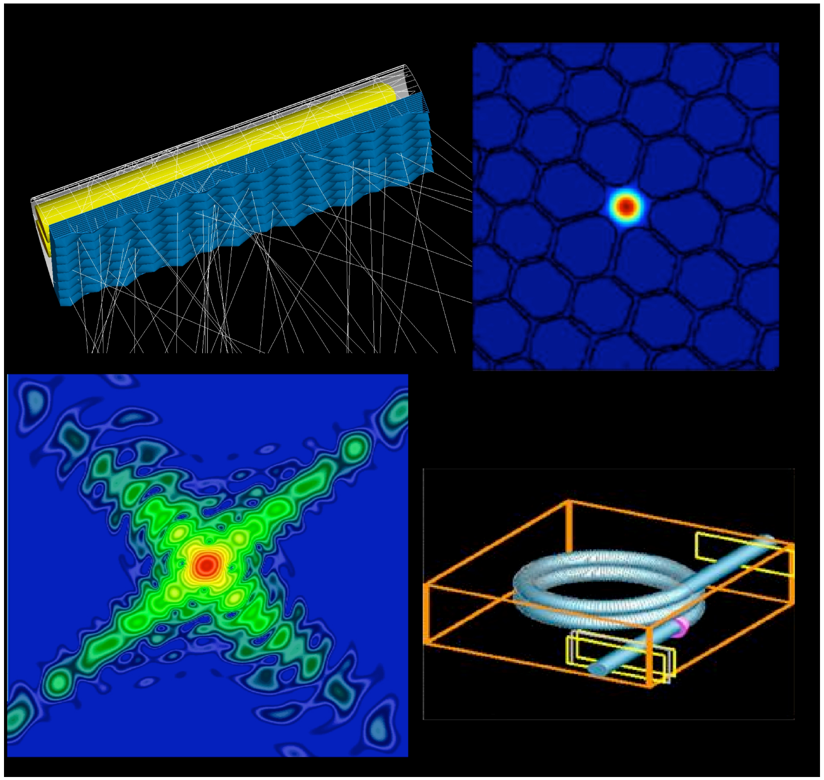
# Inverses Streuproblem bei der optischen Partikelcharakterisierung

Dr. Bernhard Michel,
Simuloptics GmbH

www.simuloptics.de

Simuloptics

# Simuloptics GmbH



• seit Februar 2006

•Design und Analyse
Optischer Systeme

• Spezialisten für Lichtstreuung,
Störlichtanalyse

• Softwarerepräsentanz der
Breault Research Organization
und von Lumerical in Mittel-
Europa (Optiksoftware)

•„Nachfolger“ des Ing.-Büro Dr.
Bernhard Michel

Simuloptics

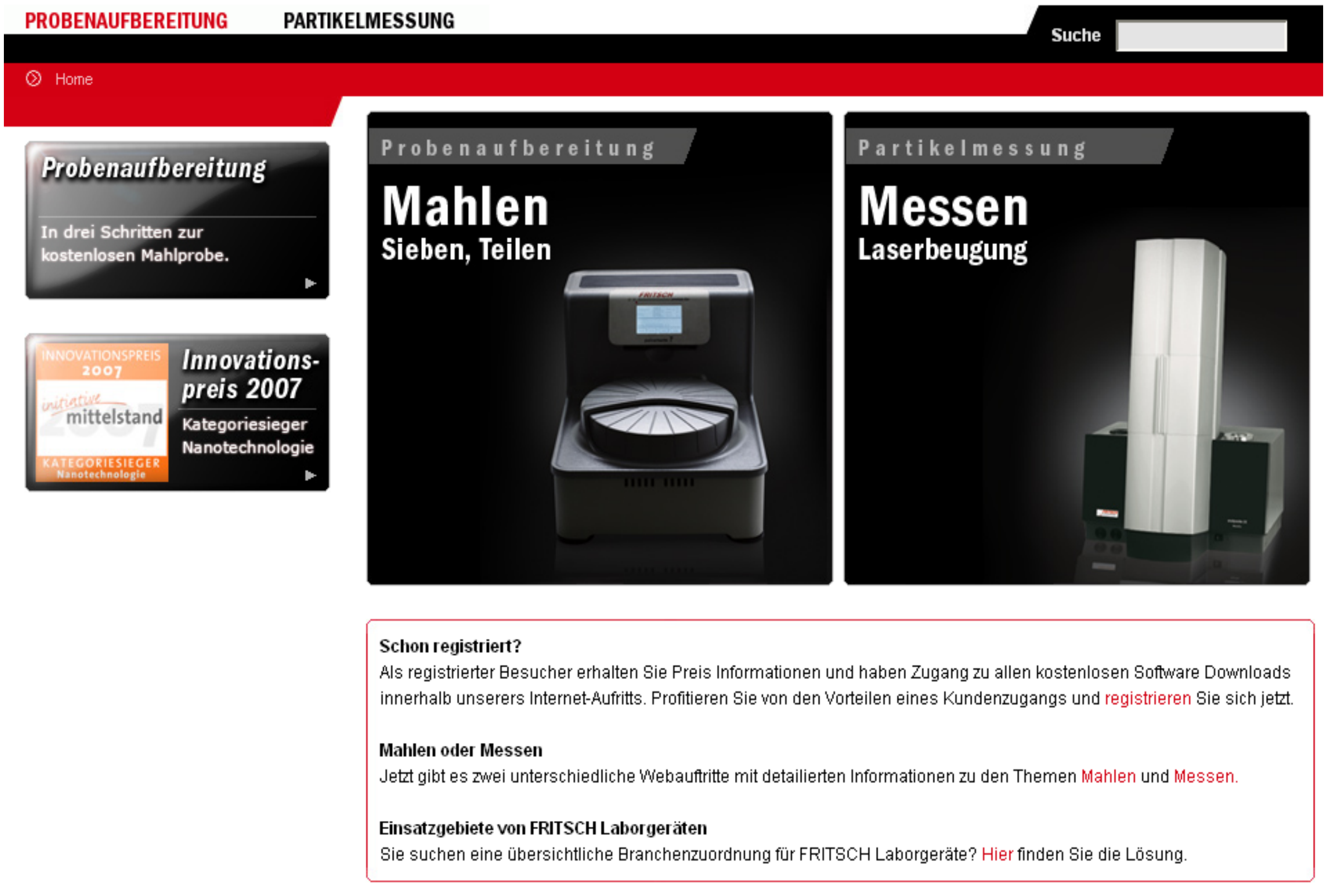
# B. Michel

- 1992 Promotion Physik (Theoretische Kern-und Teilchenphysik) in Erlangen
- 1992 – 1998: Optische Eigenschaften von Staubteilchen (Uni Jena, Max-Planck Research Unit. „Staub in Sternentstehungsgebieten“)
- 1998-2006: Ing.-Büro Dr. Bernhard Michel
- Seit 2006: Geschäftsführer Simuloptics GmbH

Simuloptics

# Fritsch GmbH – Idar Oberstein

FRITSCH




Simuloptics

# Entwicklung eines Laserbeugungsgeräts

- Die folgenden Ausführungen basieren auf einem Entwicklungsprojekt für die Fritsch GmbH
- Zahlreiche der dargestellten Ergebnisse wurden von der Fritsch GmbH zur Verfügung gestellt.
- Mein Dank gilt insbesondere Herrn Wolfgang Mutter, Entwicklungsleiter bei Fritsch

Simuloptics

# Lichtstreuung

## Einführung

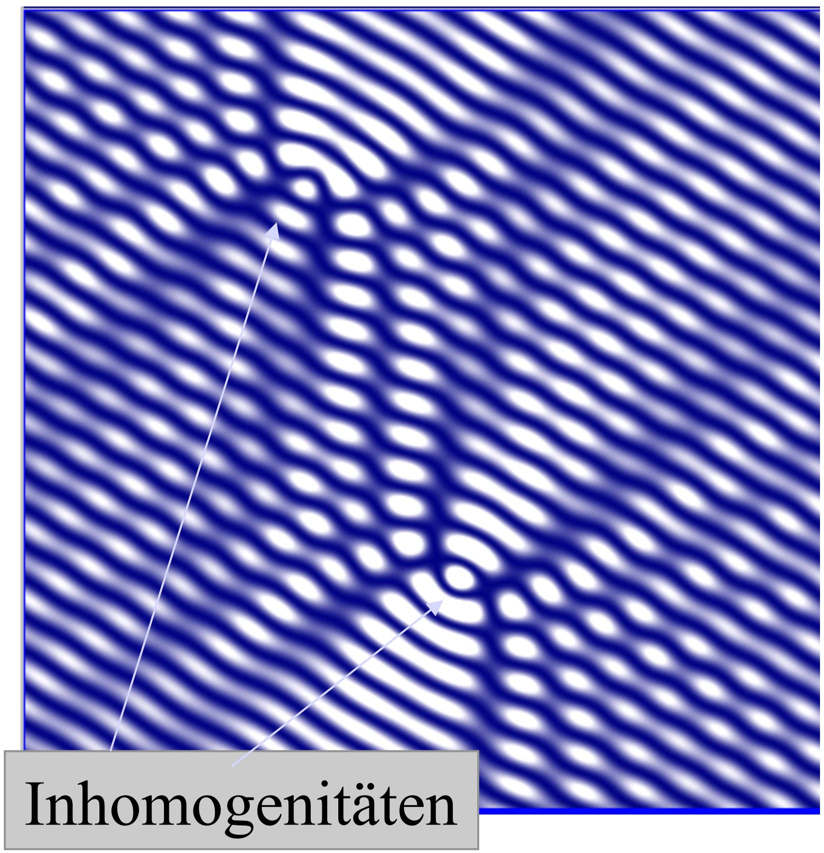
Simuloptics

# Lichtausbreitung in einem homogenen, isotropen Medium

- Licht breitet sich als ebene Welle aus

Simuloptics

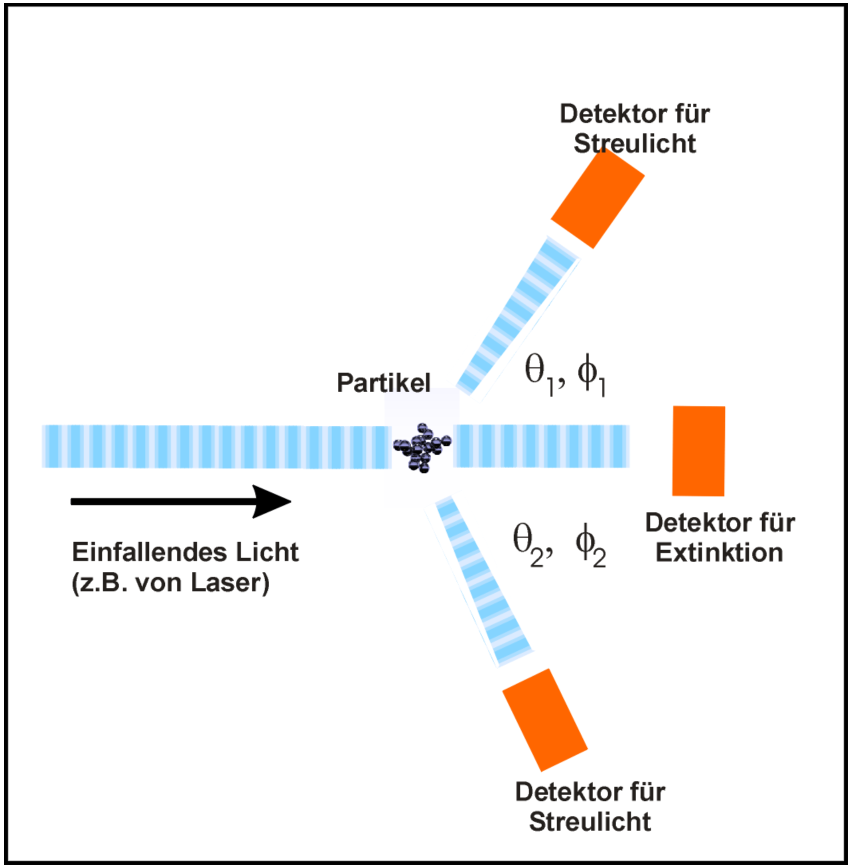
# Lichtausbreitung in inhomogenen Medien




- Inhomogenitäten (Partikel, Fehlstellen,Brechzahl-schwankungen) stören das elektromagnetische Feld
- Gesamtfeld = ebene Welle + gestreute Welle
- Streuung = Störung des elektromagnetischen Feldes durch Inhomogenitäten des Mediums
- i.F. Beugung = Streuung

