

## Особенности прикладной реализации метода интегральной индикатрисы светорассеяния для модельных и природных частиц взвеси

П.В. Постникова, Н.В. Шепелевич\*

Институт вычислительного моделирования СО РАН  
660036, г. Красноярск, Академгородок, № 50, стр. 44

Поступила в редакцию 6.04.2012 г.

Показаны особенности формирования структуры интегральных индикатрис светорассеяния различных по размерам и показателям преломления частиц, моделирующих терригенную составляющую природных взвесей. Подробно рассмотрены вопросы, связанные с практической реализацией метода интегральной индикатрисы, выявлены области, где существенное влияние на структуру индикатрисы оказывают компоненты измерительной установки, а также предложены способы их корректировки. Теоретические индикатрисы рассчитывались в приближении Рэлея–Ганса–Дебая и теории Ми для сферических частиц.

*Ключевые слова:* интегральная индикатриса светорассеяния, минеральная взвесь, теория Ми, РГД-приближение, спектрофотометрия; *integral light phase scattering function, suspended mineral particles, Mie computation, Rayleigh–Gans–Debye approximation, spectrophotometry.*

В природных водах всегда присутствует большое количество частиц взвешенного вещества, объединенных общим названием «гидрозоль» (сестон) [1]. Взвесь можно разделить на два класса по своему происхождению: биогенная (органическая, в которую входит бактерио-, фито-, зоопланктон) и терригенная (неорганическая, представлена гетерогенным комплексом – детритом) [2].

В противоположность чисто растворенным веществам, которые в основном влияют на поглощение света водной средой, взвешенные вещества значительно увеличивают ее рассеивающие свойства. Показатели рассеяния света зависят от оптических констант частиц взвеси, которые определяются природой их вещества, а также от размеров частиц и длины волны света. Минеральная взвесь представляет собой смесь различных минералов, среди которых чаще всего встречаются каолинит, монтмориллонит, бейделлит, хлорид, палыгорскит, гидрослюда, кальцит, кварц [3–5].

Таким образом, взвешенные терригенные частицы существенно влияют как на рассеяние радиации при высоком их содержании и, следовательно, на особенности освещения на различных глубинах, так и на функционирование водных экосистем, поскольку большинство поверхностных вод суши содержат значительное количество минеральной компоненты.

Оптические свойства природных вод складываются из оптических характеристик отдельных компонентов и поэтому дают информацию об их содер-

жании в водной среде. Поскольку состав взвешенных и растворенных в воде веществ не только чрезвычайно разнообразен, но и сильно изменяется в пространстве и времени, в настоящее время актуальной является разработка методов исследования, сравнимых по времени со скоростями процессов, происходящих в изучаемой системе. Одним из таких теоретических методов решения обратной оптической задачи является метод интегральной индикатрисы светорассеяния [6].

Интегральная индикатриса светорассеяния  $F(\theta_0)$  представляет собой долю потока, рассеянного в конус с углом раствора  $2\theta_0$ , от всего потока рассеянной энергии. В работе [6] показано, что в приближении Рэлея–Ганса–Дебая (РГД) интегральная индикатриса светорассеяния однородного шара инвариантна в координатах  $\rho\theta_0$  и описывается выражением ( $\theta_0 \ll 1$ )

$$F(\rho\theta_0) = \frac{2}{9}(\rho\theta_0)^2 \sum_{n=0}^{\infty} \frac{P_n}{n+1} (-1)^n (\rho\theta_0)^{2n}, \quad (1)$$

где

$$P_n = \sum_{i=0}^{n-2} 2d_i d_{n-i} + \frac{d_n^2}{2} \quad (n - \text{четное}), \quad P_0 = 1;$$

$$P_n = \sum_{i=0}^{(n-1)/2} 2d_i d_{n-i} \quad (n - \text{нечетное});$$

$$d_n = \frac{d_{n-1}}{2n(2n+3)}; \quad d_0 = 1;$$

$\rho = 2\pi a/\lambda$  – дифракционный параметр;  $a$  – радиус сферического рассеивателя;  $\lambda$  – длина волны зондирующего излучения в дисперсионной среде.

