

求非均匀体系微粒光学常数的透射法*

阮立明 余其铮^V谈和平

(哈尔滨工业大学动力工程系, 黑龙江, 哈尔滨, 150001)

A 摘要 结合精确 Mie 散射理论及光学常数色散 K-K 关系, 利用具有某一粒径分布的稀相、非均匀微粒弥散系的透射比光谱, 反演微粒的光学常数(复折射率), 研究了反演问题的多值性, 并讨论了该方法的适用范围, 分析了粒径分布函数偏差、非均匀弥散系的均匀化近似及透射比误差等对反演结果的影响。

关键词 Lorenz-Mie 散射理论, 光学常数, 微粒, K-K 关系。

引言

复折射率

透射法

0435.2

光学常数(复折射率)是决定微粒辐射行为的基本物性参数。透射法测微粒光学常数能保持其自然状态, 所需实验设备相对简单, 并可求得较宽光谱范围的微粒光学常数, 但理论模型较复杂, 近二十年的工作主要是围绕由透射比光谱反演光学常数的理论与方法^[1~4]。

① 我们认为这些方法存在下列问题: (1) 采用近似 Mie 理论会引起一定误差或适用范围较窄; (2) 拟合方法虽采用了精确 Mie 理论, 但所需拟合参数一般较多, 适用范围窄; (3) 假定微粒系为均匀粒径弥散系或利用某种平均粒径代替粒径分布, 与实际不符; (4) 如果再测量其它量又会增加实验量。本文针对上述问题, 在以前工作的基础上^[5], 在透射法中采用非均匀微粒弥散系模型及精确 Mie 理论, 结合介质色散 K-K 关系, 仅由透射比光谱反演微粒复折射率。由于本文模型更接近实际物理本质, 因此精度更高, 适用范围较广。

1 基本理论

1.1 Lorenz-Mie 散射理论

当波长为 λ 的单色平面电磁波投射到一各向同性均质球形微粒上时, 微粒的单色衰减因子 $Q_{ext,\lambda}$ 可由 Lorenz-Mie 电磁理论表示为

$$Q_{ext,\lambda} = \frac{4}{a^2} \text{Re}\{S_0\} = f(m, a), \quad (1)$$

式中 Re 表示实部, $a = \pi D / \lambda$ 为尺度参数, D 为粒径, λ 为波长, S_0 为前向幅值函数, $m = n - ik$ 为微粒的复折射率。

*国家自然科学基金和博士点基金资助项目

本文 1994 年 11 月 8 日收到, 修改稿 1995 年 1 月 23 日收到

1.2 透射比光谱的计算

微粒系的温度较低,本身辐射可忽略不计,且为稀相系时,微粒的散射可视为互不影响的一次独立散射,非均匀微粒系的单色透射比 τ_λ 可表达为

$$\tau_\lambda = \exp \left\{ -L \cdot N \int_{D_{\min}}^{D_{\max}} \frac{1}{4} \pi D^2 \cdot P(D) \cdot Q_{\text{ext}}(m, a) dD \right\}. \quad (2)$$

式中 L 为微粒群行程长度,下标 λ 表明单色量, N 为粒子数密度,粒子系粒径范围为 $[D_{\min}, D_{\max}]$, $P(D)$ 为粒径分布函数. 本文采用 Log-Normal 分布,即

$$P(D) = \frac{1}{D \cdot \ln \sigma_g \sqrt{2\pi}} \cdot \exp \left\{ -\frac{1}{2} \left(\frac{\ln(D/D_n)}{\ln \sigma_g} \right)^2 \right\}. \quad (3)$$

该分布可由粒子最可几直径 D_n 和粒径的平均几何偏差 σ_g 两个参数唯一确定. 因此,当微粒系的粒径分布函数 $P(D)$ 等参量已知时,微粒的复折射率 m 直接与微粒系的透射比有关. 但由于 m 为复数,包含折射指数 n 和吸收指数 k ,因此需补充附加条件.

1.3 介质色散的 K-K 关系式

介质的光学色散理论认为,复折射率 m 在整个光谱范围内满足 K-K 关系式

$$n(\lambda) = 1 + \frac{2\lambda^2}{\pi} P \int_0^\infty \frac{k(\lambda_0)}{\lambda_0(\lambda^2 - \lambda_0^2)} d\lambda_0, \quad (4)$$

式中 P 表示柯西主值积分. 式(4)将 $k(\lambda)$ 与 $n(\lambda)$ 联系起来,成为约束 (n, k) 的补充条件.

