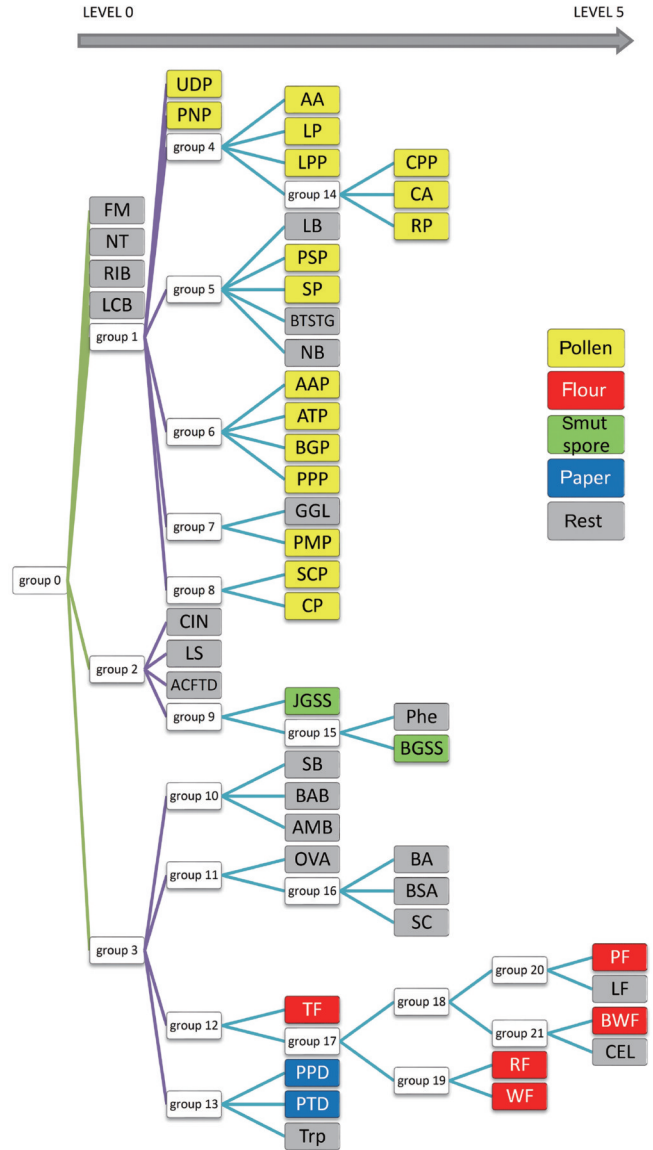


图 8 基于人工神经网络的决策树<sup>[69]</sup>

Fig. 8 Decision tree based on artificial neural network<sup>[69]</sup>

入可增强悬浮粒子的分类能力<sup>[36]</sup>。Yuan 等<sup>[71]</sup>设计开发了一种基于周期典型相关分析(PCCA)方法的机器学习方法,用于分析测量的斯托克斯参量与 5 种悬浮颗粒物(Si、K、Fe、Ca 和 Zn)浓度之间的相关性;结合局部加权线性回归(LWLR)和自回归移动平均(ARMA)模型,提出一种用于预测悬浮颗粒浓度的模型,该模型的组成和测量结果如图 9 所示。

Wu 等<sup>[68]</sup>设计开发了两种深度神经网络,实现了对 5 种生物气溶胶颗粒的识别,验证了深度神经网络在悬浮粒子识别中具有巨大的应用价值。该研究使用全息显微镜获取生物气溶胶颗粒的衍射全息图,随后在经过训练的深度神经网络中以亚微米分辨率重建每个生物气溶胶颗粒的振幅和相位图像,最后将成像的生物气溶胶颗粒自动分类,并计算空气中每类气溶胶的密度,最终在 5 个样品(百慕大草花粉、橡树花粉、豚草花粉、曲霉菌孢子、链格孢子)的识别中实现了大于