\* Полина Владимировна Постникова (polina@icm.krasn.ru); Николай Викторович Шепелевич (jet@icm.krasn.ru).

Формула (1) справедлива с погрешностью менее 10% для  $\rho \geq 5$ ; при этом погрешность уменьшается с возрастанием  $\rho$ . Более того, применимость (1) для описания интегральной индикатрисы рассеяния выходит за рамки границ применимости теории РГД ( $\Delta \ll 1$ ) и достигает значений  $\Delta \leq 3-4$  ( $\Delta = 2\rho|m-1|$ ,  $m$  – относительный показатель преломления вещества рассеивателя).

Исходя из поведения интегральной индикатрисы светорассеяния, в работе [7] развит теоретический метод определения среднего размера клеток по половинному уровню рассеяния, который наблюдается при  $\rho\theta_0 = 1,75$ , а в работе [8] предложен способ практической реализации этого метода. Однако он позволяет оценивать только средний размер частиц взвеси, при этом информация о дисперсной системе (распределение по размерам, форма, количество частиц, их масса и др.), заложенная в структуре индикатрисы, не используется [9].

Цель нашей работы заключалась в экспериментальном исследовании интегральной индикатрисы светорассеяния для широкого спектра частиц, которые имеют различные показатели преломления и размеры, в том числе выходящие за рамки применения теории РГД ( $\Delta > 4$ ) с дальнейшей их реализацией на взвеси природного водоема. Теоретические оценки интегральной индикатрисы выполнены с учетом практической реализации метода на дифференциальном спектрофотометре ДСФГ-2 [10].

Согласно (1) формирование индикатрисы светорассеяния идет до  $\rho\theta_0 = 3$ , поэтому при разложении в ряд можем ограничиться пятым членом ряда:

$$F(\rho\theta_0) = \frac{2}{9} \left\{ (\rho\theta_0)^2 - \frac{1}{10} (\rho\theta_0)^4 + \frac{1}{175} (\rho\theta_0)^8 - \dots \right\} \quad (2)$$

$$- \frac{1}{4775} (\rho\theta_0)^{12} + \frac{2}{363825} (\rho\theta_0)^{16} \left. \right\}. \quad (2)$$

На рис. 1 представлена геометрия измерения интегральной индикатрисы светорассеяния. Особенностью метода измерения является непрерывное изменение положения кюветы относительно приемника (на схеме – переменная величина  $L$ ). При движении кюветы с исследуемой взвесью от максимального до минимального расстояний до входного окна интегрирующей сферы изменяется угол регистрации рассеянных лучей фотоприемником, установленным на выходе интегрирующей сферы.

Зависимость расстояния  $L$  от угла рассеяния  $\theta_0$  для центра кюветы, согласно рис. 1, можно представить в виде

$$\frac{l}{2} \operatorname{tg} \theta_0 + h \operatorname{tg} \beta + L \operatorname{tg} \varphi = R. \quad (3)$$

Исходя из геометрии прибора:  $R = 16$  мм ( $R$  – радиус входного окна интегрирующей сферы),  $h = 3$  мм,  $l = 10$  мм – длина кюветы,  $L$  меняется в пределах 423–3 мм, а угол  $\theta_0$  – в пределах от 1,6 до 46°.

По закону Снеллиуса

$$\frac{\sin \beta}{\sin \theta_0} = \frac{n_{\text{воды}}}{n_{\text{стекла}}}; \quad \frac{\sin \beta}{\sin \varphi} = \frac{n_{\text{возд.}}}{n_{\text{стекла}}}; \quad \frac{\sin \theta_0}{\sin \varphi} = \frac{n_{\text{возд.}}}{n_{\text{воды}}}. \quad (4)$$

Как видно из рис. 1, угол  $\theta_0$  рассчитан для центра кюветы, т.е. не учитываются положения элементарных объемов рассеяния, отличных от центрального. Чтобы оценить, какой вклад они вносят в рассеянный поток, рассмотрим интеграл, суммирующий