Simuloptics

# Experimentelle Charakterisierung des Streulichts



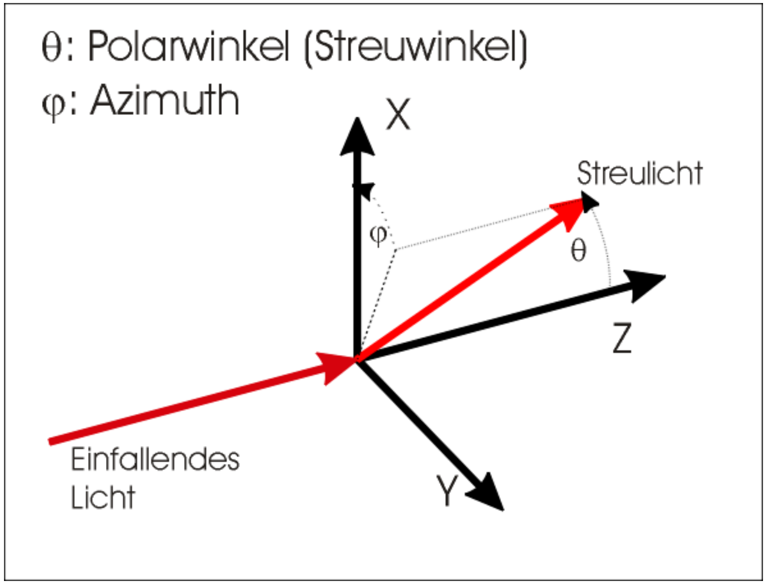

Messung der gestreuten Intensität im **Fernfeld** als Funktion des Winkels => Streufunktion **S(θ, ϕ)**

Evtl. auch : Messung der Stokes-Parameter

Messung der Strahl-Abschwächung (Extinktion)

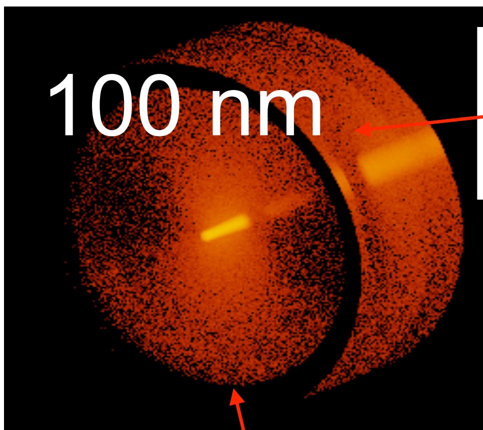
Simuloptics

# Winkelabhängigkeit

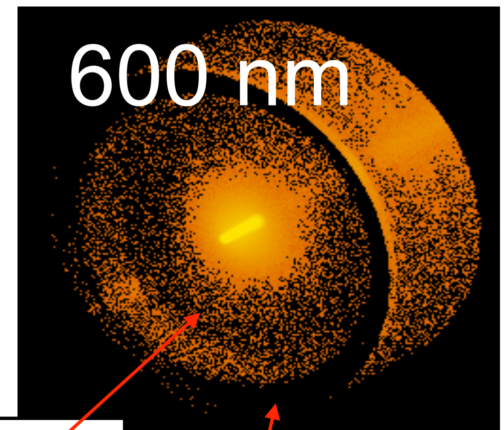



Streufunktion hängt sowohl
vom Polarwinkel als auch
vom Azimuth ab!

# Partikel in einer Küvette, einfallendes Licht horizontal polarisiert (Simulation)




Weitwinkel-
streuung




Hauptsächlich
Streuung unter
kleinen Winkeln

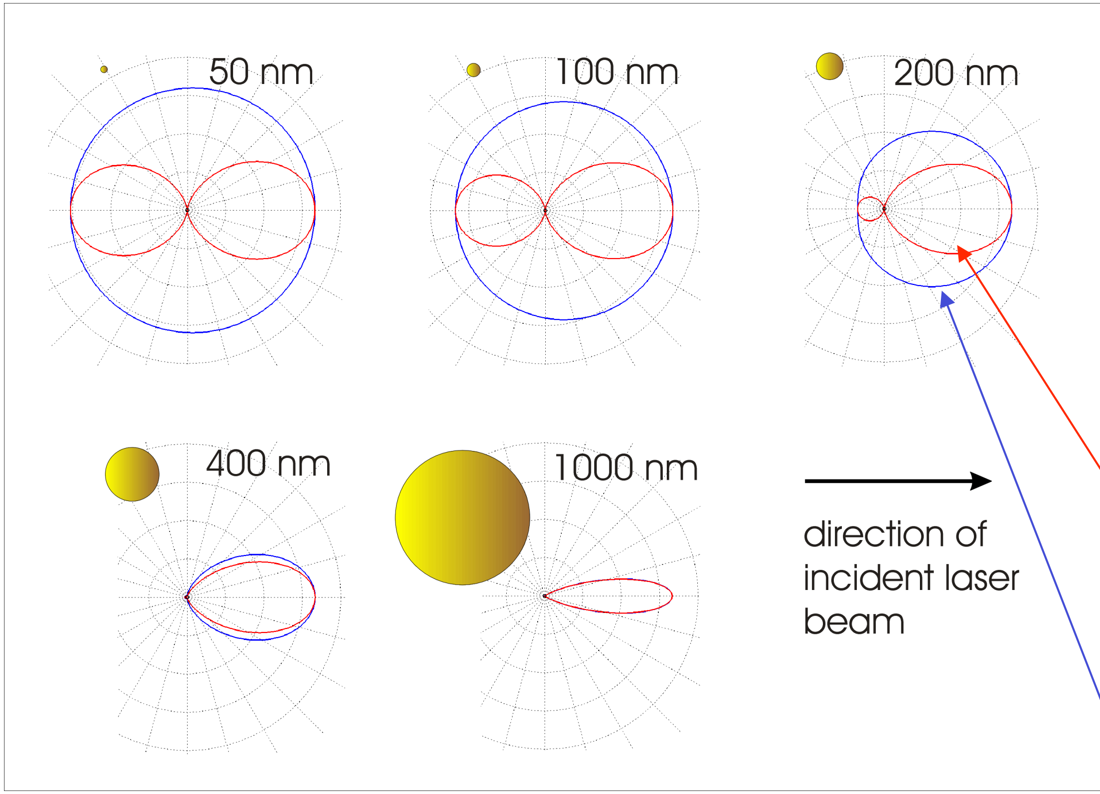
starke

schwache

Azimuth-Abhängigkeit

Simuloptics

# Typische Ergebnisse - Winkelabhängigkeit




Starke Abhängigkeit von Partikelgröße und Polarisation

Bei großen Partikeln dominiert Vorwärts-streuung

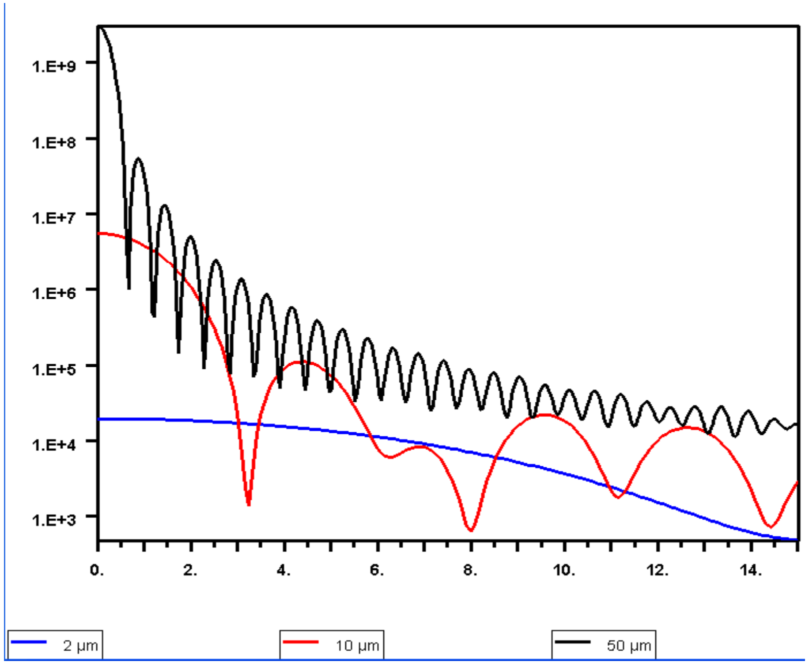
Parallele Polarisation

Senkrechte Polarisation

$\lambda$=633 nm

Simuloptics

# Abhängigkeit vom Polarwinkel θ

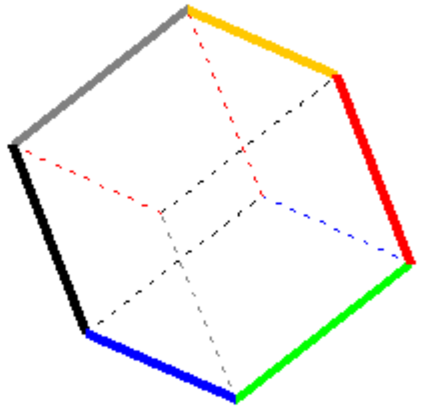


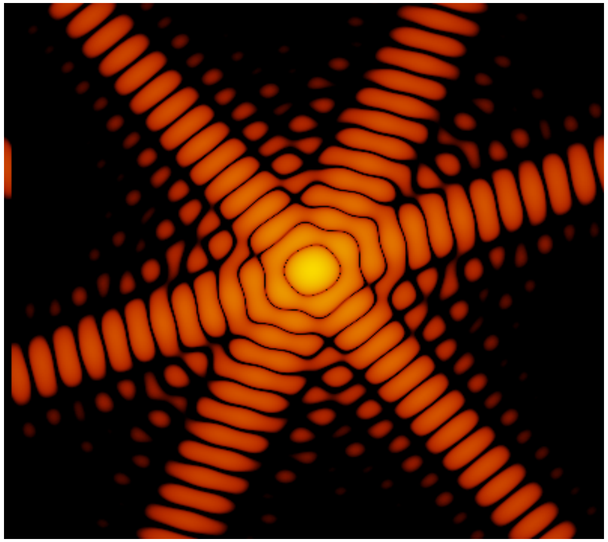

Charakteristische Abhängigkeit von der Partikelgröße.

=> geeignet zur Partikelgrößen-bestimmung

Simuloptics

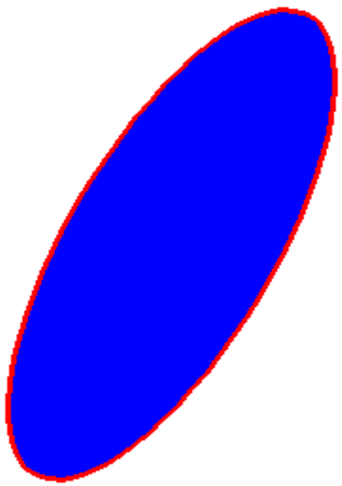
# Kleinwinkelstreuung an Würfel

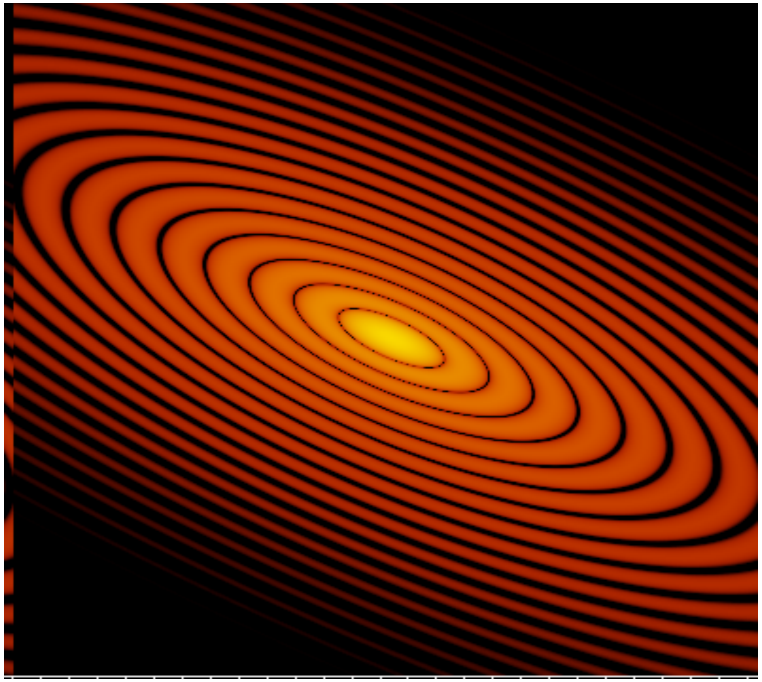




Simuloptics

# Kleinwinkelstreuung an Sphäroid





Simuloptics

# Zusammenfassung

- Die Winkelverteilung des Streulichts hängt in charakteristischer Weise von den Partikeleigenschaften ab
  - Dominanter Parameter: Partikelgröße.
  - aber auch: Partikelform

  => ideal zur schnellen, berührungslosen, zerstörungsfreien Partikelcharakterisierung geeignet

