基于激光散射理论的微小颗粒测量的数值分析

石振华1,2,林冠宇1,王淑荣1,于磊1,曹佃生1

(1. 中国科学院长春光学精密机械与物理研究所,吉林 长春 130033;2. 中国科学院大学,北京 100049)

摘 要:根据算法的准确性、稳定性和快速性原则,讨论了 Mie 散射和 Rayleigh 散射的数值算法。将 Mie 散射理论及 Rayleigh 散射理论的 Matlab 数值结果与 Wiscombe 结果对比分析,证明了此 Matlab 程序的正确性。在此基础上,确定了当颗粒粒径参量 x<0.3 时采用 Rayleigh 散射理论来确定前向某一 角度范围内散射光能分布,从中求得颗粒的粒径大小和分布,具有比 Mie 散射理论算法快速性的特 点。该方法为某些测试对象(颗粒与分散介质相对折射率、颗粒种类等)确定、微小颗粒的在线测量提 供了理论支持。

关键词:散射; 在线测量; 微小颗粒; 改进向下递推法; Matlab 中图分类号:TN247;O436.2 文献标志码:A 文章编号:1007-2276(2015)07-2189-06

Numerical analysis of small particle measurement based on the theory of laser scattering

Shi Zhenhua^{1,2}, Lin Guanyu¹, Wang Shurong¹, Yu Lei¹, Cao Diansheng¹

Institute of Optics, Fine Mechanics and Physics, Chinese Academy of Sciences, Changchun 130033, China;
 University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract: According to the accuracy, stability and fast property of algorithms, the numerical algorithms of the classical Mie scattering and Rayleigh scattering were presented in this paper. Compared the numerical results acquired from the Mie scattering theory and Rayleigh scattering theory by using Matlab with Wiscombe's numerical results, the results acquired from Matlab programs were also accurate. According to Matlab numerical results, the forward light scattering distribution in a certain angle can be determined by Rayleigh scattering theory when the size parameter x is less than 0.3. The size distribution can also be determined. The algorithm of Rayleigh scattering theory is more efficient than the corresponding algorithm acquired from Mie scattering theory. This simplified method can provide theoretical support for online measuring micro particles when some test objects (the relative refractive index, particle type) are determined.

Key words: scattering; online measurement; micro-particles; improved downward recurrence; Matlab

收稿日期:2014-11-10; 修订日期:2014-12-07

基金项目:国家自然科学基金(41074126)

作者简介:石振华(1989-),男,硕士生,主要从事空间紫外光学遥感结构设计方面的研究。Email:shizhenhua2008@yeah.net 导师简介:林冠宇(1976-),男,副研究员,硕士生导师,博士,主要从事空间紫外光学遥感仪器方面的研究。

Email:linguanyu760726@sohu.com

0 引 言

经典Mie 激光散射理论在通过激光散射来测量 颗粒的浓度、颗粒粒度和颗粒粒径分布方面起着至 关重要的作用。经典的 Mie 理论是对处于均匀介质 中各项同性的球形粒子的 Maxwel 方程边界条件的 严格数学解^[1-2]。虽然可根据所测得的光强利用反演 算法求出颗粒群参数,但是 Mie 散射解十分复杂,其 表达式于 1908 年就已经给出。如何实现散射物理量 的实时、准确计算,以满足对诸如烟雾、内燃机燃油 喷雾、尿素、煤矿粉尘、微量油污^[3-7]等需要实时测量 的小颗粒浓度、质量浓度和颗粒粒径分布等的工业 需求,仍是诸多学者研究的重点。

近年来,国内外许多学者针对 Mie 散射理论发 表了许多论文^[8-15]。虽然上述算法给出了球形颗粒在 平行光照射下散射行为的严格解,但是由于理论复 杂、计算过程繁琐,在早期计算机技术不发达的情况 下,在某些测试对象确定,测量颗粒粒径 *d*<0.3λ/π 的(当 He-Ne 激光为光源时粒径约为 0.06 μm)情 况下,Mie 理论难以得到实际应用,而 Rayleigh 散射 由于其特有的简洁性、准确性在实践中发挥了很大 作用。