2 计算

2.1 外推关系式

因实验只能测得有限波长范围 $[\lambda_l, \lambda_h]$ 内的单色透射比,而 K-K 关系式则包含无限范围的柯西主值积分. 因此,需对短波段 ($0 < \lambda < \lambda_l$) 及长波段 ($\lambda_h < \lambda < \infty$) 引入外推关系式. 据介质的 Lorenz-Drude 多振子模型,对于绝缘材料,近似可得^[6,7]

$$k(\lambda) = C_l \cdot \lambda^2, \quad \lambda \leq \lambda_l \quad (5a)$$

$$k(\lambda) = C_h \cdot 1/\lambda, \quad \lambda \geq \lambda_h \quad (5b)$$

其中 $C_l = k(\lambda_l)/\lambda_l^2$, $C_h = k(\lambda_h) \cdot \lambda_h$. 这样就将数据外推到整个波长范围.

2.2 微粒系的平均参数

非均匀系所含微粒粒径不等,在分析其整体辐射特性参数的变化规律时很不方便. 因此本文引入一平均粒径 D_m ^[4]:

$$D_m = \left\{ \frac{\int_{D_{\min}}^{D_{\max}} P(D) \cdot D^3 dD}{\int_{D_{\min}}^{D_{\max}} P(D) \cdot D^2 dD} \right\}^{1/3}, \quad (6)$$

其对应平均尺度参数 $\alpha_m = \pi D_m / \lambda$. 非均匀系中的微粒,对相同波长的投射辐射,其尺度参数不同,因而单色衰减因子不同. 为了解析问题方便,本文定义一个平均等效衰减因子 $Q_{\text{ext},d}$,

并有

$$Q_{ext,d} = \frac{6}{\pi D_m^3} \int_{D_{min}}^{D_{max}} P(D) \cdot D^2 \cdot Q_{ext,\lambda} dD. \quad (7)$$

该平均等效衰减因子与透射比具有同样的性态.

2.3 模型的适用范围

当粒径分布确定, 且 m_λ 已知时, 可唯一确定单色透射比 τ_λ , 而当 τ_λ 已知时, 则对应多组 (n_λ, k_λ) 值, 即使 n_λ 也已知, 同样可能对应多个 k_λ 值, 称为解的多值性. 如果 n_λ 已知, 则可唯一确定 k_λ , 称透射比 τ_λ 对 k_λ 存在单值性, 即 $Q_{ext,d}$ 对 k_λ 存在单值性. 本文模型需在单值区内求解.

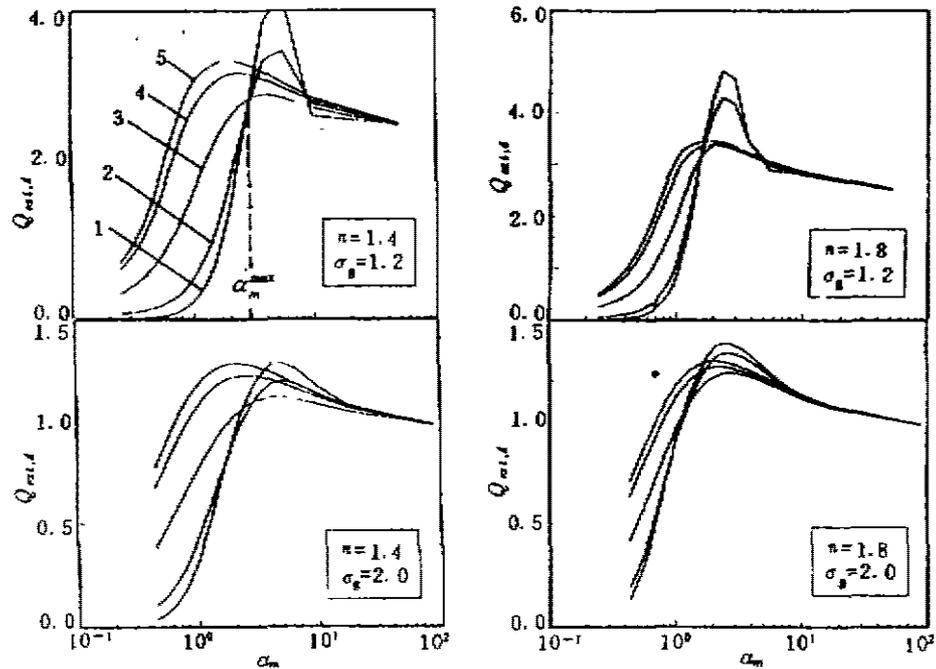


图1 平均等效衰减因子 $Q_{ext,d}$ 随平均尺度参数 α_m 的变化规律
(对应曲线 1~5, $k=0.01, 0.1, 0.5, 1.0, 1.2$)