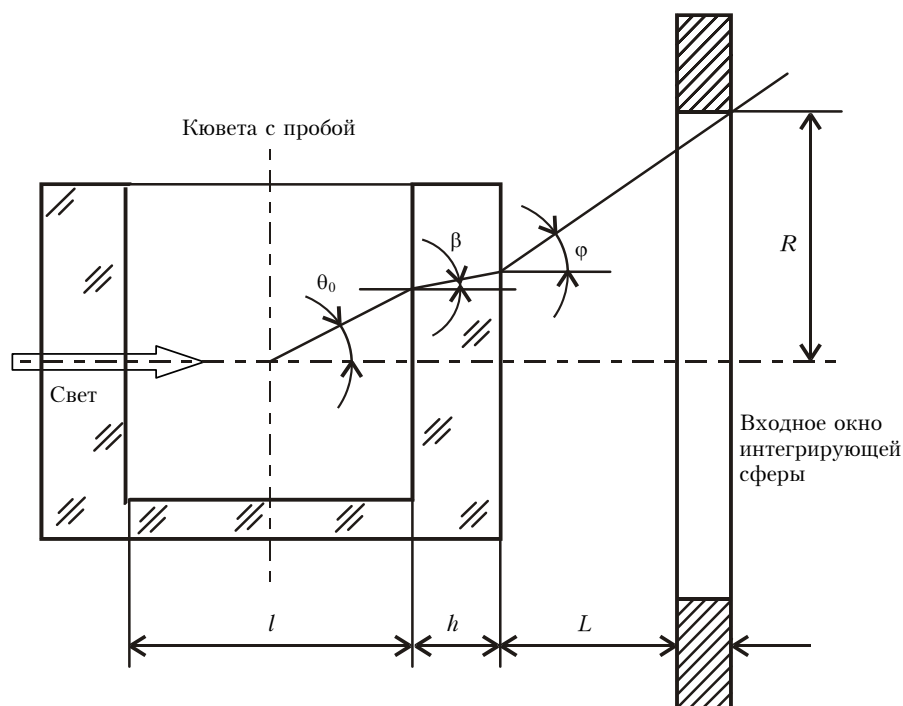


Рис. 1. Схема измерения интегральной индикатрисы светорассеяния

все потоки от элементарных объемов, лежащих на центральном луче, по всей длине кюветы:

$$\frac{\int_0^l F(\rho\theta) dx}{\int_0^l dx} = \frac{\int_0^l F(\rho\theta) dx}{l}, \quad (5)$$

где  $x$  — переменная интегрирования, тогда  $dx = x'(\theta) d\theta$ .

Из рис. 1 следует:

$$\begin{aligned} x \operatorname{tg} \theta + 3 \operatorname{tg} \beta + L \operatorname{tg} \varphi &= 16, \\ x &= \frac{16 - 3 \operatorname{tg} \beta - L \operatorname{tg} \varphi}{\operatorname{tg} \theta}. \end{aligned} \quad (6)$$

Для упрощения вычислений сделаем предположение, что при  $\theta \ll 1$   $\sin \theta_0 \approx \operatorname{tg} \theta_0 \approx \theta_0$ ;  $\sin \beta \approx \operatorname{tg} \beta \approx \beta$ ;  $\sin \varphi \approx \operatorname{tg} \varphi \approx \varphi$ .

Тогда с учетом (4)

$$x = \frac{16}{\theta} - 3 \frac{n_{\text{возд}}}{n_{\text{стекла}}} - L \frac{n_{\text{воды}}}{n_{\text{возд}}}; \quad dx = -\frac{16}{\theta^2} d\theta. \quad (7)$$