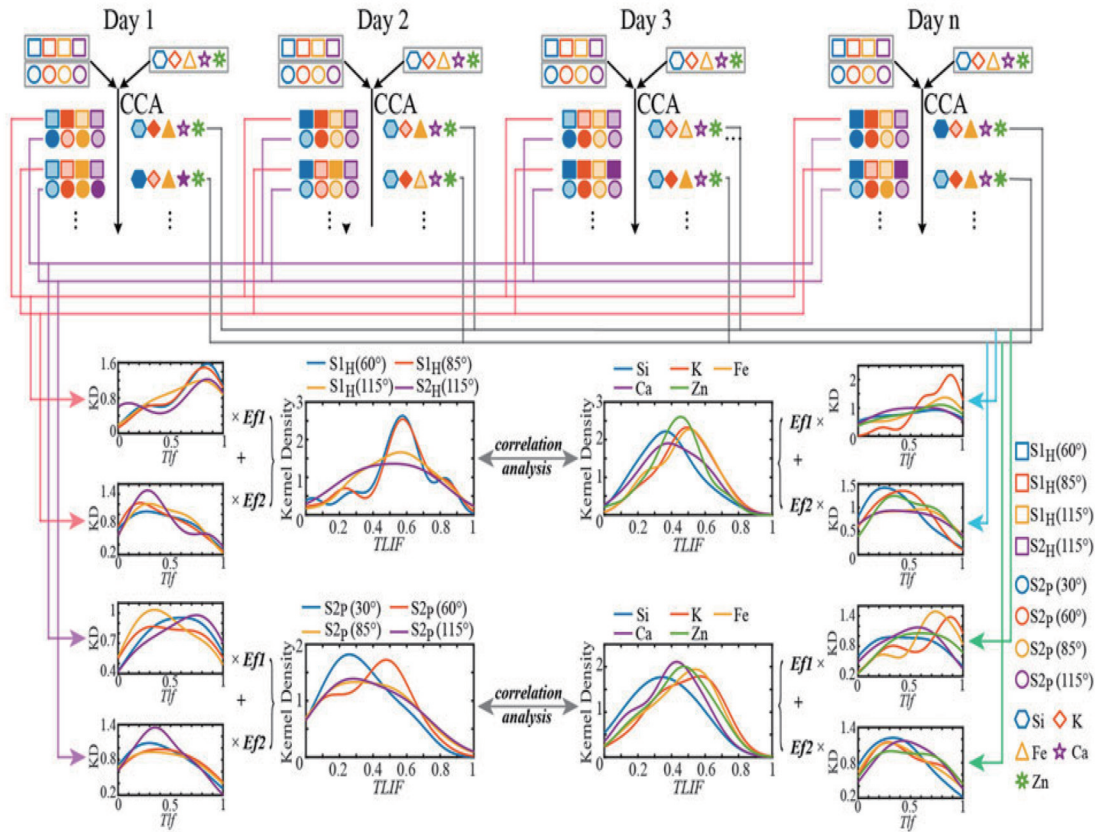


图 9 基于 PCCA 方法的悬浮粒子浓度预测模型及结果<sup>[71]</sup>

Fig. 9 Suspended particle concentration prediction model and results based on PCCA method<sup>[71]</sup>

94% 的分类准确率。

Xu 等<sup>[72]</sup>设计开发了一种深度神经网络,用于识别气溶胶悬浮粒子散射过程中的脉冲式偏振信号特性,进而实现了基于多维偏振指标体系的悬浮粒子在线实时精准识别。在该项研究中,他们获得了多角度、高通量的单粒子偏振散射脉冲组,并基于这些数据设计了基于一维 CNN 架构的深度学习网络。图 10(a)所示为 6 种样品在 1.5 ms 内的实测信号,其中横轴为时间,纵轴为由 PMT 记录的样品散射偏振信号强度。图 10(b)所示为上述多通道时间序列信号一维卷积的计算过程。图 10(c)所示为该模型在训练后的召回率矩阵,图 10(d)所示为该模型在训练后的准确率矩阵。该研究建立的基于一维 CNN 架构的深度卷积网络在单粒子偏振散射信号的识别上显示出很高的分类准确率(>98%),能够以非常低的比例(<0.1%)实现气溶胶识别,且在测试集和训练集中未包含的样本类型中也表现出良好的泛化能力。

### 4.3 属性反演算法的应用

上述研究结果表明,来自悬浮粒子多角度偏振散射的各种信号模式中包含与单个粒子微观特征相关的丰富信息,深度学习模型是一种从这些多维偏振信号中提取特征的有效途径,展示了在多维偏振散射指标体系中,通过引入深度学习算法实现悬浮粒子属性反演和逐个识别分类的可行性。

Hu 等<sup>[73]</sup>提出一种从双散射角光学粒子计数器(OPC)观测中推断气溶胶折射率和尺寸分布的方法。Espinosa 等<sup>[74]</sup>提出一种基于偏振成像浊度计和粒子吸收光度计的协同检索方法,可以通过相位函数、极化度和吸收系数研究气溶胶悬浮粒子的类型,并发现生物燃烧颗粒相对于其他气溶胶类型具有更高的实折射率和虚折射率。上述方法均是基于体散射测量的,无法避免高浓度悬浮粒子多次散射的问题,从而导致实验误差较大、检索失效;且体散射测量需要粒径仪的辅助,流程复杂繁琐。最近基于单粒子多角度散射测量技术的发展为解决该类问题提供了方向。Guo 等<sup>[75]</sup>基于采集的单悬浮粒子散射信号中的斯托克斯参量,使用概率密度函数(PDF)进行加权,并将其与 Mie 散射理论进行比较,迭代检索匹配实测信号的复折射率和粒径分布最优解。6 种气溶胶样品的实验结果验证了该方法的有效性和可行性。此外,已有研究人员将深度学习算法应用于反演中,如孙晓虎等<sup>[76]</sup>利用辐射传输模型模拟不同参数下获得的辐射信息,并基于深度置信网络对模拟样本进行训练,进而获得气溶胶反演模型,展示了深度学习算法在气溶胶反演中的可行性。