Fig. 1 The relationship between the average equivalent extinction factor $Q_{ext,d}$ and the average size parameter α_m

据文献[7,8], 当 k 满足 $0 \leq k \leq \sqrt{2} (1 + 1.2\alpha_m)^{0.5}$ 时, 且在适当的 α_m 及 n 的范围内, 单值性可以保证. 另外 n 及 α_m 的取值范围也是相互影响的. 图 1 示出不同 (n, k) 和 σ_g 值下, $Q_{ext,d}$ 随 α_m 的变化规律. 由图可知, 存在与 n 有关的临界尺度参数 α_m^{max} , 当 $\alpha_m < \alpha_m^{max}$ 时, 单值性成立; 而当 $\alpha_m \geq \alpha_m^{max}$, 出现多值性. α_m^{max} 的取值与 n 和 σ_g 有关.

综上所述, 当 α_m, n, k 及 σ_g 满足单值条件时, 单值性存在, 本文模型的适用条件即为满足单值条件的 α_m, n, k 及 σ_g 取值范围. 固定 n , 用优化方法由单色透射比 τ_λ 搜索求解 $k(\lambda)$.

目标函数为 $\min |\tau_1 - \tau_2|$, τ_1 为实验透射比, τ_2 为由当前 (n, k) 值计算的理论透射比.

2.4 相减的 K-K 的关系式

外推关系式(5)由极限假设推得,因此会产生误差,并且式(4)积分收敛速度较慢.为了克服这些缺点,实际计算中采用相减的 K-K 关系式

$$N(\lambda) = n(\lambda_1) + \frac{2(\lambda_1^2 - \lambda_0^2)}{\pi} P \int_{\lambda_0}^{\lambda_1} \frac{\lambda_0 k(\lambda_0)}{(\lambda^2 - \lambda_0^2)(\lambda_1^2 - \lambda_0^2)} d\lambda_0 + N_h + N_l, \quad (8)$$

式中 $n(\lambda_1)$ 为已知量, N_l 和 N_h 分别为短波及长波范围积分值,参见文献[7].

2.5 复折射率的求解

首先假设初值 $n(\lambda) = n_0$ (n_0 为任意假定的值),由单值关系 $\tau_1 = f(n_0, k)$, 进行一维搜索求 $k(\lambda)$. 将 $k(\lambda)$ 代入 K-K 关系式可得新的 $n(\lambda)$ 分布,并据此值搜索新的 $k(\lambda)$ 分布.如此反复迭代,当相邻两次迭代的所有 $n(\lambda)$ 及 $k(\lambda)$ 值满足下式要求时,则当前值即为解:

$$\begin{aligned} \frac{1}{M} \sqrt{\sum_{i=0}^M (k_i^j - k_i^{j-1})^2} &\leq \delta, \\ \frac{1}{M} \sqrt{\sum_{i=0}^M (n_i^j - n_i^{j-1})^2} &\leq \delta. \end{aligned} \quad (9)$$

式中 M 为积分区间等间距划分的间隔数, k_i^j (n_i^j) 为第 i 划分节点、第 j 次迭代的吸收指数 k (折射指数 n), δ 为迭代精度(一般取为 10^{-3}).

2.6 $n(\lambda_1)$ 值的确定及减少迭代次数的方法

式(8)包含已知量 $n(\lambda_1)$, 但当对所求粒子的光学特性一无所知时,该值无法确定.另外非均匀系的反问题计算存在对粒径的积分,且每次优化过程需进行多次积分运算.如果迭代次数很多,则计算量相当大.为了解决上述不足,首先建立一计算量相对较小的均匀系模型进行试算,设该均匀系数为 D_m , 其它值不变.该均匀系模型与文献[5]模型的区别仅在于前向幅值函数 S_0 由精确 Mie 理论求解.

将计算结果中某一点 λ_1 的折射数 $n(\lambda_1)$ 作为已知值代入相减的 K-K 关系式(8),并将该计算的 $n(\lambda_1)$ 及 $k(\lambda_1)$ 分布作为本文非均匀系模型迭代计算的初始值.由于均匀系模型虽有简化,但其结果比较接近真实值,因此可减少非均匀系模型的迭代次数,使计算适于在微机上进行.