Искомый интеграл (5) от угла с учетом (2) и (7) будет иметь вид

$$\begin{aligned} \frac{1}{l} \int_0^l F(\rho\theta) dx &= \frac{16}{l} \int_{\theta_1}^{\theta_2} F(\rho\theta) / \theta^2 d\theta = \\ &= \frac{1}{l} \left\{ 16 \rho^2 \frac{2}{9} \int_{\theta_1}^{\theta_2} \left[ 1 - \frac{1}{10} (\rho\theta)^2 + \frac{1}{175} (\rho\theta)^4 - \right. \right. \\ &\quad \left. \left. - \frac{1}{4775} (\rho\theta)^6 + \frac{2}{363825} (\rho\theta)^8 \right] d\theta = \right. \\ &= \frac{16 \rho^2}{l} \frac{2}{9} \left\{ \theta - \frac{1}{10} \rho^2 \frac{\theta^3}{3} + \frac{1}{175} \rho^4 \frac{\theta^5}{5} - \right. \\ &\quad \left. - \frac{1}{4775} \rho^6 \frac{\theta^7}{7} + \frac{2}{363825} \rho^8 \frac{\theta^9}{9} \right\}. \end{aligned} \quad (8)$$

При  $x = 0$  и  $l$  значения углов рассеяния составят  $\theta_1$  и  $\theta_2$  соответственно:

$$\begin{aligned} \frac{1}{l} \int_0^l F(\rho\theta) dx &= \\ &= \frac{32 \rho^2}{9l} \left\{ (\theta_2 - \theta_1) - \frac{1}{30} \rho^2 (\theta_2^3 - \theta_1^3) + \frac{1}{875} \rho^4 (\theta_2^5 - \theta_1^5) - \right. \\ &\quad \left. - \frac{1}{33425} \rho^6 (\theta_2^7 - \theta_1^7) + \frac{1}{3274425} \rho^8 (\theta_2^9 - \theta_1^9) \right\}. \end{aligned} \quad (9)$$

Из уравнений (3) и (4) находим

$$\theta = \frac{16}{x + 3 \frac{n_{\text{возд}}}{n_{\text{стекла}}} - L \frac{n_{\text{воды}}}{n_{\text{возд}}}}. \quad (10)$$

Подставляя значения  $x$  для передней ( $x = 0$ ) и задней ( $x = l = 1$  см) стенок кюветы, находим изменения  $\theta_1$  и  $\theta_2$  при движении кюветы.

На рис. 2 показано, как меняются углы, рассчитанные по формуле (10), от передней и задней стенок кюветы, а также в центре кюветы. Видно, что различия в расчете углов существенны при приближении кюветы к входному окну сферы ( $L \rightarrow 0$ ).

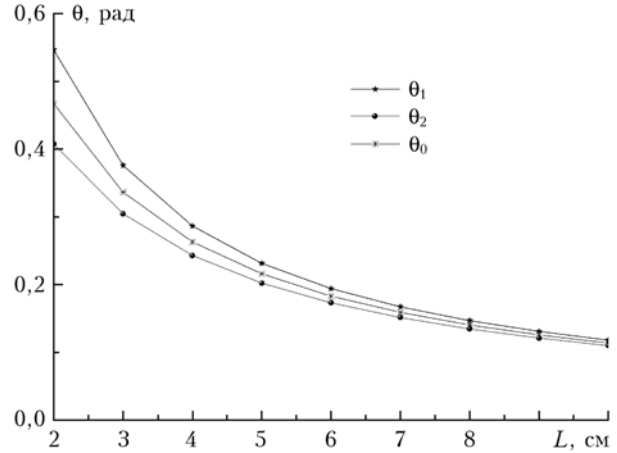


Рис. 2. Изменение углов рассеяния при движении кюветы, рассчитанных для передней  $\theta_1$  и задней  $\theta_2$  стенок, а также от центра кюветы  $\theta_0$

Сравним полученное выражение (9) с выражением (2) при  $l = 1$  см для всего диапазона  $L$  при различных дифракционных параметрах  $\rho$ . Другими словами, найдем долю, которую составляет разница между интегралом индикатрисы светорассеяния, суммирующим все углы рассеяния по всей длине кюветы, и интегралом индикатрисы, рассчитанной для центрального луча:

$$D = \left[ \int_0^l F(\rho\theta) dx - F(\rho\theta) \right] / \int_0^l F(\rho\theta) dx.$$

При увеличении дифракционного параметра увеличивается ошибка расчета, но при этом она не превышает 15% (рис. 3).