## 5 悬浮粒子检测技术的发展与展望

悬浮粒子是地球大气环境的重要组成部分,时刻影响着气候环境和人类社会的各种活动。尽管以污染

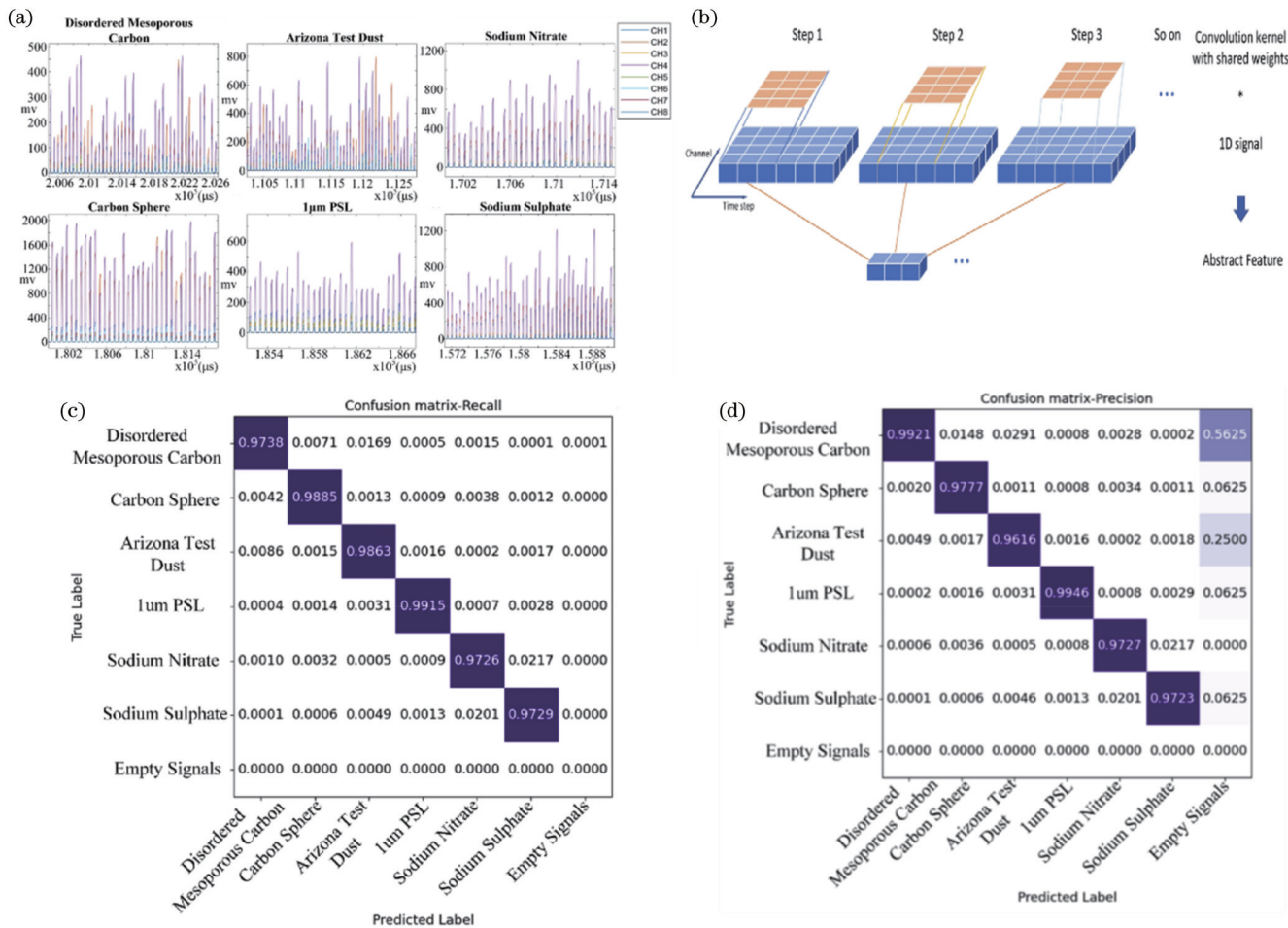


图 10 基于 CNN 的气溶胶悬浮粒子识别方法及结果<sup>[72]</sup>。(a)测量信号;(b)基于一维 CNN 架构的型号计算过程;(c)测试集召回矩阵;(d)测试集精度矩阵

Fig. 10 Method and results of aerosol suspension particle identification based on CNN<sup>[72]</sup>. (a) Measured signals; (b) one-dimensional convolution computation process on 4 channel time series signals with kernel size 3, stride 1; (c) recall matrix on test set; (d) precision matrix on test set