文中根据 Mie 散射和 Rayleigh 散射有关的物理 量方程,利用 Matlab 对散射参量进行数值模拟。与以 往其他编程软件相比, Matlab 内置 Bessel 函数和基于 矩阵的运算方式可以使相关计算得到准确的结果。

1 Mie、Rayleigh 散射的有关物理方程

经典的 Mie 散射解的过程比较繁琐,具体可见参考文献[1-2]。 Mie 散射理论主要几个物理量有振幅函数 S1、S2,散射系数 ksa、吸收系数 kas 和消光系数 kest:

$$S_{1} = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} (a_{n} \pi_{n} + b_{n} \tau_{n})$$
(1)

$$S_{2} = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} (a_{n} \tau_{n} + b_{n} \pi_{n})$$
(2)

$$k_{\text{ext}} = \frac{2}{x^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) \operatorname{Re}(a_n + b_n)$$
(3)

$$k_{\rm sca} = \frac{2}{x^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1)(|a_n|^2 + |b_n|^2)$$
(4)

$$k_{\rm abs} = k_{\rm ext} - k_{\rm sca} \tag{5}$$

式中:x 为颗粒粒径参量, $x=2\pi a/\lambda$; π_n 和 τ_n 是与散射 角 θ 有关的函数; 而 a_n 和 b_n Mie 散射系数, 这是 Mie 散射理论计算的中心问题(关于 a_n 和 b_n 计算方法参 见文中第3部分),其表达式为:

$$a_{n} = \frac{\psi_{n}(x)\psi_{n}'(mx) - m\psi_{n}'(x)\psi_{n}(mx)}{\xi_{n}(x)\psi_{n}'(mx) - m\xi_{n}'(x)\psi_{n}(mx)}$$
(6)

$$b_{n} = \frac{m\psi_{n}(x)\psi_{n}'(mx) - \psi_{n}'(x)\psi_{n}(mx)}{m\xi_{n}(x)\psi_{n}'(mx) - \xi_{n}'(x)\psi_{n}(mx)}$$
(7)

式中:*m*散射粒子相对周围介质的折射率,*m*=*m*₁+ *m*₂*i*; $\psi_n(t)$ 和 $\xi_n(t)$ 为Ricatti-Bessel函数(*t*=*mx*或*x*),表 达式如下:

$$\psi_n(t) = J_{n+1/2}(t) \left(\frac{t\pi}{2}\right)^{1/2}$$
 (8)

$$\xi_n(t) = H_{n+1/2}^{(2)}(t) \left(\frac{t\pi}{2}\right)^{1/2} = \left(\frac{t\pi}{2}\right)^{1/2} [J_{n+1/2}(t) - iN_{n+1/2}(t)](9)$$

当散射颗粒的粒径远小于入射波长时,即 x <<1和 x lm - 1 l <<1时,Mie 散射理论可以近似为 Rayleigh 散射理论。Van de Hulst^[11]认为当颗粒的直径 $d <0.3\lambda/$ π (即 x <<0.3)时(当以 He-Ne 激光为光源时粒径为 0.06 μ m),Rayleigh 公式才能适用^[16]。有关物理量具 体推导过程可见参考文献[1],振幅函数 S_1 、 S_2 ,散射 系数 k_{sca} 、吸收系数 k_{abs} 和消光系数 k_{ext} 等关系式为:

$$S_1 = \frac{3}{2}a_1$$
 (10)

$$S_2 = \frac{3}{2} a_1 \cos\theta \tag{11}$$

$$k_{\rm sca} = \frac{8}{3} x^4 \left(\frac{m^2 - 1}{m^2 + 2}\right)^2 \tag{12}$$

$$k_{\rm abs} = x {\rm Im}\left(\frac{m^2 - 1}{m^2 + 2}\right) \tag{13}$$

$$k_{\text{ext}} = k_{\text{sca}} + k_{\text{abs}} \tag{14}$$

$$a_1 = -\frac{i2x^3}{3} \frac{m^2 - 1}{m^2 + 2} \tag{15}$$

2 Mie 理论和 Rayleigh 理论的计算分析

前文已经列出 Mie 散射理论的振幅函数、散射 系数等有关物理量的计算式,而 Mie 散射系数是解 决 Mie 散射问题的关键所在。目前,计算 Mie 散射系 数 *a_n*和 *b_n*的方法有向上递推法^[8]、连分式法^[9]、改进 向下递推法^[18]等。上述各种计算方法有自身的优点 和不足:向上递推方法在某些应用条件下可能出现 不稳定和数据溢出,连分式算法计算速度相对较低^[19]; 改进向下递推法既能够解决向上递推法的数据溢出