Simuloptics

# Theorie der Lichtstreuung

Simuloptics

# Mie Theorie

Im Jahre 1908 veröffentlichte Gustav Mie seine berühmten

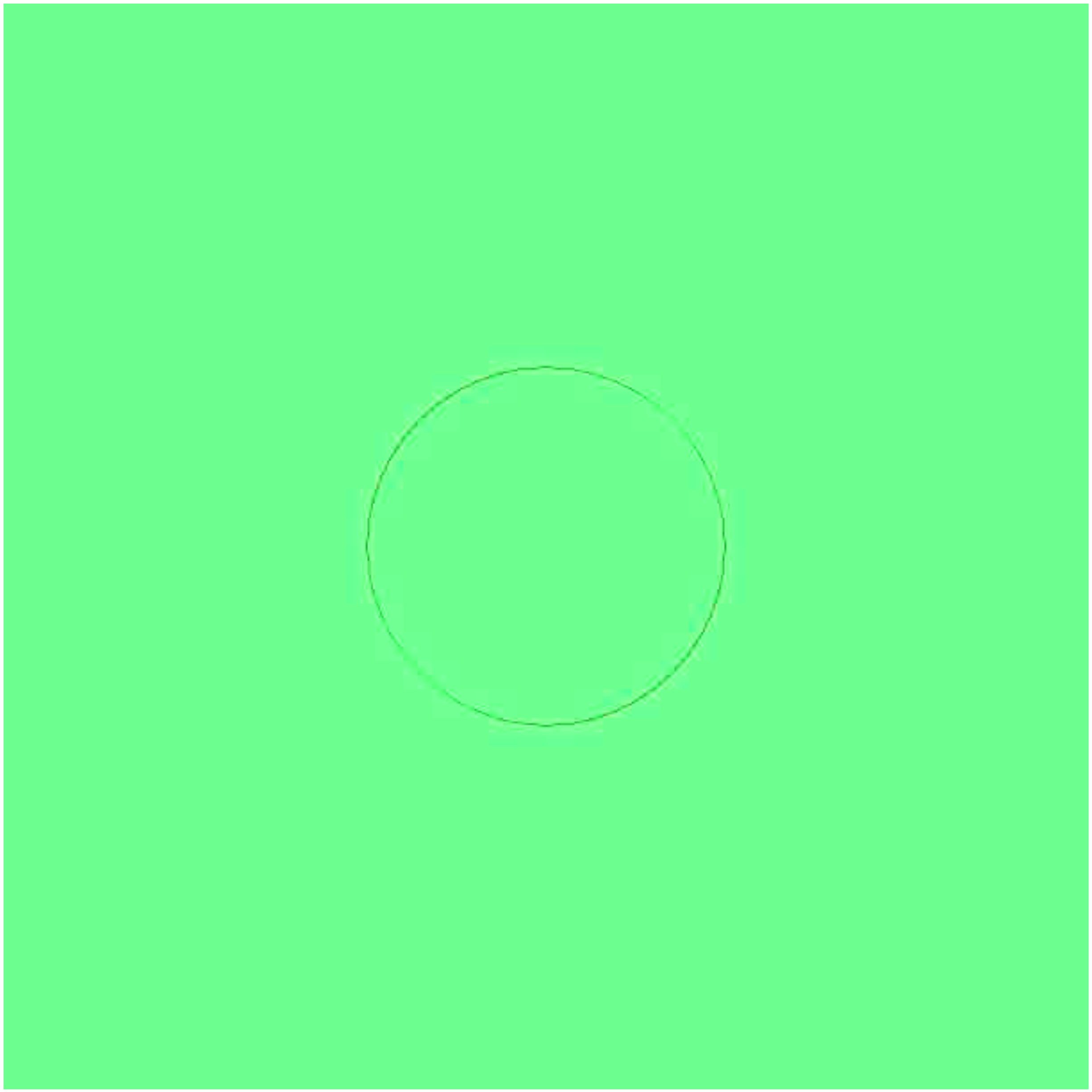
„ Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen“, Annalen der Physik, Vierte Folge, Band 25, 1908, No. 3, p 377-445.

•Streuung einer *ebenen* Welle an *einer homogenen*, *isotropen Kugel*

•Berechnung der Lösung der Maxwellgleichung in Kugelkoordinaten (Multipolentwicklung)

Simuloptics

# FDTD Simulation



Lichtstreuung
an homogener
Kugel mit
Brechungsindex
N=3, R=0.15 µ
$\lambda_{av}$=0.65 µm

Anregung mit
Wellenpaket

Gewinnung frequenz-
abhängiger Größen
durch Fourier-Trans-
formation

Software: **FDTD Solutions, Lumerical**,

Simuloptics

# Darstellung des gestreuten Feldes

$$\mathbf{E}_{sca} = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} i^n \left( i b_n \mathbf{N}_{o1n}^{(3)} + a_n \mathbf{M}_{e1n}^{(3)} \right)$$

$$\begin{aligned} a_n, b_n \quad &: \quad \text{Mie-Koeffizienten} \\ \mathbf{N}_{omn}^{(3)}, \mathbf{M}_{emn}^{(3)} \quad &: \quad \text{Multipole (auslaufende Kugelwellen)} \\ & \quad\;\; (1 \le n, 0 \le m \le n) \end{aligned}$$

Aus Symmetriegründen werden nur wenige Multipole angeregt (nur die mit „magnetischer Quantenzahl“ 1)

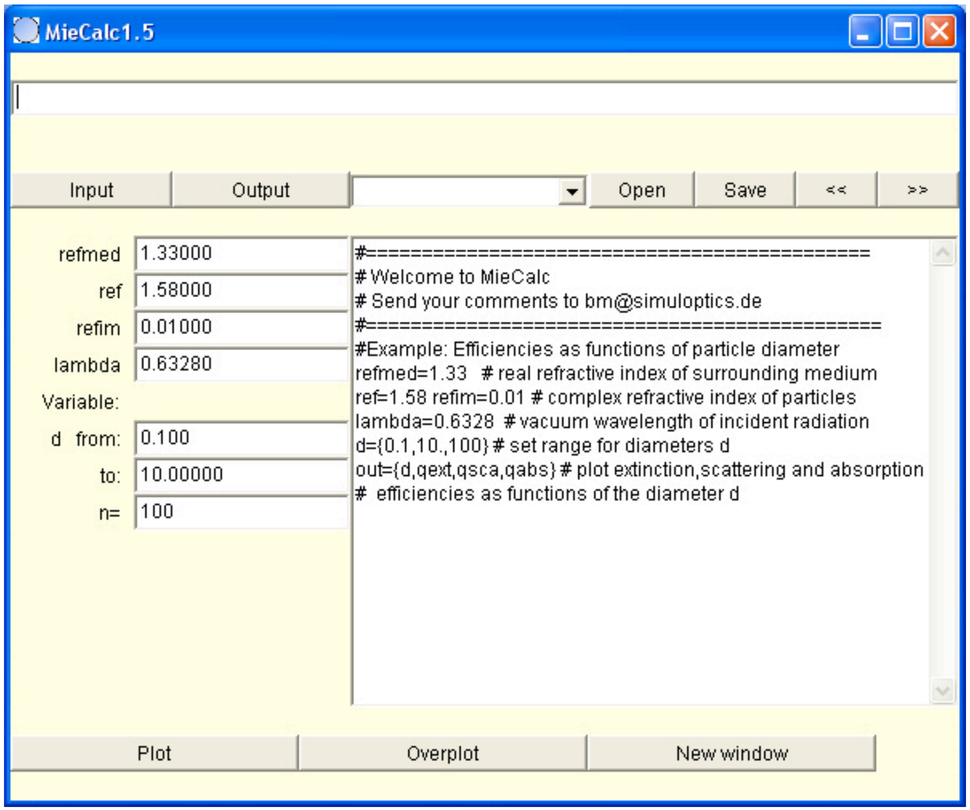
Simuloptics

# Bemerkungen

- Analytische Lösung des Streuproblems
- Extrem schnell zu berechnen,  für beliebige Parameterwahl => Voraussetzung zur Lösung des inversen Problems
- Im gezeigten Beispiel ca. $10^7$ mal schneller als FDTD
- Alle Observablen (Streuquerschnitte etc.) können aus der Mie-Theorie berechnet werden
- Weitere analytische Lösung von Streuproblemen: Streuung an „Zwiebelteilchen" (radial geschichtete Partikel)
- „Fast analytisch": Streuung an Sphäroiden (Asano&Yamamoto)
- Für große Partikel eignet sich u.U. die Fraunhofernäherung
- Für alle anderen Partikelformen sind zeitaufwändige numerische Lösungen nötig.

Simuloptics

# *www.simuloptics.de/optikonline*




Online Mie-Calculator
„MieCalc“

graphische Darstellung beliebiger Parameterabhängig-keiten in der Mie Theorie

Simuloptics

# Messtechnische Umsetzung

Simuloptics

# Anwendung Partikelgrößenmessung mit Laserbeugung


Messung von Partikelgrößen-verteilungen

Annahme: Mie-Theorie gilt.

Beispiel:
**Analysette 22 Zoomsizer**,
Fritsch GmbH (Idar Oberstein)

# Partikelgrößenbestimmung

- Partikelgrößenverteilung von Schüttgütern oft entscheidend für deren Eigenschaften
  - chemische Eigenschaften: Reaktionszeiten proportional zur Partikeloberfläche
  - Farbe von Kolloiden
  - Schütteigenschaften (zum Beispiel dichteste Packung)
- Qualitätskontrolle: Partikelgrößenverteilung als „Indikator“ für gleich bleibende Qualität

Simuloptics

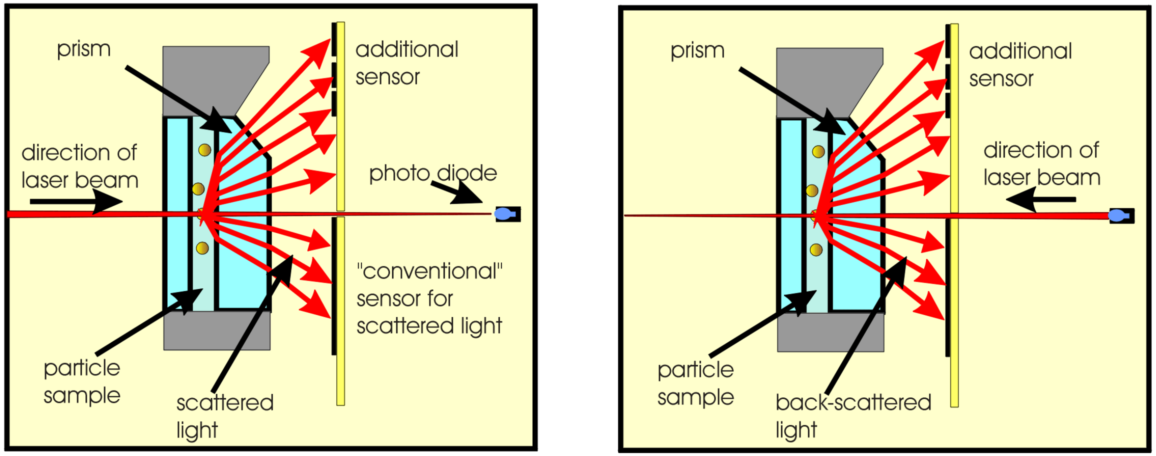
# Laserbeugungsmessgerät zur Partikelcharakterisierung.