物悬浮粒子为来源的悬浮粒子数仅占气溶胶总量的 10% 左右,但是其对人类健康的影响却不可忽视。悬浮粒子在时间和空间上的双重不确定性,导致对其实时监测、精确识别、可靠预测的难度大幅提升,因此引入新兴的检测分析技术至关重要。光学检测方法中的散射偏振测量方法,不仅能对粒子散射行为进行检测,还能依靠偏振属性有效扩充测量信息的维度,为粒子的检测识别提供了更多的可能性。本文综述了悬浮粒子的检测技术、计算理论和信息提取的国内外进展。在技术上,分别概述了群粒子和单粒子两种测量方式,尤其是偏振散射相关技术;在悬浮粒子光学过程的理论方法上,重点介绍了单粒子散射过程的多种建模计算方法;从多维偏振谱图、神经网络、属性反演 3 个方面概括了悬浮粒子检测数据的分析与应用。这些研究表明散射偏振测量在悬浮粒子测量领域具有重要的应用价值,也为后续研究人员在更复杂气溶胶悬浮粒子测量方面提供了重要解决思路。

在悬浮粒子的光学测量与分析方法的发展中,总

体的发展趋势是增加测量参数,拓展粒子信息。在测量方法方面,单一地检测散射光强度或荧光强度,从而得到粒子的浓度或粒径等信息,但难以获得粒子成分、结构等相关信息,因此引入偏振测量方法可以有效增加信息维度和表征灵敏度,从而获得关于粒子成分、形态、结构等复杂的物理属性。悬浮粒子检测技术在未来的发展方向主要为:1)目前的测量方法主要集中在单波长测量方面,激光器技术不断迭代<sup>[77-78]</sup>,多波长测量方法的实现有了更多的仪器基础支持,通过增加测量波长的维度,扩大气溶胶成分的识别范围、提高准确度;2)可发掘更多高灵敏、高特异性的表征指标,对悬浮粒子的双折射、核壳结构等微观属性进行更细化的鉴别和反演;3)目前的测量方法尚未可以应用到复杂多样的外场测试环境以及满足多样化的应用需求,未来通过对仪器持续地优化改造,有望提高测量方法的稳定性和准确性,从而获得更高的应用价值。在分析方法方面,人工智能领域持续取得重要突破,各种深度学习方法方兴未艾、层出不穷,未来可以将深度学习与