Для устранения влияния длины кюветы была использована схема, применяемая для измерения показателя ослабления света. После кюветы располагается линза, в главном фокусе которой находится диафрагма. Меняя диафрагмы с различным диаметром отверстия, мы получим дискретную по заданным углам индикатрису светорассеяния.

Ослабление света, распространяющегося во взвеси и регистрируемого приемным устройством спектрофотометра, выражается уравнением [10]:

$$-dI = \{ \kappa + [1 - F(\theta_0)] \sigma \} I dl, \quad (11)$$

где  $F(\theta_0)$  и  $[1 - F(\theta_0)]$  — доля светового потока, рассеянного в телесном угле  $\theta_0$  и вне его;  $\kappa$  — показатель поглощения,  $\text{м}^{-1}$ ;  $\sigma$  — показатель рассеяния,  $\text{м}^{-1}$ .

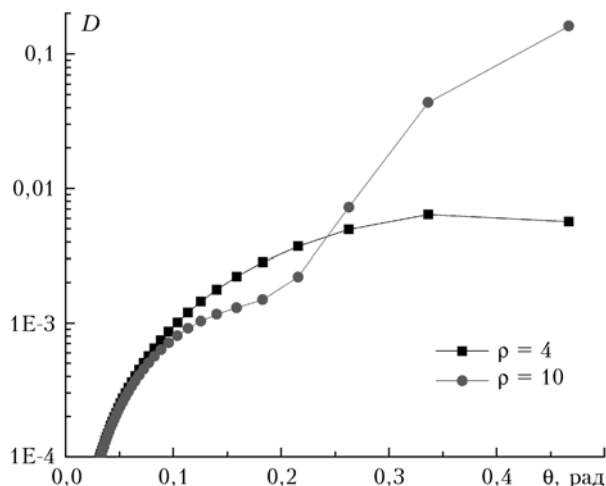


Рис. 3. Доля разницы рассеянных потоков, рассчитанных по формулам (2) и (9), при различных дифракционных параметрах

Мы усложняем процесс измерения, отходя от экспрессности, но повышаем точность расчета. В данном эксперименте использовались диафрагмы, изменяющие угол регистрации от 0,02 до 0,2 рад.

Данные теоретические выводы были применены к модельным экспериментам, где в качестве взвешенного вещества был выбран типичный представитель терригенной составляющей минеральной взвеси в природных водоемах – монтмориллонит.

В первой серии экспериментов использовался полидисперсный раствор монтмориллонита с доминантным размером частиц 0,35 мкм. Распределение частиц по размерам с помощью микроскопических исследований оказалось близким к распределению типа Юнге –  $N = \text{const} \cdot D^{-\gamma}$ , где  $N$  – число частиц размером больше  $D$ ;  $\gamma$  – характерная константа ( $\leq 4-5$ ) для данной суспензии. В качестве моделей взвеси использовались однородные сферические частицы. Расчет дифференциальной индикатрисы светорассеяния осуществлялся с помощью теории Ми по алгоритму, предложенному в работе [11], далее выполнялось интегрирование в конус с заданным углом раствора для получения интегральной индикатрисы. Результаты сравнения индикатрис представлены на рис. 4.

Как видно из рис. 4, наблюдается расхождение экспериментальных и рассчитанной по теории Ми индикатрис. Это расхождение заключается в изменении формы индикатрисы и объясняется суммарным влиянием двух факторов: полидисперсностью частиц и геометрическими особенностями эксперимента. Влияние полидисперсности на форму индикатрисы обусловлено рассеянием больших частиц в малых углах. А геометрические особенности влияют следующим образом: согласно формуле (3), а также рис. 2, с одной стороны, мы приближаемся к углам, близким к углу полного внутреннего отражения, величина которого составляет  $48^\circ$ , что означает потерю части рассеянного потока за счет отражения; с другой стороны, значительное влияние начинает оказывать толщина кюветы, где расхождение по углам рассеяния от задней и передней стенок кюветы становится существенными при  $L \leq 10$  см.