**Entwicklungsziel:** ***"Gerät zur gleichzeitigen Größen-Formbestimmung der Partikel."***

- *Herausforderung 1*: Hoher Dynamikbereich für Partikelgrößenbestimmung von 10 nm bis 1 mm
- *Herausforderung 2*: Partikelformerkennung innerhalb weniger Sekunden
- *Herausforderung* 3: Kosteneffizienz

Simuloptics

# Messprinzip



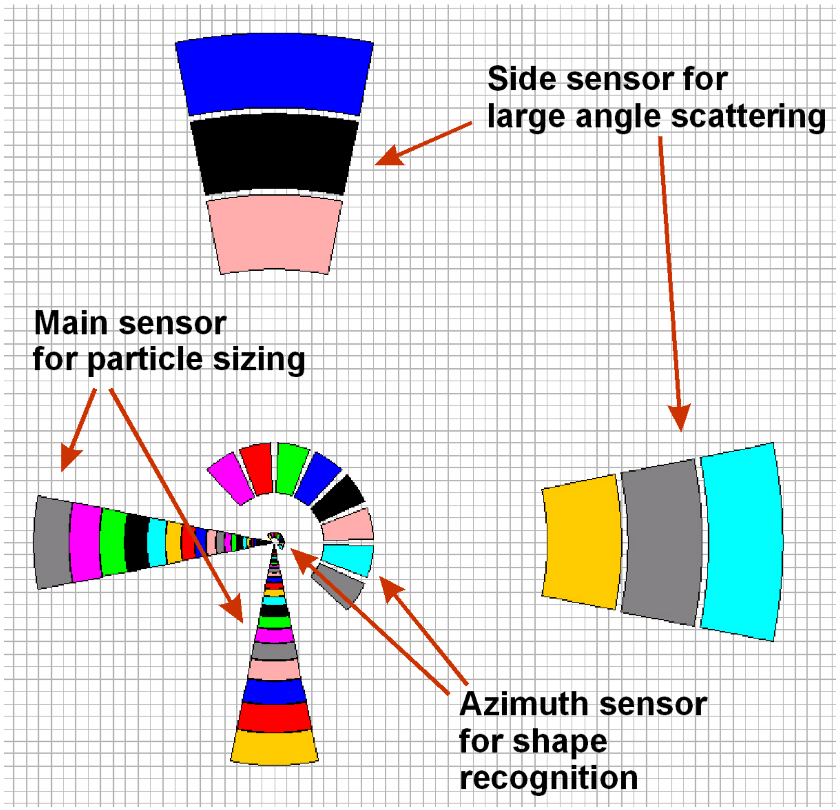

"Normal" measurement using laser 1

Illumination from back side using laser 2

Beleuchtung mit konvergentem Laserstrahl (650 nm) aus zwei Richtungen; Messung mit zahlreichen Detektoren

Simuloptics

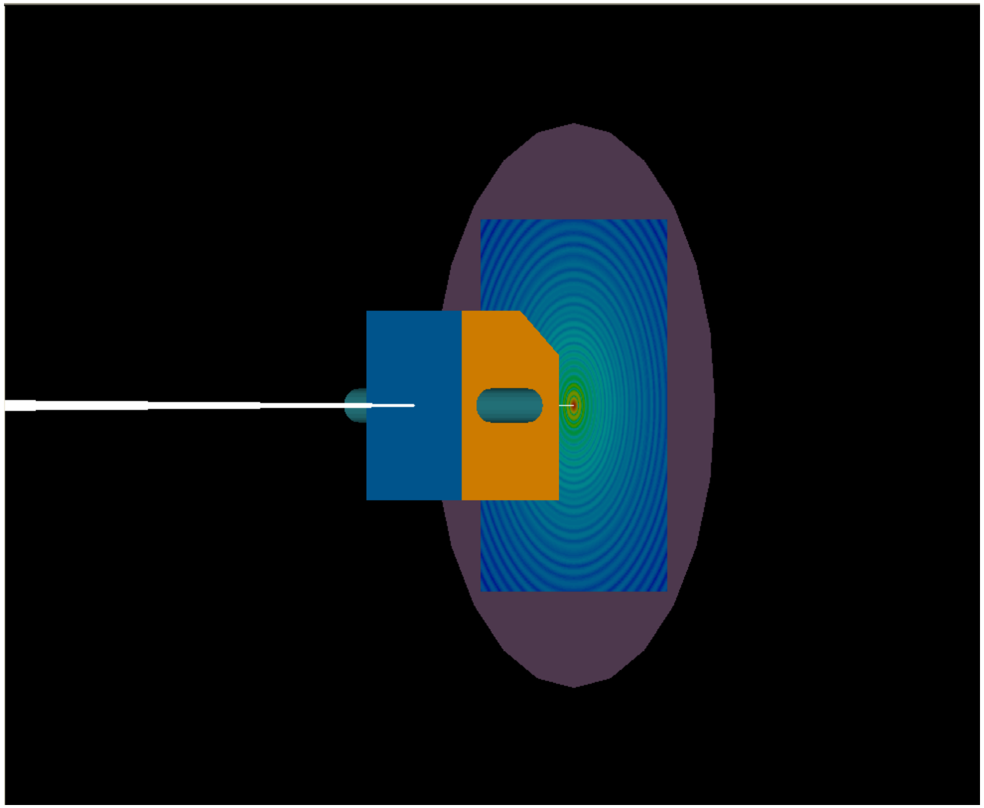
# Sensorgeometrie der Analysette 22



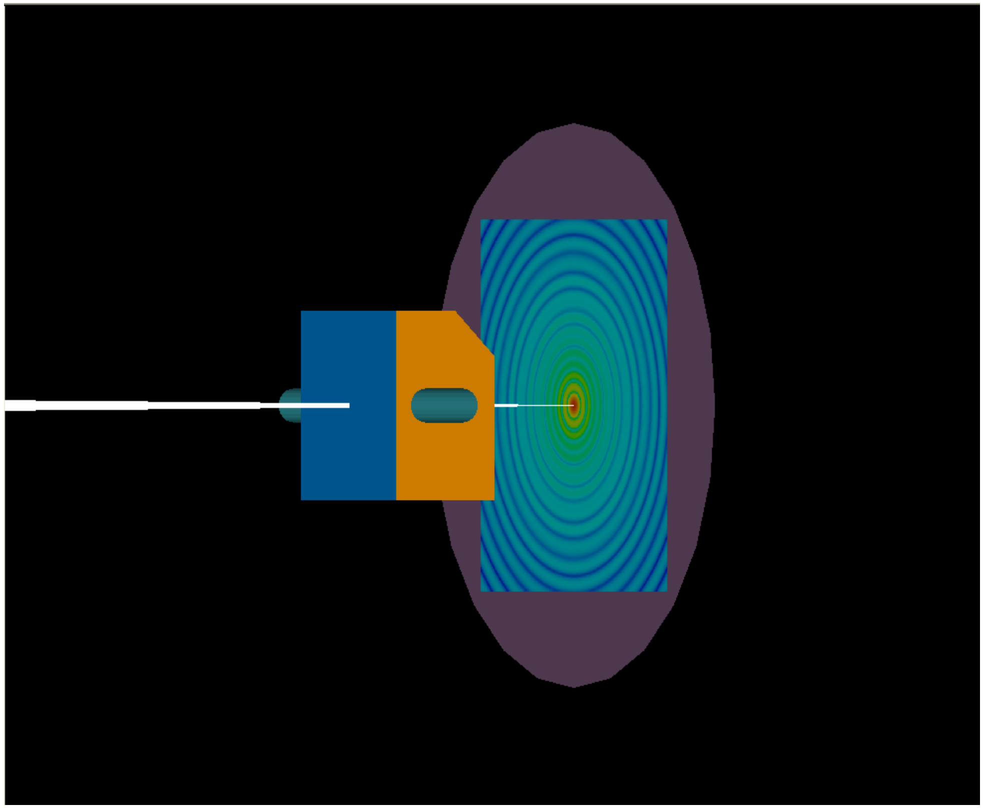

Aufteilung in horizontale und vertikale Sensoren, wichtig zur Messung kleiner Partikel (Polarisationsab-hängigkeit der Streulichtverteilung!)

Simuloptics

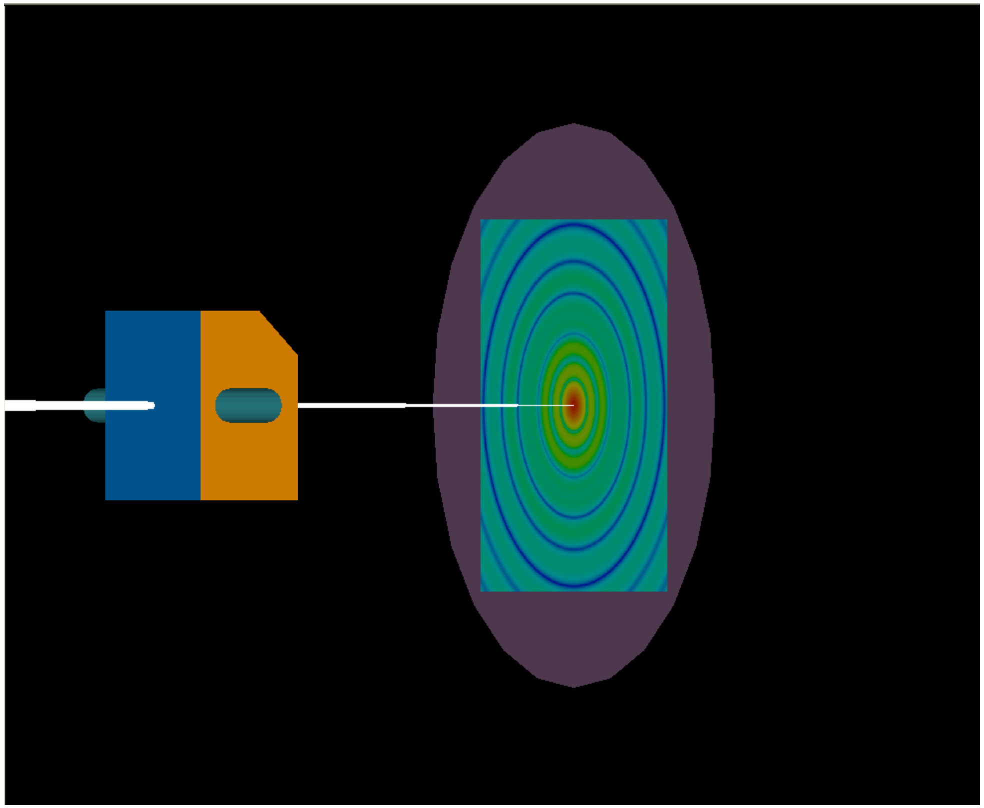
# Warum „Zoomsizer“?



Simuloptics



Simuloptics



Konvergenter Strahl
(Inverser Fourier-Aufbau)

wirkt wie ein Zoom Objektiv und ermöglicht so einen großen Messbereich

Von 10 nm – 2 mm
(5 Größenordnungen)

Simuloptics

# Inverse Streuung

= Messung der Streufunktion,
Rückschluss auf
Partikeleigenschaften

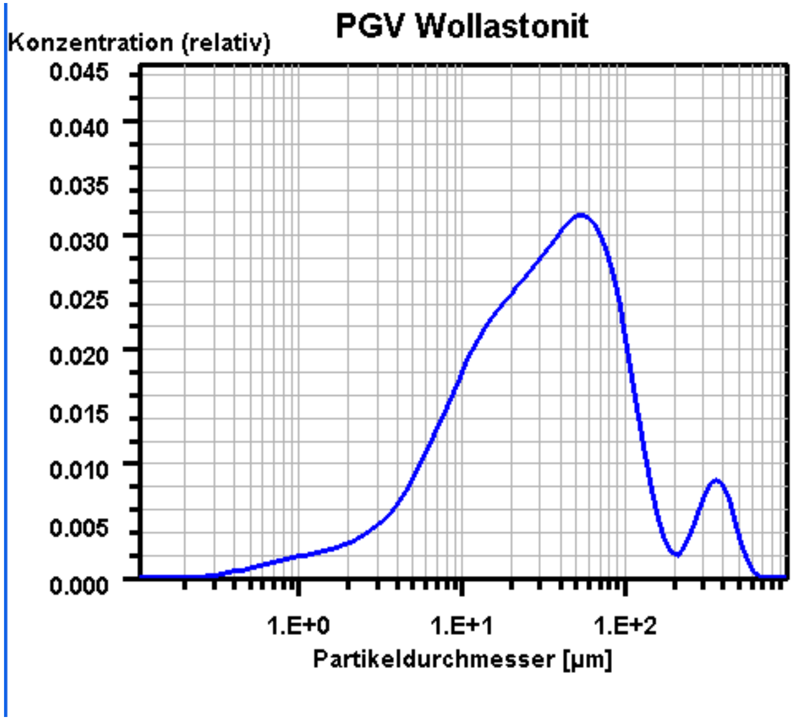
Simuloptics

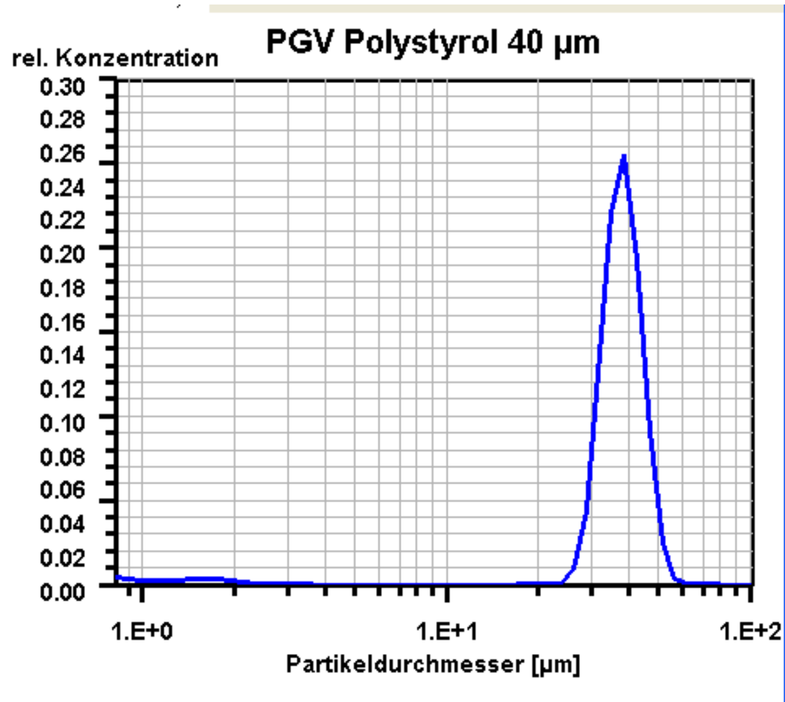
# Anwendungen

- Bestimmung von *Partikelgrößenverteilungen* – Hauptanwendungsgebiet
- Bestimmung von *Forminformationen*

Simuloptics

# Partikelgrößenbestimmung




Beispiele für gemessene Partikel-
größenverteilungen

Simuloptics

# Anforderungen

- Großer Dynamikbereich: von wenigen nm bis in der Millimeterbereich
- Enge und sehr breite Verteilungen möglich
- Keine einfachen Modellannahmen über die zu erwartende Verteilung möglich; so „modellunabhängig wie möglich“
- Auch: Ergebnisse sollten vergleichbar sein mit anderen Messgeräten (Erwartungshaltung der Kunden!)