气溶胶粒子的偏振特征相结合,实现颗粒物类型的精准识别和质量浓度的时序预测,并借助多维偏振测量技术研究气溶胶的演化过程。

## 参 考 文 献

- [1] Lee S H, Allen H C. Analytical measurements of atmospheric urban aerosol[J]. *Analytical Chemistry*, 2012, 84(3): 1196-1201.
- [2] Reche C, Querol X, Alastuey A, et al. New considerations for PM, black carbon and particle number concentration for air quality monitoring across different European cities[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2011, 11(13): 6207-6227.
- [3] Zhang X L, Huang Y B, Rao R Z, et al. Retrieval of effective complex refractive index from intensive measurements of characteristics of ambient aerosols in the boundary layer[J]. *Optics Express*, 2013, 21(15): 17849-17862.
- [4] Raut J C, Chazette P. Radiative budget in the presence of multi-layered aerosol structures in the framework of AMMA SOP-0 [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2008, 8(22): 6839-6864.
- [5] Sharma Ghimire P, Tripathi L, Chen P F, et al. Linking the conventional and emerging detection techniques for ambient bioaerosols: a review[J]. *Reviews in Environmental Science and Bio/Technology*, 2019, 18(3): 495-523.
- [6] Castelo F F B. Human exposure assessment related to oil activities in Ecuador: from the air quality monitoring to the study of metallic contaminants transfer in the soil-plant continuum[D]. Toulouse: Université Toulouse III -Paul Sabatier, 2017.
- [7] Block M L, Calderón-Garcidueñas L. Air pollution: mechanisms of neuroinflammation and CNS disease[J]. *Trends in Neurosciences*, 2009, 32(9): 506-516.
- [8] Maher B A, Ahmed I A M, Karloukovski V, et al. Magnetite pollution nanoparticles in the human brain[J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2016, 113(39): 10797-10801.
- [9] Randriamiarisoa H, Chazette P, Couvert P, et al. Relative humidity impact on aerosol parameters in a Paris suburban area [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2006, 6(5): 1389-1407.
- [10] Miffre A, David G, Thomas B, et al. Volcanic aerosol optical properties and phase partitioning behavior after long-range advection characterized by UV-Lidar measurements[J]. *Atmospheric Environment*, 2012, 48: 76-84.
- [11] Olin J G, Sem G J. Piezoelectric microbalance for monitoring the mass concentration of suspended particles[J]. *Atmospheric Environment*, 1971, 5(8): 653-668.
- [12] Chueinta W, Hopke P K. Beta gauge for aerosol mass measurement[J]. *Aerosol Science and Technology*, 2001, 35(4): 840-843.
- [13] 葛良全, 刘合凡, 郭生良, 等. 大气颗粒物浓度与重金属元素分析研究进展[J]. *科技导报*, 2014, 32(33): 67-74.  
Ge L Q, Liu H F, Guo S L, et al. Progress in analysis of concentration and contents of heavy metals in atmosphere particulate matter[J]. *Science & Technology Review*, 2014, 32(33): 67-74.
- [14] 侯可勇, 董璨, 王俊德, 等. 飞行时间质谱仪新技术的进展及应用[J]. *化学进展*, 2007, 19(S1): 385-392.  
Hou K Y, Dong C, Wang J D, et al. New developments and applications in time-of-flight mass spectrometer[J]. *Progress in Chemistry*, 2007, 19(S1): 385-392.
- [15] Ferri F, Bassini A, Paganini E. Modified version of the Chahine algorithm to invert spectral extinction data for particle sizing[J]. *Applied Optics*, 1995, 34(25): 5829-5839.
- [16] Jones A R. Light scattering for particle characterization[J]. *Progress in Energy and Combustion Science*, 1999, 25(1): 1-53.
- [17] Scrivner S M, Taylor T W, Sorensen C M, et al. Soot particle size distribution measurements in a premixed flame using photon correlation spectroscopy[J]. *Applied Optics*, 1986, 25(2): 291-297.
- [18] Hirdleman E D, Oechsle V, Chigier N A. Response characteristics of laser diffraction particle size analyzers: optical sample volume extent and lens effects[J]. *Optical Engineering*, 1984, 23(5): 610-619.
- [19] Wyatt P J, Schehrer K L, Phillips S D, et al. Aerosol particle analyzer[J]. *Applied Optics*, 1988, 27(2): 217-221.
- [20] Petzold A, Rasp K, Weinzierl B, et al. Saharan dust absorption and refractive index from aircraft-based observations during SAMUM 2006[J]. *Tellus B*, 2009, 61(1): 118-130.
- [21] Han Y, Lü D R, Rao R Z, et al. Determination of the complex refractive indices of aerosol from aerodynamic particle size spectrometer and integrating nephelometer measurements[J]. *Applied Optics*, 2009, 48(21): 4108-4117.
- [22] Groß S, Freudenthaler V, Wirth M, et al. Towards an aerosol classification scheme for future EarthCARE lidar observations and implications for research needs[J]. *Atmospheric Science Letters*, 2015, 16(1): 77-82.
- [23] Wu S H, Song X Q, Liu B Y, et al. Mobile multi-wavelength polarization Raman lidar for water vapor, cloud and aerosol measurement[J]. *Optics Express*, 2015, 23(26): 33870-33892.
- [24] 狄慧鸽, 侯晓龙, 赵虎, 等. 多波长激光雷达探测多种天气气溶胶光学特性与分析[J]. *物理学报*, 2014, 63(24): 244206.  
Di H G, Hou X L, Zhao H, et al. Detections and analyses of aerosol optical properties under different weather conditions using multi-wavelength Mie lidar[J]. *Acta Physica Sinica*, 2014, 63(24): 244206.
- [25] Costabile F, Barnaba F, Angelini F, et al. Identification of key aerosol populations through their size and composition resolved spectral scattering and absorption[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2013, 13(5): 2455-2470.
- [26] Groß S, Esselborn M, Weinzierl B, et al. Aerosol classification by airborne high spectral resolution lidar observations[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2013, 13(5): 2487-2505.
- [27] Kaye P H, Barton J E, Hirst E, et al. Simultaneous light scattering and intrinsic fluorescence measurement for the classification of airborne particles[J]. *Applied Optics*, 2000, 39(21): 3738-3745.
- [28] Ding L, Zhang J B, Zheng H Y, et al. A method of simultaneously measuring particle shape parameter and aerodynamic size[J]. *Atmospheric Environment*, 2016, 139: 87-97.
- [29] Renard J B, Thauray C, Mineau J L, et al. Small-angle light scattering by airborne particulates: environment S.A. continuous particulate monitor[J]. *Measurement Science and Technology*, 2010, 21(8): 085901.
- [30] Parks J W, Schmidt H. Optofluidic chips with integrated waveguides and active microfluidics for single particle detection [C]/2016 IEEE Photonics Conference (IPC), October 2-6, 2016, Waikoloa, HI, USA. New York: IEEE Press, 2017: 370-371.
- [31] Song J W, Zeng N, Guo W, et al. Stokes polarization imaging applied for monitoring dynamic tissue optical clearing[J]. *Biomedical Optics Express*, 2021, 12(8): 4821-4836.
- [32] Xu Y, Shi L X, Guan T, et al. Optimization of a quantum weak measurement system with its working areas[J]. *Optics Express*, 2018, 26(16): 21119-21131.
- [33] Churnside J H, Marchbanks R D, Vagle S, et al. Stratification, plankton layers, and mixing measured by airborne lidar in the Chukchi and Beaufort Seas[J]. *Deep Sea Research Part II : Topical Studies in Oceanography*, 2020, 177: 104742.
- [34] Liu H, Chen P, Mao Z H, et al. Subsurface plankton layers observed from airborne lidar in Sanya Bay, South China Sea[J]. *Optics Express*, 2018, 26(22): 29134-29147.
- [35] Liu J, Liu J H, He X Q, et al. Retrieval of marine inorganic particle concentrations in turbid waters using polarization signals