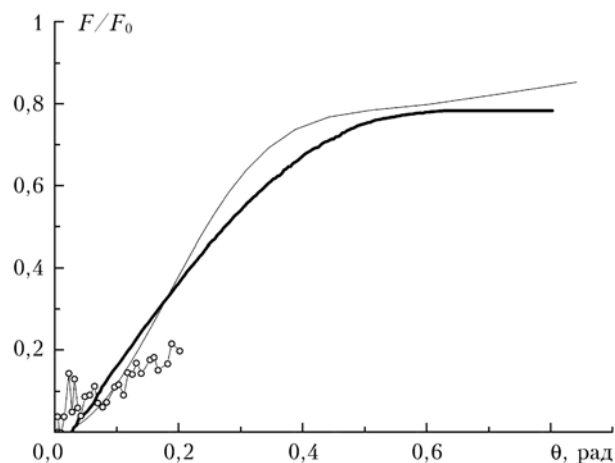


Рис. 4. Индикатрисы рассеяния для полидисперсного раствора монтмориллонита со средним диаметром частиц 0,35 мкм и относительным показателем преломления 1,15: рассчитанная по теории Ми (тонкая линия); измеренная при движении кюветы (жирная); измеренная с помощью линзы и набора диафрагм (кружки) при длине волны зондирующего излучения 450 нм

Во второй серии экспериментов использовался монодисперсный раствор монтмориллонита с диаметром частиц 1,2 мкм и относительным показателем преломления 1,15 (рис. 5).

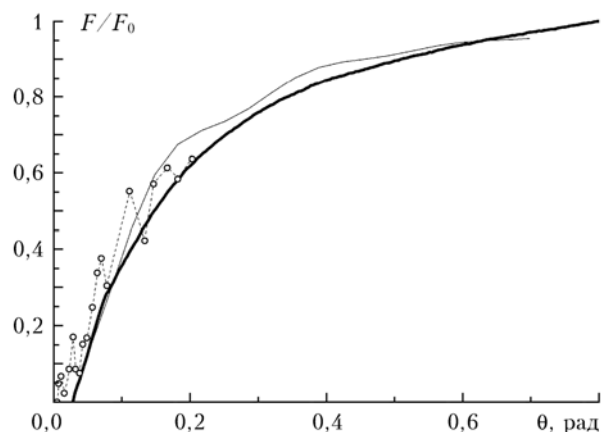


Рис. 5. Индикатрисы рассеяния для монодисперсного раствора монтмориллонита: рассчитанная по теории Ми (тонкая линия); измеренная при движении кюветы (жирная); с помощью линзы и набора диафрагм (кружки) при длине волны света 400 нм

Если взвесь имеет узкий спектр распределения по размерам (моноразмерная), то индикатрисы, измеренные разными способами и рассчитанные по точной теории, практически совпадают. В этом случае нет необходимости прибегать к диафрагмам. Здесь нет расхождения с теоретической индикатрисой, и объясняется это тем, что для больших РГД частиц практически вся рассеянная энергия уходит в узкий пучок в направлении вперед. Поэтому эффектами, которые повлияли на характер индикатрисы для мелких частиц глины, можно пренебречь, ввиду того что структура индикатрисы сформирована до  $13^\circ$  и может быть с большой точностью описана теорией РГД.

В третьей серии экспериментов в качестве взвешенных частиц были выбраны латексы с диаметром частиц 2 мкм и относительным показателем преломления 1,21. Частицы латекса не являются оптически мягкими, и поэтому к ним неприменимо приближение РГД ( $\Delta \geq 6$ ). Тем не менее частицы латекса удобны для моделирования процесса светорассеяния ввиду своей сферичности и точно обозначенного размера. Результаты представлены на рис. 6, где показаны индикатрисы рассеяния, регистрируемые при длине волны 450 нм (для индикатрис с применением диафрагм были взяты 3 длины волны — 440, 450, 460 нм).