Simuloptics

# Formalismus

# Partikelgrößenverteilung

- In der untersuchten Probe befinden sich sehr viele Teilchen mit einer (i.a. unbekannten) Partikelgrößenverteilung (PGV)
- c(x) -- Volumenkonzentrationsverteilung für Partikeldurchmesser x
- c(x) dx – Volumenkonzentration der Partikel mit Partikelgröße im Intervall [x, x+dx]

Simuloptics

# Grundgleichung

$$p_i = \int_{x_{min}}^{x_{max}} T_i(x)\, c(x)\, dx \quad (i = 1, \ldots, N)$$

$N$ : Zahl der Messkanäle (typischerweise 50 – 300).

$p_i$ : Leistung in Messkanal $i$

$x$ : Partikeldurchmesser

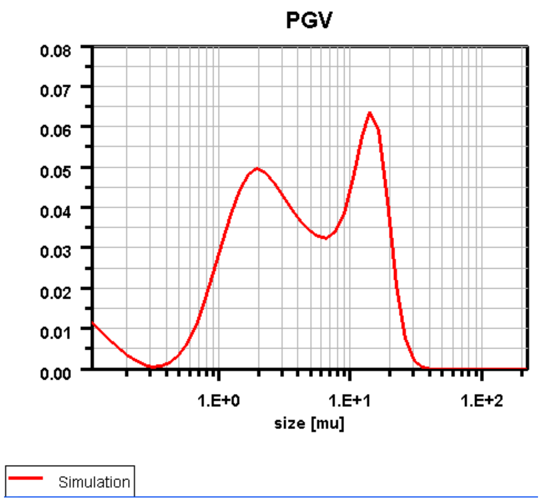
$x_{min}$ : Untere Messgrenze. Je nach Aufgabe und Gerät minimal ca. 10 nm

$x_{max}$ : Obere Messgrenze. Je nach Aufgabe und Gerät maximal ca. 2 mm

$T_i(x)$ : Transferfunktion; kann unter Berücksichtigung aller Gerätedetails sowie der Mie-Theorie (oder der sog. Fraunhofernäherung, die für größere Partikel sehr gut funktioniert), berechnet werden.

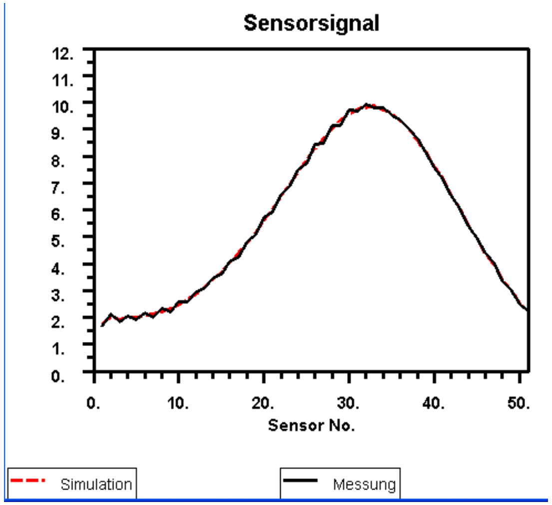
$c(x)$ : Volumenkonzentrationsdichte; $C = \int_{x_{min}}^{x_{max}} c(x)\, dx$ ist die Volumenkonzentration aller Partikel. Typischer Größenordnung $C = 10^{-5} \ldots 10^{-3}$.

# Vorwärtsrechnung und Inverses Problem




Vorwärts: Berechnung des Sensorsignals aus vorgegebener Partikel-Größenverteilung (PGV)

Inverses Problem: Berechnung der PGV aus dem gemessenen Sensorsignal



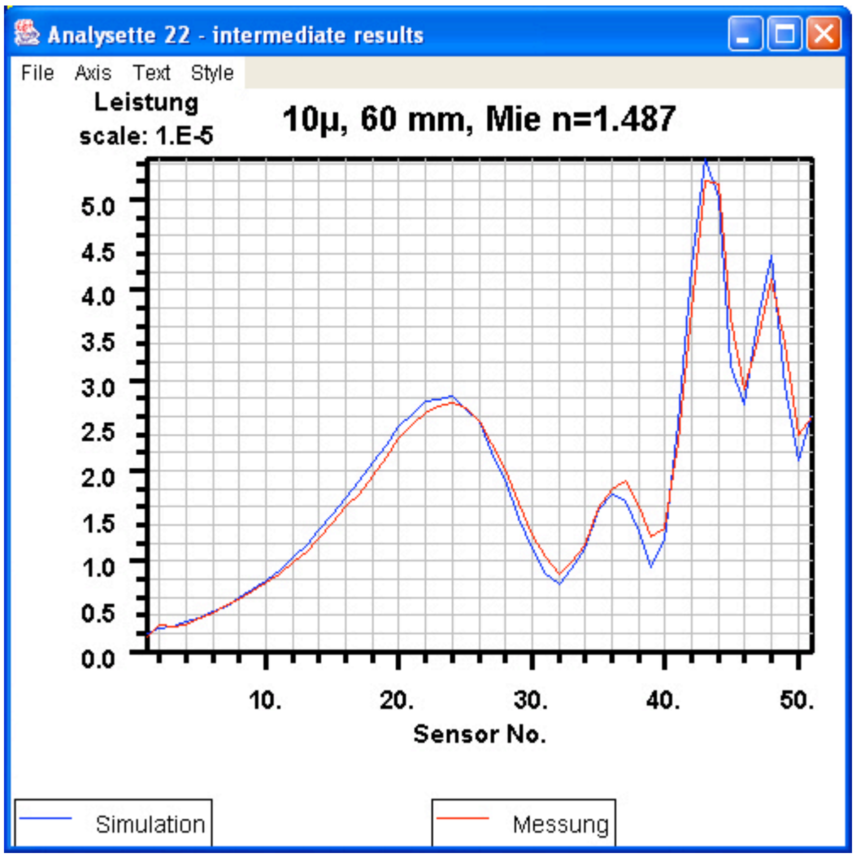

Der Inversionsalgorithmus berechnet unter allen möglichen PGVs diejenige, welche die beste Übereinstimmung zwischen simuliertem und gemessenen Sensorsignal ergibt. Als *Maß* für die Übereinstimmung wird eine geeignete Gütefunktion verwendet, zum Beispiel die RMS-Abweichung von den Messignalen

**Inverses Problem = Minimierung der Gütefunktion**

Simuloptics

# Vorwärtsrechnung ist Voraussetzung zur Lösung des inversen Problems

- Wie gut funktioniert die Vorwärtsrechnung?




Beispiel: Polystyrolpartikel mit 10 µm Durchmesser.

Vergleich zwischen Simulation und Messung (nach Abzug des Messhintergrundes)

Hervorragende Übereinstimmung!

Simuloptics

# Bemerkungen

- Übereinstimmung ist nicht immer so gut
- Messhintergrund durch Verschmutzung des Glases und Kratzer kann problematisch sein
- Richtige Probendispergierung ist das A&O.
- Rauschen spielt kaum eine Rolle, da über viele Messungen gemittelt wird (Zeitmittel) und die Partikel durch die Messzelle gepumpt werden (Scharmittel)

Simuloptics

# Nun zum inversen Problem

- Rückführung auf Matrixgleichung

$$p_i \approx \sum_{j=1}^{M} T_{ij}\, c_j$$

wobei

$M$ : Zahl der Partikelklassen

$c_j \geq 0$ : Konzentration der Partikelklasse $j$. Der zugehörige Partikeldurchmesser $x_j$ wird meist als geometrische Folge angesetzt:

$$x_i = \left(\frac{x_{max}}{x_{min}}\right)^{\frac{2i-1}{2M}} x_{min}$$

# Weiterbehandlung: Multiplikation mit Diagonalmatrizen S und Q

$$\mathbf{p} \approx \underline{\underline{T}} \cdot \mathbf{c}$$

Original"gleichung"

$$\mathbf{b} = \underline{\underline{S}} \cdot \mathbf{p}, \quad \mathbf{z} = \underline{\underline{Q}} \cdot \mathbf{c}, \quad \underline{\underline{A}} = \underline{\underline{S}} \cdot \underline{\underline{T}} \cdot \underline{\underline{Q}}^{-1}$$

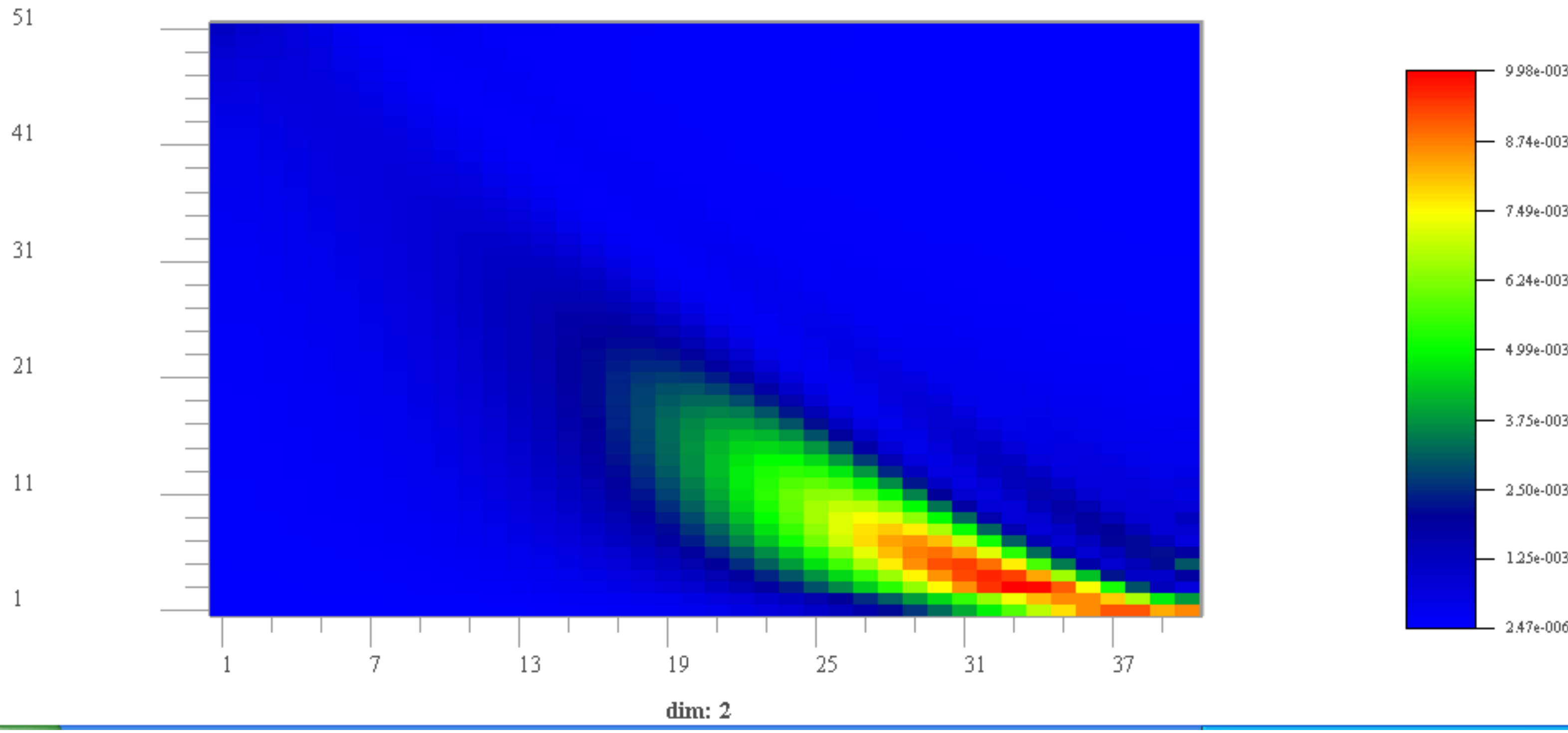
$$\boxed{\mathbf{b} \approx \underline{\underline{A}} \cdot \mathbf{z}}$$

„Ill-posed problem"

Diagonalelemente haben ungefähr gleiche Größenordnung
Matrix S gewichtet Sensoren unterschiedlich

Simuloptics

# Matrixelemente (nach Multiplikation mit Diagonalmatrizen)




Vorwiegend in der Nähe der Diagonalen groß

Simuloptics

# Umformulierung als Optimierungsproblem - Regularisierung

Original“gleichung“

$$\mathrm{b} \approx \underline{\underline{A}} \cdot \mathbf{z}$$

$$\left.\begin{array}{c} \mathcal{F} = ||\underline{\underline{A}} \cdot \mathbf{z} - \mathrm{b}||^2 + \lambda\, \mathbf{z}^t \cdot \underline{\underline{H}} \cdot \mathbf{z} \\ \mathbf{z} \geq 0 \end{array}\right\}$$

Minimiere $\mathcal{F}$
unter der Randbedingung

$$\mathbf{z} \geq 0$$

Trade-off - Parameter

Regularisierungsoperator

Simuloptics

# Bemerkungen -- 1

- Partikelkonzentrationen sind nicht negativ, daher gilt: $\mathbf{z} \geq 0$
- Diese Bedingung allein stabilisiert die Lösung bereits erheblich (Vermeidung von Oszillationen)
- Lösung durch „Quadratische Programmierung“:

**Goldfarb and Idnani**

Goldfarb, D., and A. Idnani (1983), A numerically stable dual method for solving strictly convex quadratic programs, *Mathematical Programming*, **27** , 1-33.