第7期

和递推关系中的不稳定,用可以大幅提高计算速度, 故文中采用改进向下递推法。利用 $D_n(mx)=\psi_n'(mx)/\psi_n(mx)$ 来计算Mie系数,则 a_n 和 b_n 可以表示成:

$$a_{n} = \frac{[D_{n}(mx)/m + n/x]\psi_{n}(x) - \psi_{n-1}(x)}{[D_{n}(mx)/m + n/x]\xi_{n}(x) - \xi_{n-1}(x)}$$
(16)

$$b_{n} = \frac{[mD_{n}(mx) + n/x]\psi_{n}(x) - \psi_{n-1}(x)}{[mD_{n}(mx) + n/x]\xi_{n}(x) - \xi_{n-1}(x)}$$
(17)

上述关系中的 D_n(mx)满足如下递推关系式:

$$D_{n-1}(mx) = \frac{n}{mx} - \frac{1}{D_n(mx) + n/mx}$$
(18)

*D_n(mx)*的计算和初值的选取非常重要,一般情况下 取*D_{n*}(mx)*=0+0*i*。*n**为计算的阶数,Craig F. Bohre^[17]给 出*n** 经验公式:

$$n^* = \max[(2 + x + 4x^{1/3}), (|mx| + 16)]$$
(19)

π_n 和 τ_n 计算相对简单,可采用向上递推公式求得,π_n 和 τ_n 的递推关系如下:

$$\pi_{n} = \frac{2n-1}{n-1} \cos\theta \cdot \pi_{n-1} - \frac{n}{n-1} \pi_{n-2}$$
(20)

$$\tau_n = n \cos\theta \cdot \pi_n - (n+1)\pi_{n-1} \tag{21}$$

 π_n 的初始值 $\pi_0=0$ 、 $\pi_1=1$ 。

从公式(10)~(15)可以完成 Rayleigh 散射理论主

要几个物理量振幅函数 S₁、S₂,散射系数 k_{sca}、吸收系数 k_{abs}和消光系数 k_{est}等的计算,而且计算公式相对 Mie 散射理论计算公式简洁。故可知散射强度、Mie 系数理论计算速度会明显快于 Mie 散射理论的散射 强度和 Mie 系数的计算速度。

3 Mie 散射系数、散射强度函数数值分析

文中采用 Matlab 并根据改进向下递推法编写 Mie 散射系数 $a_n 和 b_n$ 程序,利用向上递推法编写 π_n 和 τ_n ,再根据 $a_n , b_n , \pi_n 和 \tau_n 与 S_1 , S_2 和 k_{sca} , k_{abs} , k_{ext}$ 的 关系,编写 $S_1 , S_2 和 k_{sca} , k_{abs} , k_{ext}$ 程序^[20-24]。在利用Matlab 编写 Rayleigh 散射理论程序时,严格控制颗粒粒径 参量范围。

3.1 Mie 散射系数 a_n 、 b_n 的验证

文中需要对依据向下递推法所编写的 Matlab 程序的正确性进行验证,根据公式(3)和(4)中的消光系数、散射系数可以准确地验证散射系数 *a_n、b_n*的正确性。表1给出了部分散射系数与消光系数结果,并与Wiscombe^[10-11]所得结果进行对比。

表 1 利用 Matlab 计算消光系数和散射系数所得结果与 MIEVO 结果对比

Tab.1 Comparison of results of extinction coefficient and scattering coefficient between Matlab and MIEV0