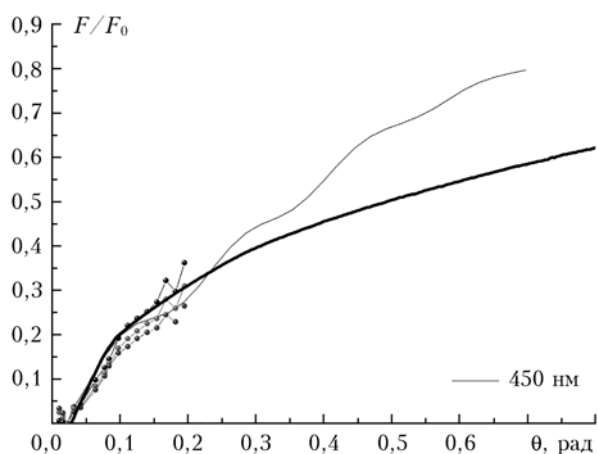


Рис. 6. Индикатрисы рассеяния для раствора латекса с частицами диаметром 2 мкм и относительным показателем преломления 1,21: рассчитанная по точной теории (тонкая линия); измеренная при движении кюветы (жирная); с помощью линзы и набора диафрагм (кружки) при длине волны зондирующего излучения (450 ± 10) нм

Здесь также хорошо видны расхождения интегральных индикатрис, рассчитанных по теории Ми и полученных экспериментально при движении кюветы. При этом индикатриса, регистрируемая с помощью диафрагм, наиболее точно совпадает с индикатрисой, рассчитанной теоретически.

Рис. 6 наглядно демонстрирует, что для индикатрисы частиц, не попадающих в область РГД, как видно из экспериментов и расчетов, соблюдается тенденция, отмеченная нами ранее. До 13° можно непосредственно считать ее по точной теории, а дальше необходима корректировка с учетом геометрии прибора.

Проведенные модельные эксперименты позволили оценить применимость метода интегральной индикатрисы на природном водоеме. В качестве такого водоема было взято оз. Ханка — водоем лессового типа с большим содержанием мелкодисперсной минеральной взвеси. При большом содержании минеральной компоненты влияние других составляющих взвесей будет незначительно.

На рис. 7 представлена индикатриса светорассеяния для одной из станций оз. Ханка.

В связи с более широким распределением частиц по размерам, а также многокомпонентным составом терригенной взвеси хорошо видны расхождения ме-

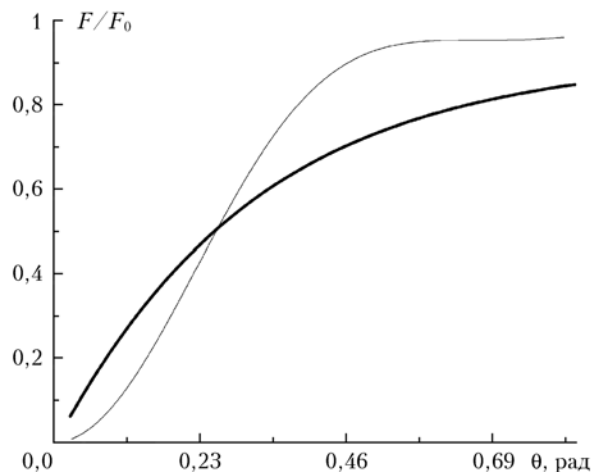


Рис. 7. Индикатрисы рассеяния для взвеси оз. Ханка: рассчитанная по точной теории (тонкая линия) и измеренная при движении кюветы (жирная)

жду индикатрисами, полученными при помощи теории Ми и экспериментально. В то же время определение среднего размера частиц благодаря методу интегральной индикатрисы проводится с высокой точностью из-за совпадения половинного уровня рассеяния у обеих индикатрис. Тут еще более ярко наблюдаются эффекты, как и в модельных экспериментах на мелкой полидисперсной взвеси глины. Так как данная взвесь имеет неоднородный состав, широкий спектр распределения по размерам и неоднозначность определения показателя преломления, характер индикатрисы, рассчитанной теоретически, сглаживаются, а влияние толщины кюветы на регистрацию угла рассеяния становится значительным. Следовательно, для работы с взвесью природного водоема необходимо учитывать приведенные результаты и корректировать полученную информацию.