Simuloptics

# Bemerkungen - 2

$\lambda \mathbf{z}^t \cdot \underline{\underline{H}} \cdot \mathbf{z}$ Regularisierungsterm nach Philips,Twomey,Tikhonov

$\underline{\underline{H}}$ Positiv definite Matrix

$\lambda$ Positiver „Trade-off“ parameter

Simuloptics

# Wahl des Regularisierungsoperators

$$\underline{\underline{h}}_0 \cdot \mathbf{z} = \sum_{j=2}^{M} w_j^{(0)} z_j$$

$$\underline{\underline{h}}_1 \cdot \mathbf{z} = \sum_{j=2}^{M} w_j^{(1)} (z_j - z_{j-1})$$

$$\underline{\underline{h}}_2 \cdot \mathbf{z} = \sum_{j=3}^{M} w_j^{(2)} (z_j - 2z_{j-1} + z_{j-2})$$

$$\underline{\underline{h}}_3 \cdot \mathbf{z} = \sum_{j=4}^{M} w_j^{(3)} (z_j - 3z_{j-1} + 3z_{j-2} - z_{j-3})$$

Zusammensetzung aus Operatoren $H_n$,

die minimal sind, wenn die n.te diskrete Ableitung von z minimal ist.

$$\boxed{\underline{\underline{H}}_n = \underline{\underline{h}}_n^t \cdot \underline{\underline{h}}_n}$$

$H_n$ „bestraft“ Lösungen mit „großer“ n.ter diskreter Ableitung (penalty term).

Simuloptics

# Regularisierungsoperator

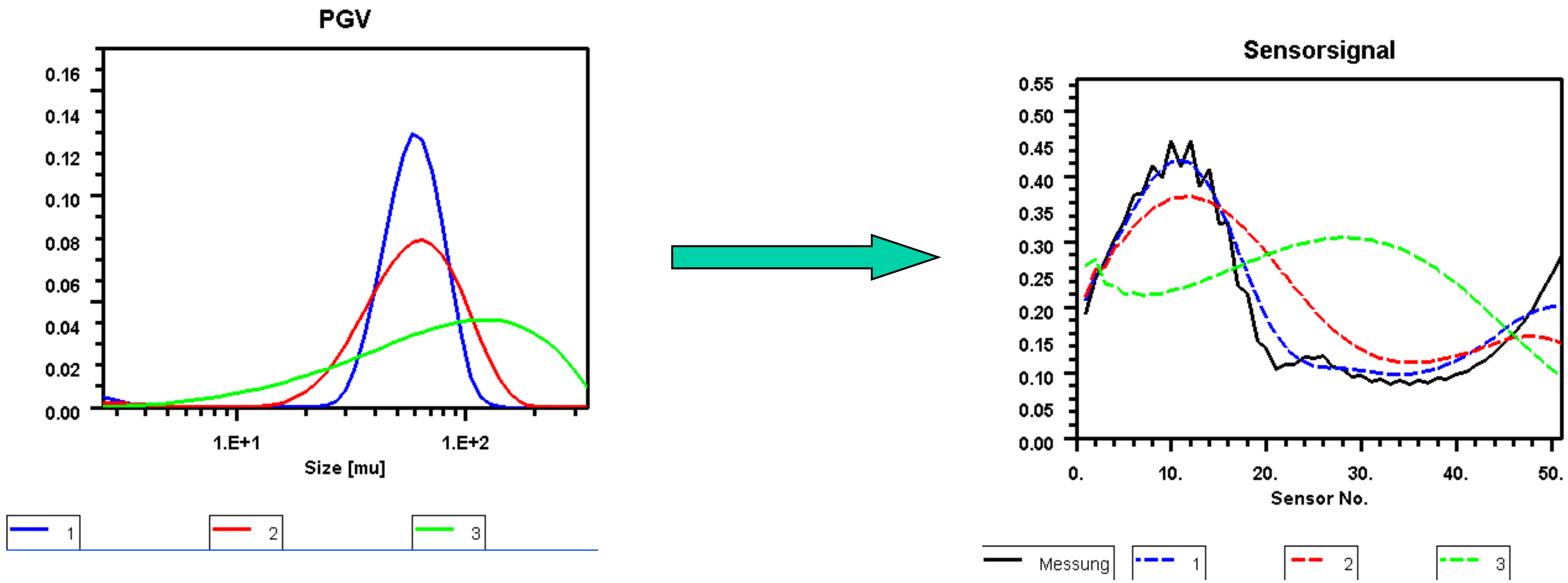
$$\underline{\underline{H}} = a_0\underline{\underline{H}}_0 + a_1\underline{\underline{H}}_1 + a_2\underline{\underline{H}}_2 + a_3\underline{\underline{H}}_3$$

In der Praxis hat sich vor allem $H_2$ und $H_3$ bewährt (d.h, $a_0=a_1=0$). Wir erzielen die besten Ergebnisse mit H3 --- dh. $a_0=a_1=a_2=0$

„bestes Ergebnis“ – am meisten der Erwartung entsprechend (sehr subjektiv!)

Simuloptics

# Wirkung des Trade-Off Parameters




-- Simulation 1: $\lambda=10^{-3}$ RMS=0.02 (brauchbar)

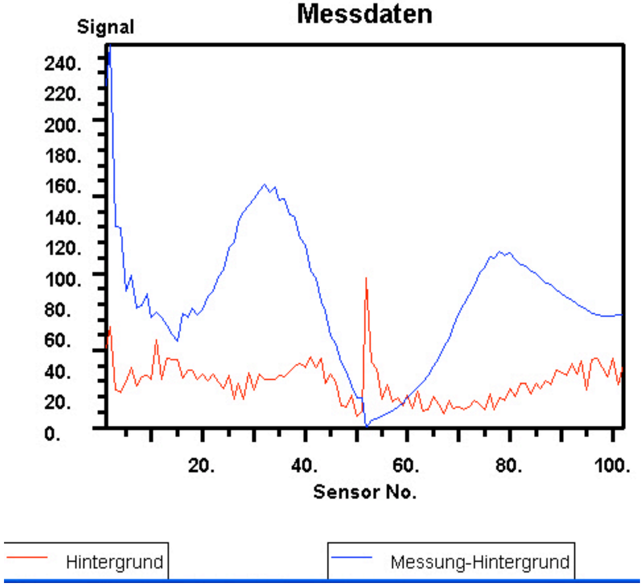
-- Simulation 2: $\lambda= 1$ RMS=0.07 (mittelmäßig)

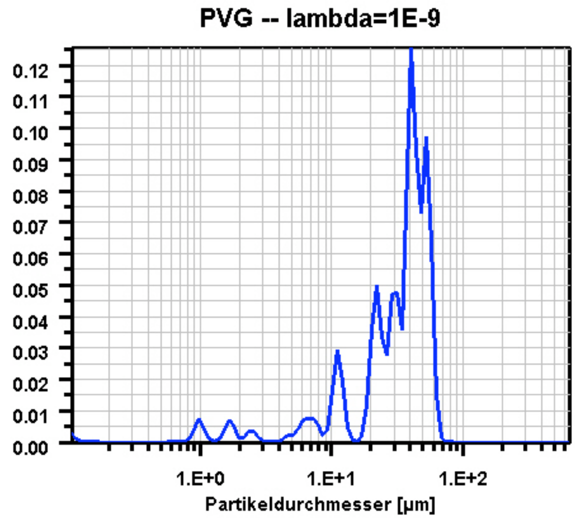
-- Simulation 3: $\lambda= 10^{4}$ RMS=0.21 (schlecht)

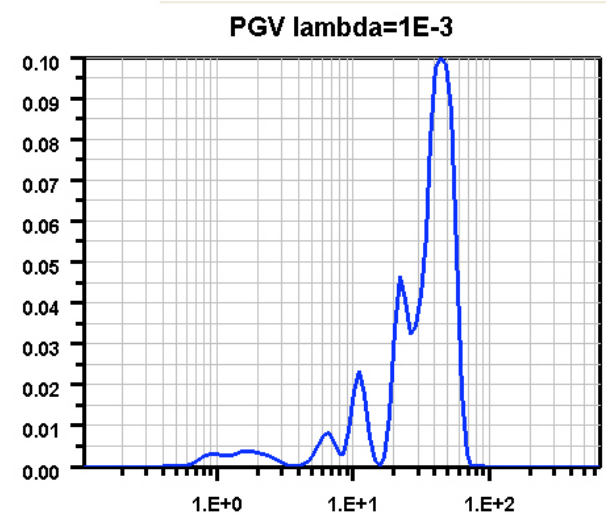
Je größer $\lambda$, desto stärker wird Kurve geglättet