No.	т	X	k _{ext} Wiscombe	$k_{\rm ext}$ this paper	k _{sca} Wiscombe	$k_{ m sca}$ this paper
1	0.75	0.101	8.03354×10^{-6}	$7.962\ 594\ 11 \times 10^{-6}$	8.033 54×10 ⁻⁶	$7.96259410 \times 10^{-6}$
2	0.75	10	2.232 26	2.271 219 18	2.232 26	2.271 219 18
3	0.75	$1\ 000$	1.997 91	1.997 902 95	1.997 91	1.997 902 95
4	$1.33 - 10^{-5}i$	100	2.101 32	2.100 813 22	2.096 59	2.096 088 80
5	$1.33 - 10^{-5}i$	10 000	2.004 09	2.00435527	1.723 86	$1.718\ 033\ 95$
6	1.5-i	0.055	0.101 41	0.10087966	$1.131\ 69 \times 10^{-5}$	$1.122\ 605\ 7 \times 10^{-5}$
7	1.5-i	100	2.097 50	2.094 412 26	1.283 70	1.284 741 05
8	1.5-i	10 000	2.004 37	2.004 367 64	1.23657	$1.236\ 574\ 40$
9	10-10i	100	2.071 12	$2.071\ 155\ 01$	1.836 79	1.836 902 51
10	10-10i	10 000	2.005 91	2.00591433	1.795 39	$1.795\ 393\ 04$

由表 1 可以看出, 在粒径参量变化较大的范围下 ($10^{-2} \sim 10^{4}$), Matlab 程序所得消光系数 k_{ext} 与散射系数 k_{sca} 的结果与 MIEVO 结果相差无几, 且误差都能控制在 0.5%之内。这充分说明了采用 Matlab 计算散射系数 a_n 、 b_n 的正确性。文中 Matlab 算法能够克服传统的向下递推在处理粒子粒径较大或者折射率

虚部较大时,出现的计算速度慢或产生溢出和不收 敛的现象。基于 Matlab 的 Mie 散射程序为验证后文 的 Rayleigh 散射程序的正确性提供依据。

3.2 Rayleigh 散射理论在微小颗粒测量中的优势

在采用 Matlab 编程时,由于对同一被测对象入 射激光光源波长、入射光强、颗粒半径等参数相同, 故散射强度函数可表达成振幅函数平方形式。图 1 分别给出了 *m*=1.5+0.01*i*,*x*=0.1、0.3、1、10 时的 Mie 散射强度函数图和 Rayleigh 的散射强度函数图。*m*= 1.5+0.01*i*,*x*取 0.1、0.3、1、10 时,图 1 (a)~(d)对应 Mie 散射,图 1(e)~(h)对应 Rayleigh 散射。



图 1 散射强度函数与散射角的关系图

Fig.1 Diagrams of the relationship among scattering intensity function and scattering angle

图 1 给出了球形粒子在折射率 m=1.5+0.01*i* 和 粒径参数 x=0.1、0.3、1、10 下,散射相位函数与散射 角的极坐标关系图。从(a)和(e)、(b)和(f)、(c)和(g)、 (d)和(h)的对比图可看出,在粒径参数 x=0.1、0.3 时, (a)和(e)、(b)和(f)所得散射光强结果差异很小。随着 粒径参数 x 的增大,Rayleigh 散射光强图与 Mie 散射 光强图表现出明显的差异。

经过计算可知,在 x=0.3时, Rayleigh 公式计算 结果与严格的 Mie 解相差大约 2%~3%;当x增大到 0.5 时, 计算结果偏差增大到 3%~7%。当 $x\rightarrow1$ 并且> 1 时, Rayleigh 公式已经远远超出其使用范围。参考 文献[1]给出了 Rayleigh 公式适用的条件: $d<0.3\lambda/\pi$, 即x<0.3(x<<1)。从图 1 中的(a)~(d)可发现,随着x的 不断增大,前向散射逐渐大于后向散射,直至占绝对 优势,这就是经典米氏效应。

对于所研究微小颗粒在线测量的对象来说,程 序运行时间决定了该算法是否准确反映当前被测对 象的实际状态。表 2 是在 Rayleigh 公式适用条件下, 采用 Mie 散射和 Rayleigh 散射程序的执行时间的对 比。*n*_{steps} 的值代表了程序运算时,散射角两坐标的最 小间距,*n*_{steps} 越大,间距越小,精度越高。