- [J]. International Journal of Remote Sensing, 2020, 41(13): 4901-4922.
- [36] Li D, Chen F, Zeng N, et al. Study on polarization scattering applied in aerosol recognition in the air[J]. Optics Express, 2019, 27(12): A581-A595.
- [37] Liao R W, Zeng N, Zeng M M, et al. Estimation and extraction of the aerosol complex refractive index based on Stokes vector measurements[J]. Optics Letters, 2019, 44(19): 4877-4880.
- [38] Kobayashi H, Hayashi M, Shiraishi K, et al. Development of a polarization optical particle counter capable of aerosol type classification[J]. Atmospheric Environment, 2014, 97: 486-492.
- [39] Wang Y, Liao R, Dai J C, et al. Differentiation of suspended particles by polarized light scattering at 120°[J]. Optics Express, 2018, 26(17): 22419-22431.
- [40] Chen Y R, Zeng N, Chen S R, et al. Study on morphological analysis of suspended particles using single angle polarization scattering measurements[J]. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 2019, 224: 556-565.
- [41] Li D, Zeng N, Zhan D J, et al. Differentiation of soot particulates in air using polarized light scattering method[J]. Applied Optics, 2017, 56(14): 4123-4129.
- [42] Tuchin V, Wang L V, Zimnyakov D A. Optical polarization in biomedical applications[M]. Cham: Springer, 2006.
- [43] Li D, Zeng N, Zeng M M, et al. Numerical simulations on polarized photon scattering for classification of air pollutants[J]. Proceedings of SPIE, 2015, 9795: 979506.
- [44] Wriedt T, Comberg U. Comparison of computational scattering methods[J]. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 1998, 60(3): 411-423.
- [45] 王宝发. 微波遥感理论[M]. 北京: 北京航空航天大学出版社, 1989.
- Wang B F. Microwave remote sensing theory[M]. Beijing: Beijing University of Aeronautics & Astronautics Press, 1989.
- [46] Sui W, Christensen D A, Durney C H. Extending the two-dimensional FDTD method to hybrid electromagnetic systems with active and passive lumped elements[J]. IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques, 1992, 40(4): 724-730.
- [47] Berenger J P. Three-dimensional perfectly matched layer for the absorption of electromagnetic waves[J]. Journal of Computational Physics, 1996, 127(2): 363-379.
- [48] Berenger J P. Perfectly matched layer for the FDTD solution of wave-structure interaction problems[J]. IEEE Transactions on Antennas and Propagation, 1996, 44(1): 110-117.
- [49] Rother T, Schmidt K. The discretized MIE-formalism for electromagnetic scattering[J]. Progress in Electromagnetics Research, 1997, 17: 91-183.
- [50] Draine B T, Flatau P J. Discrete-dipole approximation for scattering calculations[J]. Journal of the Optical Society of America A, 1994, 11(4): 1491-1499.
- [51] Chen S R, Zeng N, Zhan D J, et al. Ambient aerosols identification based on polarization indices during a field test[J]. Proceedings of SPIE, 2018, 10819: 1081916.
- [52] Harrach B. An introduction to finite element methods for inverse coefficient problems in elliptic PDEs[J]. Jahresbericht Der Deutschen Mathematiker-Vereinigung, 2021, 123(3): 183-210.
- [53] Lakhtakia A, Mulholland G W. On two numerical techniques for light scattering by dielectric agglomerated structures[J]. Journal of Research of the National Institute of Standards and Technology, 1993, 98(6): 699-716.
- [54] Doicu A, Mishchenko M I. An overview of the null-field method II: convergence and numerical stability[J]. Physics Open, 2020, 3: 100019.
- [55] van der Pol E, Coumans F A W, Sturk A, et al. Refractive index determination of nanoparticles in suspension using nanoparticle tracking analysis[J]. Nano Letters, 2014, 14(11): 6195-6201.
- [56] Moteki N. Capabilities and limitations of the single-particle extinction and scattering method for estimating the complex refractive index and size-distribution of spherical and non-spherical submicron particles[J]. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 2020, 243: 106811.
- [57] Zhang L, Chen X Y, Zhang Z X, et al. Scattering pulse of label free fine structure cells to determine the size scale of scattering structures[J]. Review of Scientific Instruments, 2016, 87(4): 044301.
- [58] Holler S, Pan Y L, Chang R K, et al. Two-dimensional angular optical scattering for the characterization of airborne microparticles[J]. Optics Letters, 1998, 23(18): 1489-1491.
- [59] Frisvad J R, Kragh H. On Ludvig Lorenz and his 1890 treatise on light scattering by spheres[J]. The European Physical Journal H, 2019, 44(2): 137-160.
- [60] Mishchenko M I, Travis L D. Capabilities and limitations of a current FORTRAN implementation of the *T*-matrix method for randomly oriented, rotationally symmetric scatterers[J]. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 1998, 60(3): 309-324.
- [61] Yurkin M A, Hoekstra A G. The discrete dipole approximation: an overview and recent developments[J]. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 2007, 106(1/2/3): 558-589.
- [62] Hamill P, Piedra P, Giordano M. Simulated polarization as a signature of aerosol type[J]. Atmospheric Environment, 2020, 224: 117348.
- [63] Liao R W, Zeng N. Polarization characterization based on multidimensional Stokes vectors applied in aerosol identification [J]. Proceedings of SPIE, 2019, 11192: 111920K.
- [64] Liao R W, Guo W, Zeng N, et al. Polarization measurements and evaluation based on multidimensional polarization indices applied in analyzing atmospheric particulates[J]. Applied Sciences, 2021, 11(13): 5992.
- [65] Kuang X D, Sui X B, Liu Y, et al. Single infrared image optical noise removal using a deep convolutional neural network[J]. IEEE Photonics Journal, 2017, 10(2): 7800615.
- [66] Wang D P, Wang L J. On OCT image classification via deep learning[J]. IEEE Photonics Journal, 2019, 11(5): 3900714.
- [67] Li L F. A robust deep learning approach for spatiotemporal estimation of satellite AOD and PM<sub>2.5</sub>[J]. Remote Sensing, 2020, 12(2): 264-273.
- [68] Wu Y C, Calis A, Luo Y, et al. Label-free bioaerosol sensing using mobile microscopy and deep learning[J]. ACS Photonics, 2018, 5(11): 4617-4627.
- [69] Leśkiewicz M, Kaliszewski M, Włodarski M, et al. Improved real-time bio-aerosol classification using artificial neural networks [J]. Atmospheric Measurement Techniques, 2018, 11(11): 6259-6270.
- [70] Zhao Y Q, Wang M M, Yang G, et al. FOV expansion of bioinspired multiband polarimetric imagers with convolutional neural networks[J]. IEEE Photonics Journal, 2017, 10(1): 6800214.
- [71] Yuan X, Zeng N, Ma H. Correlation analysis of multi-angle simultaneous polarization measurements with the concentration of suspended atmospheric particles[J]. Proceedings of SPIE, 2023, 12561: 125610B.
- [72] Xu Q Z, Zeng N, Guo W, et al. Real time and online aerosol identification based on deep learning of multi-angle synchronous polarization scattering indexes[J]. Optics Express, 2021, 29(12): 18540-18564.
- [73] Hu H L, Li X B, Zhang Y C, et al. Determination of the refractive index and size distribution of aerosol from dual-scattering-angle optical particle counter measurements[J]. Applied Optics, 2006, 45(16): 3864-3870.
- [74] Espinosa W R, Martins J V, Remer L A, et al. Retrievals of aerosol size distribution, spherical fraction, and complex refractive index from airborne *in situ* angular light scattering and