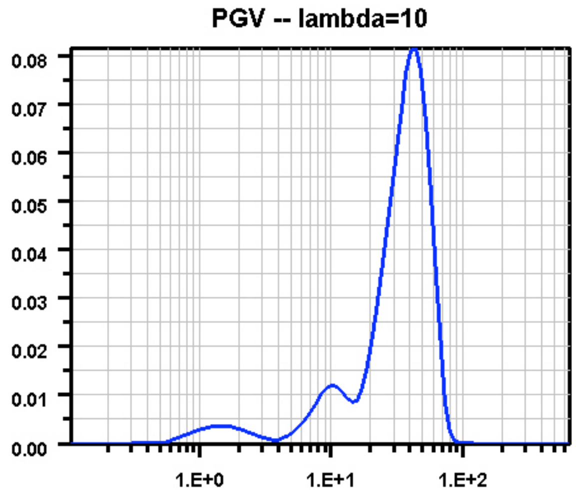
Simuloptics

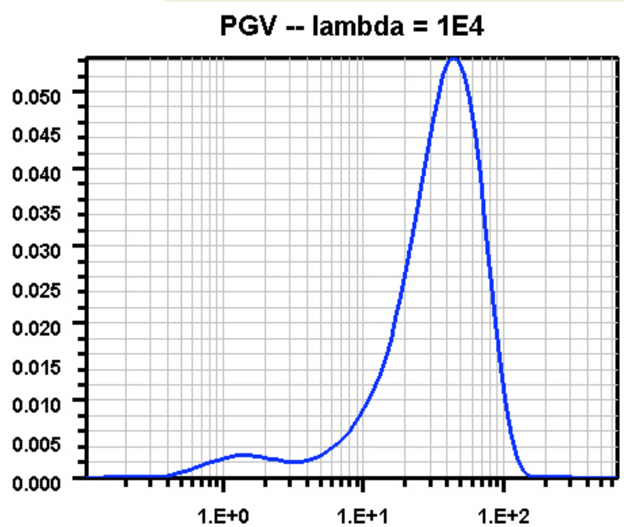
# Anderes Beispiel



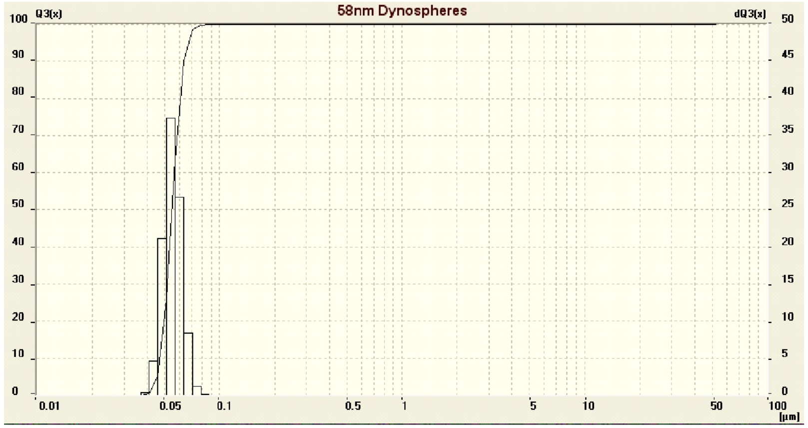



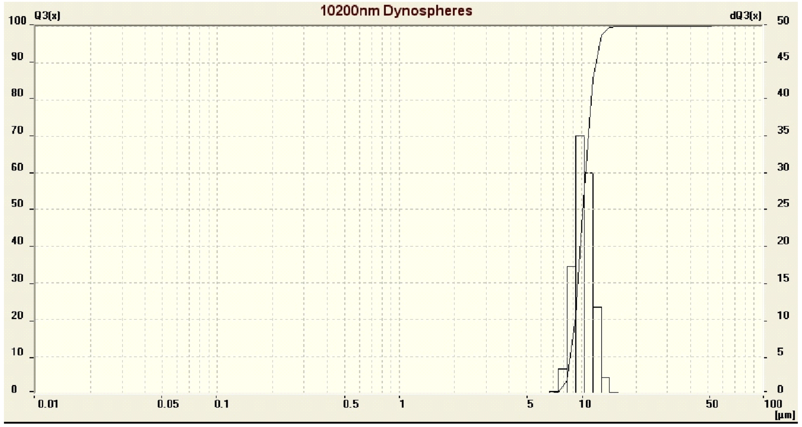

-- viel Hintergrund

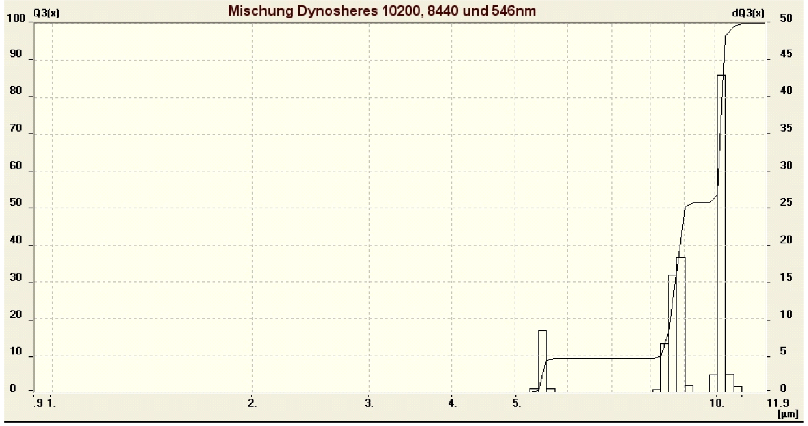
-- keine sphärischen Partikel

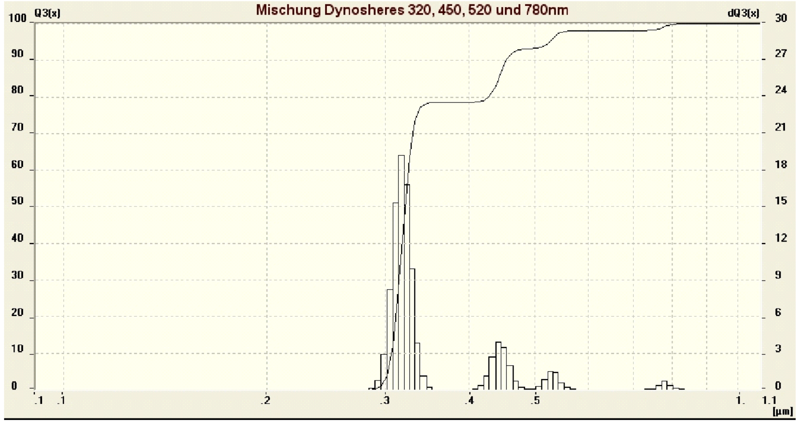
-- starke Regularisierung nötig!

# Bespiel: Mischungen von Latex-Nanopartikeln




Nahezu perfekt mit $\lambda=10^{-8}$!

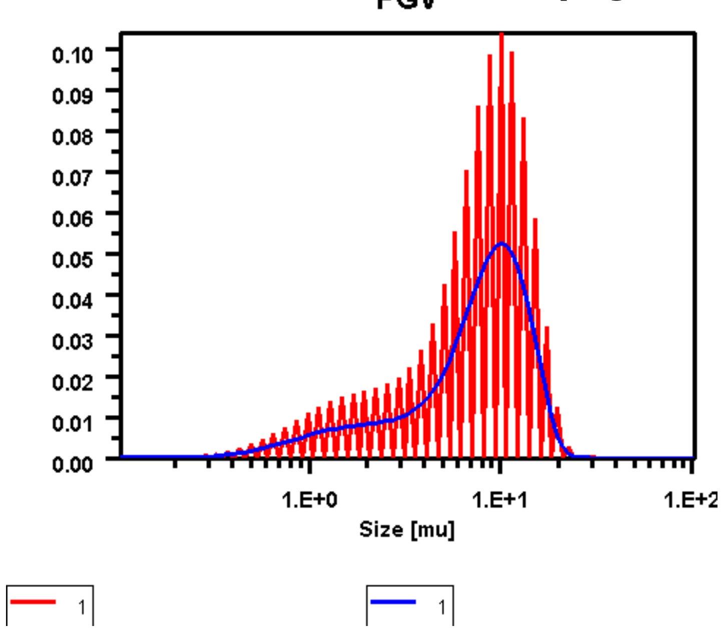
Simuloptics

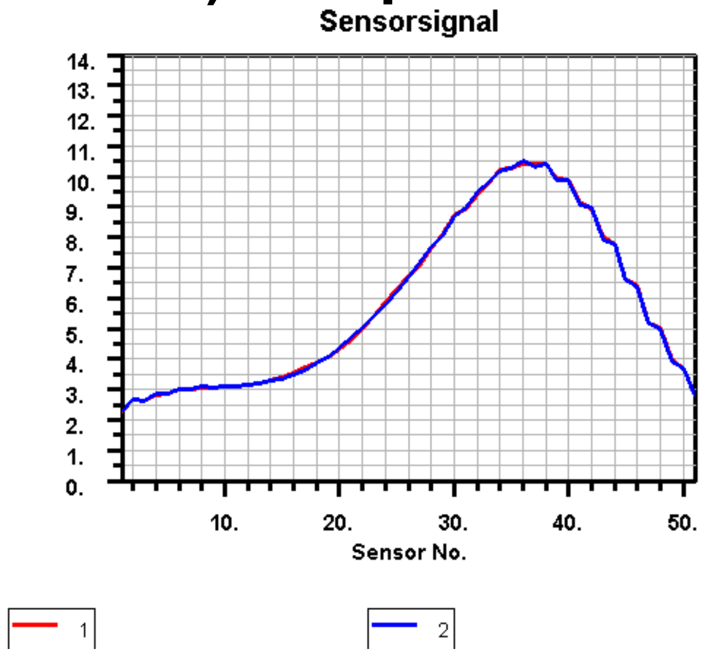
# Bemerkungen

- Methode funktioniert meist sehr gut
- in vielen Fällen (Bodenproben etc.) werden sehr hohe Trade-off-Parameter benötigt
- in anderen Fällen (zum Beispiel Latex-Suspensionen) reichen sehr kleine Werte des Trade-off Parameters.
- oft ist die Entscheidung, was ein „guter“ Tradeoff-Parameter ist, rein subjektiv
- manche Proben sind „Problemfälle“. Keine Entscheidung möglich.
- Kunde ist überfordert, den Trade-off selbst zu wählen.

Simuloptics

# Wie wählt man den Tradeoff-Parameter?
# Ein extremes (hypothetisches) Beispiel:




Beide PGVs führen nahezu zum selben Sensorsignal. Bei der Inversion können sich daher beide PGVs als Lösung ergeben (und noch viele andere!)

Welche PGV stimmt? Beide Lösungen sind physikalisch möglich. Jedoch ist es *plausibler*, der *glatten* Kurve den Vorzug zu geben!

Simuloptics

# Wie wählt man den Trade-off-Parameter ?

$$
\begin{aligned}
\mathcal{F} &= \mathcal{F}_A + \mathcal{F}_H \\
\mathcal{F}_A &= ||\underline{\underline{A}} \cdot \mathbf{z} - \mathbf{b}||^2 \\
\mathcal{F}_H &= \lambda \mathbf{z}^t \cdot \underline{\underline{H}} \cdot \mathbf{z}
\end{aligned}
$$

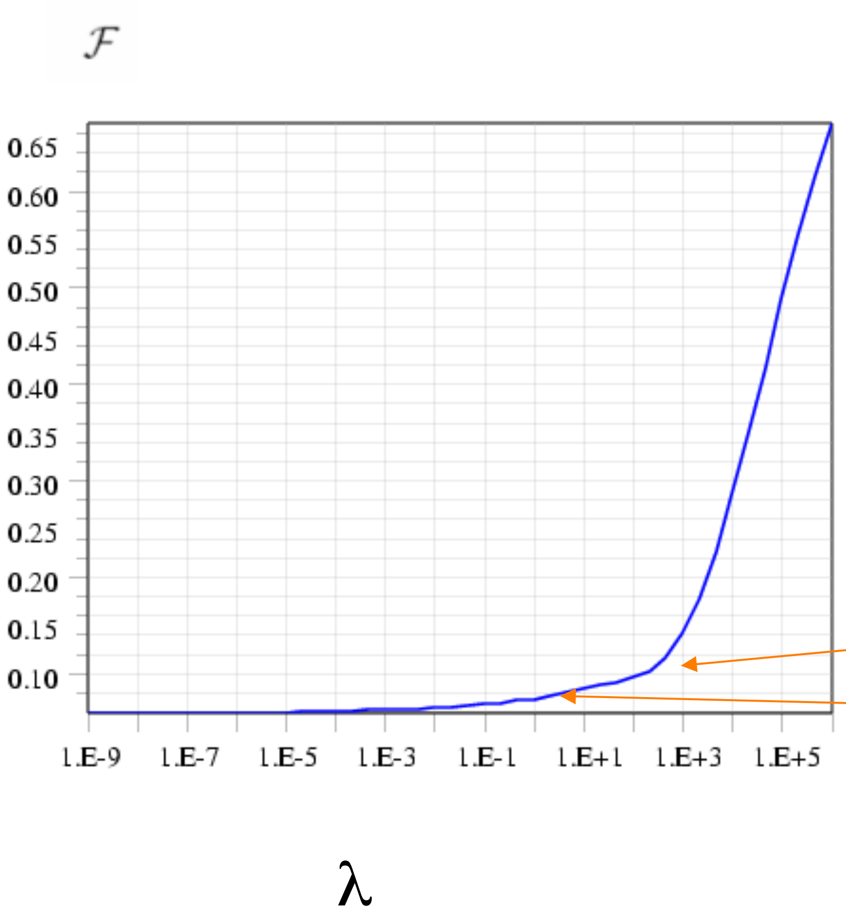
Quadratischer Gesamtfehler; ideal wäre: $\mathcal{F} = 0$

Abweichung vom Experiment

Regularisierungsanteil an Fehler

Simuloptics

# Automatische Tradeoff-Wahl



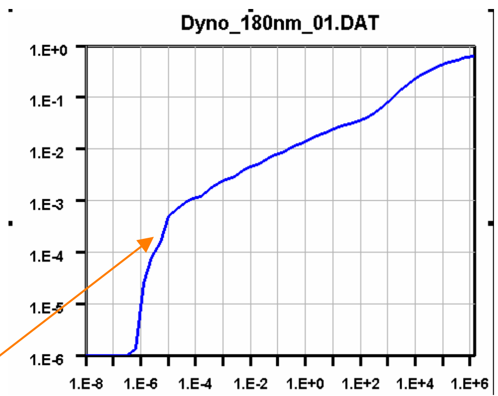

„Der Trick mit dem Knick“

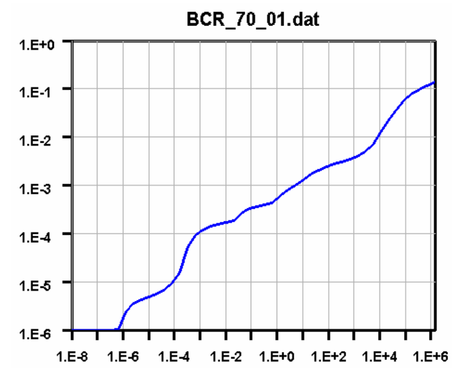
optimaler Trade-off: dort wo die Kurve beginnt zu steigen.