表 2 Mie 散射理论与 Rayleigh 散射理论的程序 执行时间

Tab.2 Execution time of different programs between

Mie scattering and Rayleigh scattering

	т	x	n _{steps}	Time/s Mie	Time/s Rayleigh
1	0.75	0.01	200	0.200 195	0.161 445
2	0.75	0.1	200	0.214 89	0.160 139
3	0.75	0.1	2 000	0.805 583	0.215331
4	0.75	0.1	20 000	7.290 27	1.311 65
5	$1.33 - 10^{-5}i$	0.01	200	0.206 956	0.171 231
6	$1.33 - 10^{-5}i$	0.3	400	0.293 869	0.172 862
7	1.5-i	0.01	200	0.226 695	0.164 339
8	1.5-i	0.3	200	0.212415	0.159 273
9	10–10 <i>i</i>	0.01	200	0.211 763	0.160 63
10	10–10 <i>i</i>	0.1	200	0.208 11	0.149 327
11	10–10 <i>i</i>	0.1	20 000	7.8829	1.318 55
12	10 - 10 <i>i</i>	0.3	200	0.207 384	0.154 419

从表2所得到的程序执行时间可以发现,不同 折射率、不同的粒径参量对程序执行时间没有太大 影响。当 n_{steps}=200 时, Rayleigh 散射程序执行时间 比 Mie 散射执行时间大约快 0.05 s 左右; 但当 n_{steps}= 2 000 或等于 20 000 时, Rayleigh 散射执行时间均比 Mie 散射执行时间快 4 倍以上, Rayleigh 散射算法效 率远远高于 Mie 散射算法效率。这从另一方面给我们 启示:在满足一定的误差要求下, 对服从双参数分布 的颗粒群(例如颗粒群服从 R-R 分布, 颗粒群的平均 粒度用索太尔平均直径 D₃₂ 表示, D₃₂ 为 0.06 µm 以 下)实时测量时, Rayleigh 散射理论不失为 Mie 散射 理论的替代算法。

4 结 论

文中采用改进向下递推法计算经典 Mie 散射理 论的散射系数,利用 Matlab 编写 Mie 散射强度函数 和 Mie 散射系数、消光系数,并与 Wiscombe 所得消 光系数、散射系数对比,误差控制在 0.5%之内,验证 了此 Matlab 的程序的正确性;将 Rayleigh 散射理论 和 Mie 散射理论在不同的颗粒粒径参量下振幅函数 对比发现,在 Rayleigh 范围内,结果吻合良好;在 Rayleigh 公式适用条件下(粒径 0.06 左右),根据不 同折射率、不同粒径参量、不同最小散射角下的 Rayleigh 散射程序执行时间比 Mie 散射执行时 间,Rayleigh 散射程序执行时间比 Mie 散射执行时 间大约快 0.05 s 左右,在大批量迭代运算中效果更为 明显,从而得出 Rayleigh 散射算法高效性的特点,为 微小颗粒的在线测量提供了理论支持。

参考文献:

- Van de Hulst H C. Light Scattering by Small Particles [M]. New York: Wiley, 1957: 119–130.
- [2] Kerker M. The Scattering of Light and Other Electromagnetic Radiation [M]. New York: Academic, 1969.
- [3] Ren Lina, Zhang Liang, Chen Chunsheng. Research on smoke mass concentration by Laser Forward Scattering Theory [J]. *China Power Science and Technology*, 2011, 17 (3): 8-11. (in Chinese)
 任丽娜,张良,陈春生. 激光散射法测量烟幕质量浓度的

试验研究[J]. 中国粉体技术, 2011, 17(3): 8-11.

[4] Wang Dezhong, Huang Zhen, Zhang Lianfang. The development of laser technique applied in the field of fuel spray experiment [J]. *Laser Technology*, 1995, 19 (1): 26– 34. (in Chinese)

王德忠,黄震,张连方.激光技术在燃油喷雾测试中应用的进展[J].激光技术,1995,19(1):26-34.