- absorption measurements[J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2019, 124(14): 7997-8024.
- [75] Guo W, Zeng N, Liao R W, et al. Simultaneous retrieval of aerosol size and composition by multi-angle polarization scattering measurements[J]. *Optics and Lasers in Engineering*, 2022, 149: 106799.
- [76] 孙晓虎, 孙林, 贾臣, 等. 深度学习与辐射传输模型协同的气溶胶反演[J]. *光学学报*, 2023, 43(24): 2401006.  
Sun X H, Sun L, Jia C, et al. Aerosol retrieval using deep learning and radiative transfer model[J]. *Acta Optica Sinica*, 2023, 43(24): 2401006.
- [77] 张泽亮, 钱文启, 齐鹏飞, 等. 基于飞秒激光成丝的超连续光谱产生与调控研究进展[J]. *中国激光*, 2023, 50(7): 0708004.  
Zhang Z L, Qian W Q, Qi P F, et al. Research progress in supercontinuum generation and regulation based on femtosecond laser filamentation[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2023, 50(7): 0708004.
- [78] 白振旭, 高嘉, 赵臣, 等. 基于非线性频率变换的长波红外激光器研究进展[J]. *光学学报*, 2023, 43(3): 0314001.  
Bai Z X, Gao J, Zhao C, et al. Research progress of long-wave infrared lasers based on nonlinear frequency conversion[J]. *Acta Optica Sinica*, 2023, 43(3): 0314001.

## Optical Scattering Measurement and Analysis Methods of Suspended Particles

Zeng Nan\*, Yang Likun

*Shenzhen International Graduate School, Tsinghua University, Shenzhen 518055, Guangdong, China*

### Abstract

**Significance** The suspended particle in the environment is an indispensable component of the atmospheric system. Because of the uncertainty in time and space, it is difficult to identify and characterize the suspension system accurately in real time. Researchers in related fields focus on obtaining the online index system of the interaction between suspended particles and light technically, simulating the process and mechanism of the interaction between suspended particles and light theoretically, and then identifying and distinguishing the microphysical properties of suspended particles qualitatively and quantitatively by light scattering detection. The polarization scattering analysis in optical measurement can not only detect the original particle scattering process but also expand the information dimension of experimental data by polarization vector analysis, providing the possibility for the fine identification of different particle classes and attribute differences.

**Progress** The light intensity distribution on the scattered sphere will change when the size, refractive index, structure, and other factors of suspended particles change. Based on the number of particles, the light scattering method can be divided into group suspended particle and single suspended particle detection.

1) Group suspended particle detection technology. In the field of atmospheric climate prediction, the measurement of group suspended particles has broad application value. Han *et al.* designed an aerodynamic particle size spectrometer (APS) probe for measuring aerosol size distribution and an integral turbidimeter for measuring the total light scattering coefficient (Fig. 1) to measure the scattering coefficient, particle size, and complex refractive index of aerosol suspended particles, respectively.