3 对微灰粒的模拟计算

本文用文献[9]提供的灰粒的复折射率数据 $m(\lambda)$, 假设微粒系符合 Log-Normal 分布,由式(2)计算微粒系的透射比光谱 τ , 此称为正问题计算.然后将计算所得 τ , 做为实验数据,采用本文方法即可得新的复折射率数据 m' , 此称为反问题模拟.反问题计算结果与原始值比较,可判断本方法的精确度.模拟结果与原已知数据均示于图 2. 比较表明,本文模型计算结果与原始值的实部吻合较好,而虚部则完全吻合,说明本文模型是可靠的.而利用 Rayleigh 近似理论(该理论取 Mie 级数的第一项,且与尺度参数无关)的 Ku^[6]方法精度较

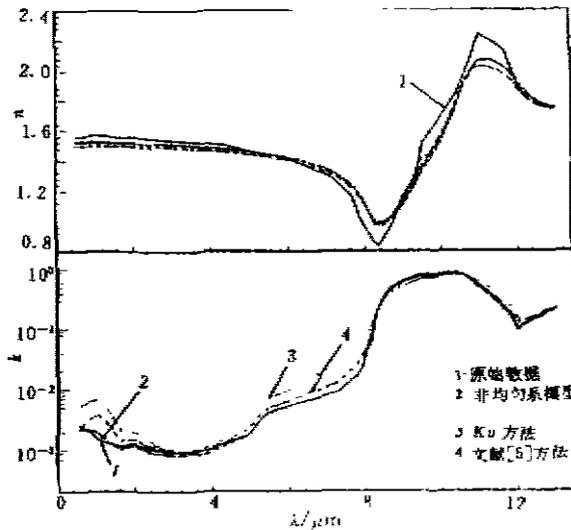


图 2 模拟结果与 Ku 方法及文献[5]结果的比较
Fig. 2 Comparison of the results among Ku method, method of [5] and polydispersion method

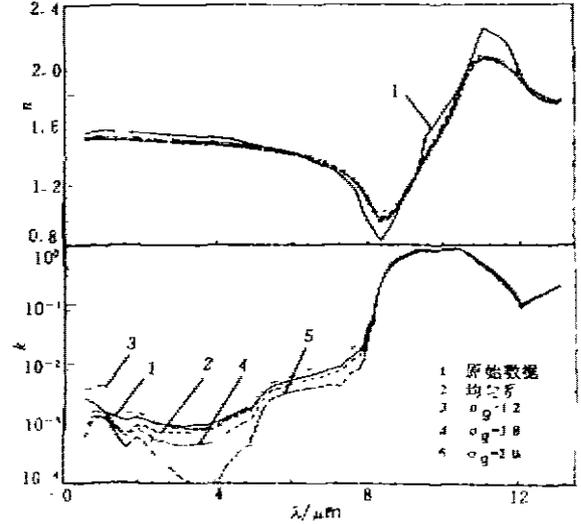


图 3 粒径分布偏差对反演结果的影响
Fig. 3 The influence of the errors of particle size distribution on the results

差,利用简化 Mie 理论(该理论取 Mie 级数的前 3 项,考虑了尺度参数的影响)的文献[5]方法的精度虽强于 Ku 方法,但与本文相比仍有差距.模拟过程中,设粒径分布函数参数分别为: $D_n=0.5\mu\text{m}$, $\sigma_g=1.5$.

4 误差分析

由于采用精确 Mie 理论,本方法的模拟误差主要源于有限区域实验数据的外推关系式,为了减少该误差,本文采用了相减的 K-K 关系式.因此实验误差成为本研究方法的主要误差源.下面分别分析粒径分布函数的偏差及透射比实验偏差对反演结果的影响.