- [5] David S Cho, Jonathon T Olesberg, Michael J Flanigan, et al. On-line near-infrared spectrometer to monitor urea removal in real time during hemodialysis [J]. Applied Spectrscopy, 2008, 62(8): 866–872.
- [6] Tang Gang. The design principle of coal mine dust measurement meter with laser scattering [J]. Journal of Test and Measurement Technology, 1996, 10 (2): 554-558. (in Chinese) 唐刚.激光散射式煤矿粉尘测量仪的设计原理[J]. 测试技 术学报, 1996, 10(2): 554-558.
- [7] Zhou Ruijie. Study on online detection technology for oil pollution based on Mie's light scattering theory[D]. Tianjin: Tianjin University, 2011. (in Chinese)
 邹瑞杰. 基于 Mie 散射的微量油污染在线检测技术研究
 [D]. 天津: 天津大学, 2011.
- [8] Dave J V. Scattering of visible light by large water spheres[J]. Applied Optics, 1969, 8(1): 155–164.
- [9] Lentz W J. Generating Bessel functions in Mie scattering calculations using continued fractions [J]. *Applied Optics*, 1976, 15(3): 668–671.
- [10] Wiscombe W J. Improved Mie scattering algorithms [J]. *Applied Optics*, 1980, 19(9): 1505–1509.
- Wiscombe W J. Mie scattering calculations: advances in technique and fast, vector-speed computer codes [R]. Boulder: National Center for Atmospheric Research, 1979.
- [12] Shen Jianqi, Liu Lei. An improved algorithm of classical Mie scattering calculation [J]. *China Powder Science and Technology*, 2005, 4: 1–5. (in Chinese) 沈建琪, 刘蕾. 经典 Mie 散射的数值计算方法改进 [J]. 中 国粉末技术, 2005, 4: 1–5.
- [13] Wang Shiming, Zhu Zheng, Ye Miao, et al. Measurement of nano-particle sizes by variance of temporal coherence of dynamic light scattering[J]. *Optics and Precision Engineering*, 2011, 19(7): 1546–1551. (in Chinese)
 王式民,朱震,叶茂,等.光散射粒度测量中 Mie 理论两种 改进的数值计算方法[J]. 光学 精密工程, 2011, 19(7): 1546–1551.
- [14] Wang Shimin, Zhu Zhen, Ye Mao, et al. Two improved numerical algorithms of Mie theory in the particle sizing by light scattering method [J]. Acta Metrologica Sinica, 1999, 20(4): 279–285.
- [15] Yu Qizheng, Ma Guoqiang, Liu Xiaoyian. An improvement

on Mie seattering algorithm [J]. Journal of Harbin Institute of Technology, 1987, 3: 21-27.

- [16] Cai Xiaoshu, Sun Mingxu, Shen Jianqi. Particle Size Measurement Technology and Application [M]. Beijing: Chemical Industry Press, 2010.
- [17] Xu Renliang, Beckman Coulter Miami. Characterization: Light Scattering Methods [M]. New York: Kluwer Academic Publishers, 2002.
- [18] Kattawar G W, Plass G N. Electromagnetic Scattering from Absorbing Spheres[M]. New York: Apply Optics, 1967.
- [19] Craig F Bohren, Donald R Huffman. Absorption and Scattering of Light by Small Particles [M]. New York: John Wiley and Sons, 1983.
- [20] Xiang Jiansheng, He Junhua. Numerical calculation of Mie theory[J]. Applied Optics, 2007, 28(3): 363–366. (in Chinese) 项建胜,何俊华. Mie 光散射理论的数值计算方法 [J]. 应

用光学, 2007, 28(3): 363-366.

[21] Zhang Heyong, Zhao Weijiang, Ren Deming, et al. Improved algorithm of Mie scattering parameter based on matlab [J]. *The Journal of Light Scattering*, 2008, 20(2): 102-110. (in Chinese)
张合勇,赵卫疆,任德明,等. 球形粒子 Mie 散射参量的

派言男, 赵卫缰, 任德切, 守. 环形松丁 Mie 取别多重的 Matlab 改进算法[J]. 光散射学报, 2008, 20(2): 102-110.

- [22] Christian Mätzler. Matlab Functions for Mie Scattering and Absorption1,2[Z]. Research Report No, 2002–08.
- [23] Zhang Wei, Lu Yuan, Du Shiming, et al. Analysis of characteristics of Mie scattering[J]. *Optical Technique*, 2010, 36(6): 936–939. (in Chinese)
 张伟,路远,杜石明,等. 球形粒子 Mie 散射特性分析[J]. 光学技术, 2010, 36(6): 936–939.
- [24] Abramowitz M, Stegun I A. Handbook of Mathematical Functions[M]. New York: Dover Publication, 1965.