In the field of aerosol identification, LiDAR technology is widely used in aerosol monitoring and identification since it can provide longitudinal profile aerosol distribution information. Costabile *et al.* proposed a scheme to classify aerosol populations based on the spectral optical properties of suspended particles. Groß *et al.* proposed an aerosol identification scheme based on high spectral resolution lidar (HSRL) (Fig. 2) to analyze the two-dimensional graph of the lidar coefficient and linear polarization parameter to determine the aerosol type. However, such methods can only identify a limited number of aerosols and are limited to the analysis of two-component mixtures.

2) Single suspended particle detection technology. Kaye *et al.* designed a suspended particle detection instrument based on spatial light scattering [Fig. 3(a)], which qualitatively analyzed the types of particles through angular scattered light and fluorescence intensity, effectively avoiding false positive detection of bioaerosols. Ding *et al.* designed an instrument that can measure multi-angle scattered light [Fig. 3(a)], enabling measurement and signal acquisition of 250 to 500 suspended particles per minute at three scattering angles ( $0^\circ$ ,  $120^\circ$ , and  $240^\circ$ ), and the experimental results proved its feasibility in identifying spherical and irregular particles. In addition, Renard *et al.* designed a continuous particle monitor based on small-angle scattered light, enabling real-time monitoring of the concentration of suspended particles in the environment. By integrating active microfluidic and optical fluid technology into a single PDMS chip, Parks *et al.* demonstrated the feasibility of microfluidic chips for manipulating and detecting individual fluorescent particles.

3) Polarized light suspended particle measurement technology. The particle information extraction after the

introduction of polarization analysis reduces the high dependence on the scattering space angle and adds a new information dimension based on the polarization vector. At this time, the information of incident light and scattered light is transformed from a single light intensity dimension representation to a four-dimensional Stokes vector representation to realize a more detailed study of the physical properties of particles. It provides a guarantee for the identification of particle size, shape, structure, and more complex physical properties of suspended particles. Chen *et al.* designed an instrument based on single-angle polarization scattering measurement (Fig. 5), and the results showed that ball, ellipsoid, and fiber bundle samples had different mean and variance of polarization indices at 85° scattering angle, which proved the feasibility of the experimental device to identify particle morphology. Li *et al.* designed a device for measuring the polarization scattering of suspended particles (Fig. 6), realizing real-time high-throughput measurement of suspended particles in the air.

4) Theoretical calculation of the scattering process of suspended particles. To solve the propagation process of polarized light in group particles, solving the scattering characteristics of single particles is the basis of solving the radiative transfer equation of group particles. There are many simulation methods for the single particle scattering process (Table 1), including the separation of variables method (SVM), finite difference time domain method (FDTD), Mie theory, and discrete dipole analysis (DDA).

5) Optical information extraction of suspended particles. Suspended particles usually have a wide size distribution, complex composition and morphology, and a variety of complex microphysical characteristics. In the interaction between light and particles, the change in polarization state contains a wealth of information about the microphysical properties of particles. Therefore, some studies on the refinement of composite properties of suspended particles and quantitative extraction mostly use polarization scattering measurement signals. For example, a polarized optical particle counter determines the particle size by scattering signals, extracts morphological features from the polarized signals, and then qualitatively characterizes the type of particles. Liao *et al.* used the obtained polarization-measurement signals to retrieve the refractive index of the aerosol complex.

The data obtained from the measurement of suspended particles are often complex temporal pulse signals, so it is very important to develop suitable data analysis algorithms. At present, the analysis methods of suspended particle detection data mainly include multi-dimensional polarization spectrum (Fig. 8), neural network (Figs. 9–11), and attribute inversion algorithm.

**Conclusions and Prospects** Suspended particles are an important part of the earth's atmospheric environment, which affects the climate environment and various activities of human society. Although the source of pollutant suspended particles only accounts for about 10% of the total aerosol, its impact on people's health cannot be ignored. The double uncertainty in time and space greatly improves the difficulty in real-time monitoring, accurate identification, and reliable prediction of suspended particles. Therefore, it is very important to introduce new detection and analysis techniques. The scattering polarization measurement method in the optical detection method can not only detect the scattering behavior of particles but also expand the dimension of measurement information by relying on the polarization property, which provides more possibilities for particle detection and identification.

In this paper, advances in detection technology, calculation theory, and information extraction of suspended particles are reviewed. The two measurement methods of group particle and single particle are summarized respectively, especially the polarization scattering correlation technique. On the theoretical methods of suspended particle optical processes, several modeling methods of single particle scattering processes are introduced. Finally, the analysis and application of suspended particle detection data are summarized from three aspects: multi-polarization spectrum, neural network, and attribute inversion. These studies show the important application value of scattering polarization measurement in the field of aerosol measurement and also provide an important basis for the follow-up of researchers in more complex aerosol measurement solutions.

**Key words** suspended particles; polarization measurement; scattering characteristic