4.1 粒径分布偏差及均匀化近似的影响

将前面的正问题结果分别作为符合 Log-Normal 分布微粒系的标准透射比光谱,分别模拟 4 种存在粒径分布测量偏差时的计算结果(最可几粒径不变 $D_n=0.5\mu\text{m}$; 4 种情况分别为 $\sigma_g=1.2$, $\sigma_g=1.8$, $\sigma_g=2.0$, 均匀系)示于图 3. 分析结

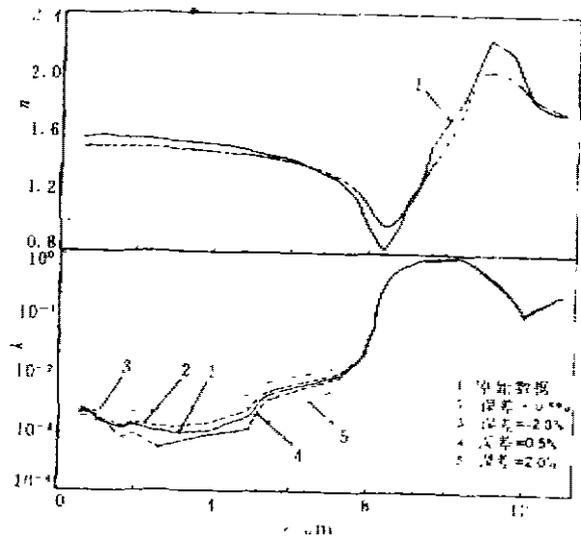


图 4 透射比误差对反演结果的影响
Fig 4 The influence of the errors of transmittance on the results

果可知,当 σ_g 存在偏差时,对实部的反演结果影响很小,几条线几乎重合,而对虚部的反演结果则存在很大影响.因此微粒系的粒径分布是一个重要参量,直接影响反演结果.

4.2 透射比误差的影响

假设透射比在整个实验光谱范围内存在 $\pm 0.5\%$ 、 $\pm 2\%$ 的相对误差,并将带有误差的透射比作为反问题计算的已知量,其它条件不变,计算此时的复折射率值,图4为计算结果.分析结果可知,当透射比存在偏差时,对实部的反演结果影响很小,而对虚部的反演结果则有明显影响.因此透射比实验的精度直接影响复折射率的反演结果.

5 结论

本方法与以前提出的反演微粒光学常数的一些方法相比,不仅保持了微粒的自然状态,而且直接考虑了非均匀微粒系的影响,在反演时采用了精确的Mie理论,使模型更接近真实的物理本质,因而本方法精度较高,适应性好,适用范围广.通过对已知光学常数的灰粒子的模拟计算,可以看到:(1)与利用Rayleigh近似理论的Ku方法^[3]及利用简化Mie理论^[5]方法相比,本文模型具有更高的精确度,其适用范围为满足解的单值性的各参数范围.(2)微粒系的粒径分布函数是一重要参量,其偏差将对吸收指数 k 的反演带来明显的误差,而对折射指数 n 的反演影响不大.(3)透射比的误差也将影响吸收指数 k 的反演结果,但对折射指数 n 的反演结果影响不大.

参考文献

- 1 Tien C L, Lee S C. *Prog. Energy Combust. Sci.*, 1982, **8**: 41
- 2 Brewster M Q, Kunitomo T. *J. Heat Transfer*, 1984, **106**: 678
- 3 Ku J C, Felske J D. *J. Opt. Soc. Am.*, 1986, **A3**: 617
- 4 Felske J D, Ku J C. *Combust. Flame*, 1992, **91**: 1
- 5 余其铮, 谈和平, 阮立明, 等. *红外与毫米波学报*, 1993, **12**: 340
- 6 Van de Hulst H C. *Light Scattering by Small Particles*, New York, Wiley, 1957
- 7 阮立明, 余其铮, 谈和平. *中国工程热物理学会燃烧学学术会议论文集*, 1993, 天津
- 8 Rossler D M, Faxveg F R. *Appl. Opt.*, 1979, **18**: 1399
- 9 Self S A. *Optical Properties of Flyash*, DE-AC22-87PC 79903, 1992

A TRANSMISSION METHOD FOR DETERMINATION OF OPTICAL CONSTANTS OF SMALL PARTICALS IN POLYDISPERSION*

Ruan Liming Yu Qizheng Tan Heping

(Power Engineering Department, Harbin Institute of Technology, Harbin, Heilongjiang 150001, China)

Abstract A technique was presented, which deduces the optical constants (the complex refractive indices) of small particles from the measured transmittance spectrum of a dilute polydispersion, by use of the precise Mie scattering theory and the Kramers-Kronig dispersion relation. The multi-valued characters and the suitable range of applications were discussed. The influence of the size distribution and the transmittance was thoroughly investigated, and it indicates that the errors of the size distribution and the transmittance will influence seriously the absorption index k , but weakly the refractive index n .

Key words Lorenz-Mie theory, optical constants, small particles, K-K relation.

*The project supported by the National Natural Science Foundation and Doctoral Research Foundation of Education Committee of China