Таким образом, на основании вышеизложенного можно сделать вывод, что геометрические особенности метода измерения (а именно, диаметр входного отверстия, толщина кюветы) вносят существенный вклад в формирование экспериментально полученной индикатрисы. При этом наибольшее влияние этих факторов оказывается в области углов в диапазоне от 13 до 46°. Однако в области до 13° предложенный метод позволяет получать экспериментальную индикатрису с минимальными искажениями. Отсюда, в частности, следует, что для больших оптически мягких частиц можно получать индикатрисы, соответствующую реальной, т.е. непосредственно пользоваться выводом теории Рэлея—Ганса—Дебая. Для частиц, сравнимых с длиной волны, после 13° необходимо учитывать геометрию прибора. Для частиц, выходящих за рамки применения теории РГД (в частности, латекс), до 13° получаем теоретическую кривую, а после 13° нужна корректировка с учетом геометрии прибора.

Несмотря на то что мы рассматривали только дифференциальный спектрофотометр ДСФГ-2, выявленные особенности реализации метода могут быть распространены и на более широкий класс приборов с использованием кюветы и похожей схемы измерения.

Авторы статьи выражают глубокую благодарность Н.Я. Шапареву и В.В. Заворуеву за детальное обсуждение выполненной работы.

1. *Sasaki T., Okami N., Oshiba G., Watanabe S.* Studies on suspended particles in deep sea water // *Sci. Pap., Inst. Phys. Chem. Res. (Tokyo)*. 1962. V. 56, N 1. P. 77–83.
2. *Богданов Ю.А.* Взвесь в морской воде // *Гидрофизические и гидрооптические исследования в Атлантическом и Тихом океанах*. М.: Наука, 1974. С. 242–258.
3. *Богданов Ю.А., Лисицын А.П.* Распределение и состав взвешенного вещества в водах Тихого океана // *Океанол. исслед.* 1968. № 18. С. 75–155.
4. *Зенкевич Л.А.* Биология морей СССР. М.: Изд-во АН СССР, 1963. 739 с.
5. *Виноградов А.П.* Введение в геохимию океана. М.: Наука, 1967. 216 с.

6. *Сидько Ф.Я., Лопатин В.Н., Пармонов Л.Е.* Поляризационные характеристики взвесей биологических клеток. Новосибирск: Наука, 1990. 118 с.
7. *Лопатин В.Н., Сидько Ф.Я.* Введение в оптику взвесей клеток. Новосибирск: Наука, 1988. 240 с.
8. *Лопатин В.Н., Анонасенко А.Д., Щур Л.А., Филимонов В.С.* Пат. РФ № 94038742. Оптический способ определения размера частиц в суспензии, 1994.
9. *Ван де Хюлст Г.* Рассеяние света малыми частицами: Пер. с англ. М.: Изд-во иностр. лит., 1961. 536 с.
10. *Лопатин В.Н., Анонасенко А.Д., Щур Л.А.* Биофизические основы оценки состояния водных экосистем (теория, аппаратура, методы, исследования). Новосибирск: Изд-во СО РАН, 2000. 353 с.
11. *Борен К., Хафмен Д.* Поглощение и рассеяние света малыми частицами: Пер. с англ. М.: Мир, 1986. 660 с.

*P.V. Postnikova, N.V. Shepelevich.* **Particularities of applied use of integral scattering phase-function method for modeled and natural suspension of particles.**

Particularities of structure formation of integral light scattering phase functions differing in sizes and refractive indices of particles which model terrigenous constituents of natural suspensions are shown. The problems of applied realization of integral scattering phase function method have been investigated in detail. Influences of components of measuring equipment and ways of their correction have been proposed. Numerical calculation are performed with Mie computation and Rayleigh–Gans–Debye approximation.