Wo ist der Knick?

Simuloptics

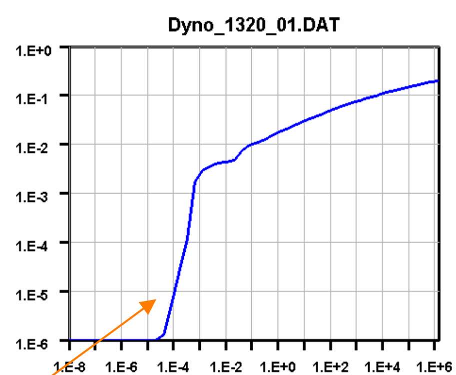
# Log($\mathcal{F}_H$) als Funktion von λ

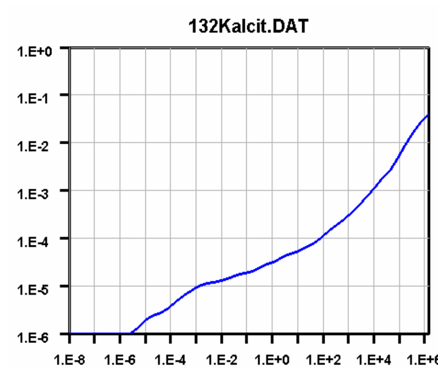



?

Knick!




?

Knick!

Simuloptics

# Probleme/ offene Fragen

- Gibt es ein weitgehend objektives Verfahren zur Trade-off – Wahl?
- Welchen Einfluss haben systematische Fehler auf Ergebnis?
  - nicht-kugelförmige Partikel
  - Messfehler bei zu hohem Untergrund
  - De-Justierung etc.
- Gibt es alternative, nicht auf Regularisierung beruhende Verfahren, die erfolgversprechend sind?

Simuloptics

# Inverse Streuung -- Formerkennung

# Formerkennung

Idee:
C. Heffels, „on-line particle size and shape characterization by narrow angle light scattering“, h: D dissertation (Delft university of Technology, 1995).

Bestimmung der Winkelkorrelation des Streulichts.

Funktioniert, wenn sich wenige Partikel (< 20) im Strahl befinden.

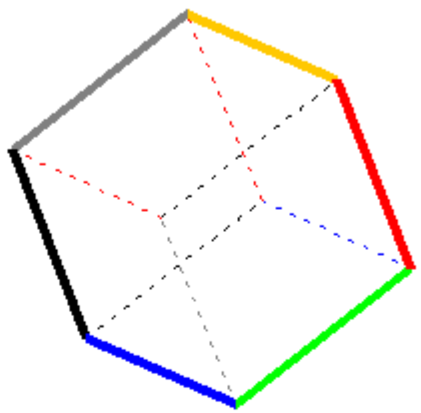
Simuloptics

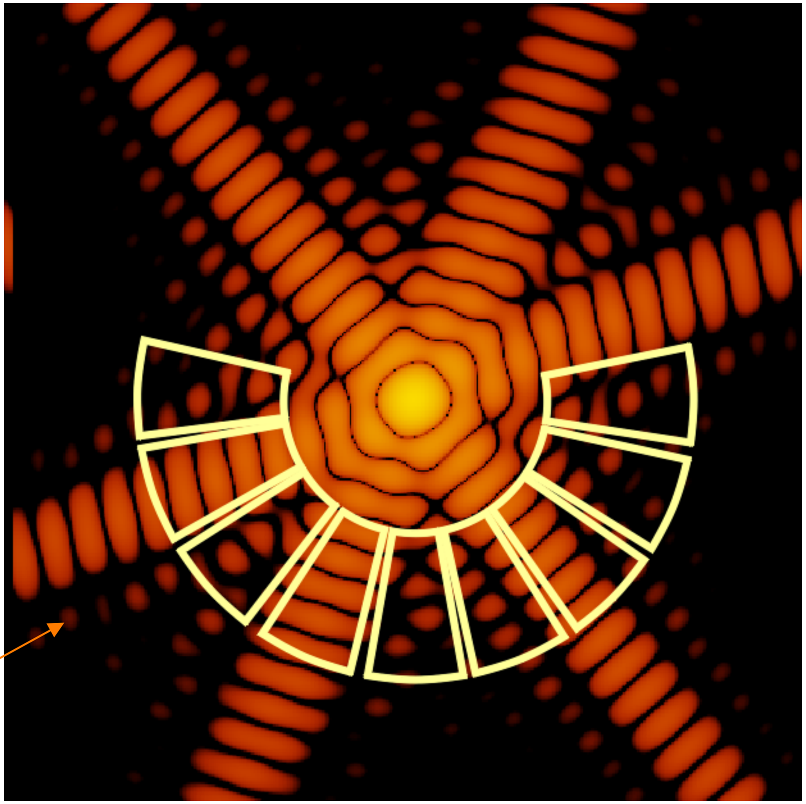
# Bemerkungen

- Schnell – nur wenige Sekunden
- in einem Arbeitsgang mit der Partikelgrößenbestimmung, im gleichen Gerät
- Ideal, wenn nur pauschale Forminformation nötig ist (zum Beispiel ein Formparameter)
- Für eine detaillierte Formauswertung nicht geeignet; hierzu müssen andere, zeit- und kostenintensive Bildauswertungsverfahren verwendet werden.

Simuloptics

# Kleinwinkelstreuung an einem Würfel und …

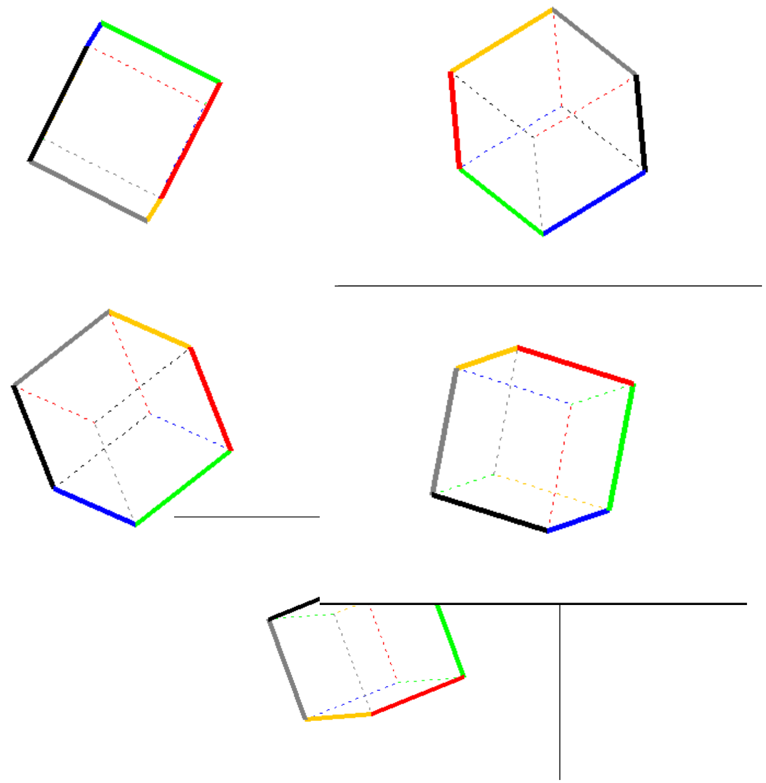


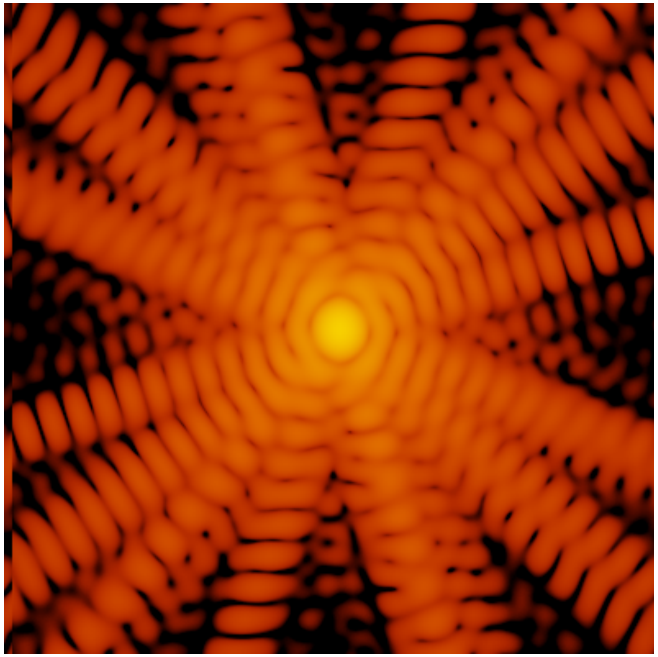


Formsensoren
1 -- 8

Simuloptics

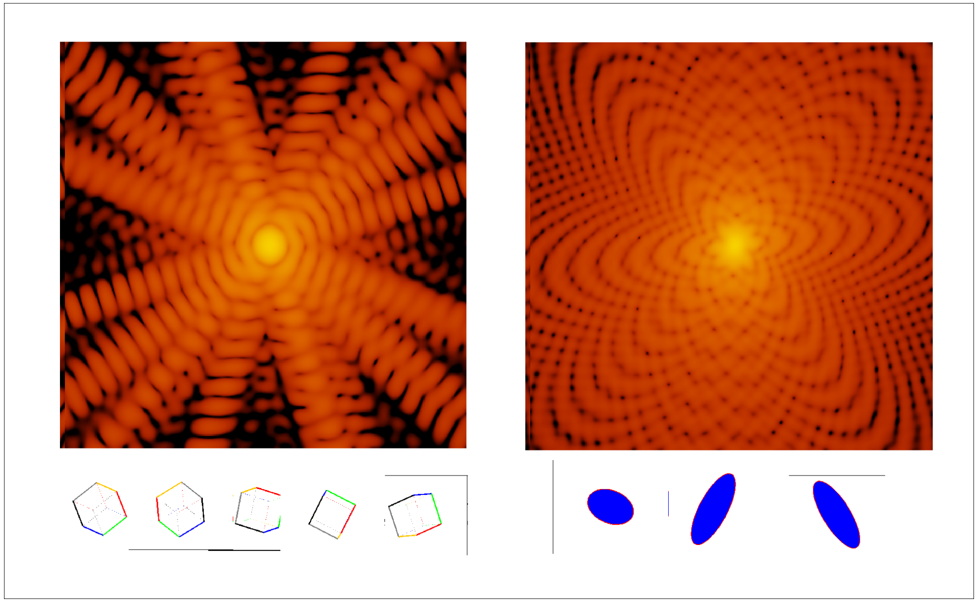
# .. an fünf Würfeln

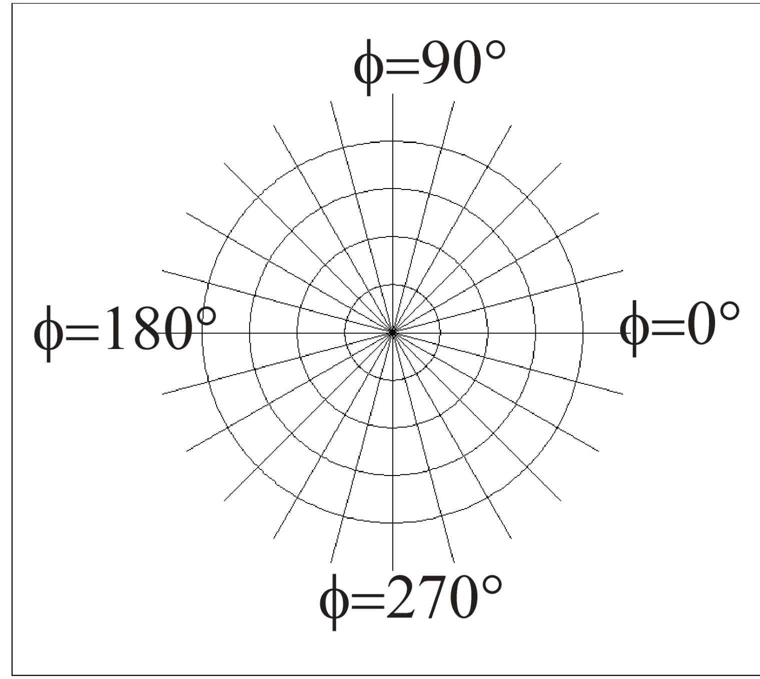




Simuloptics

# Kleinwinkelstreuung Würfel und Sphäroide






Wichtig: nur eine kleine Anzahl von Partikeln im Strahl erlaubt (n < 20)

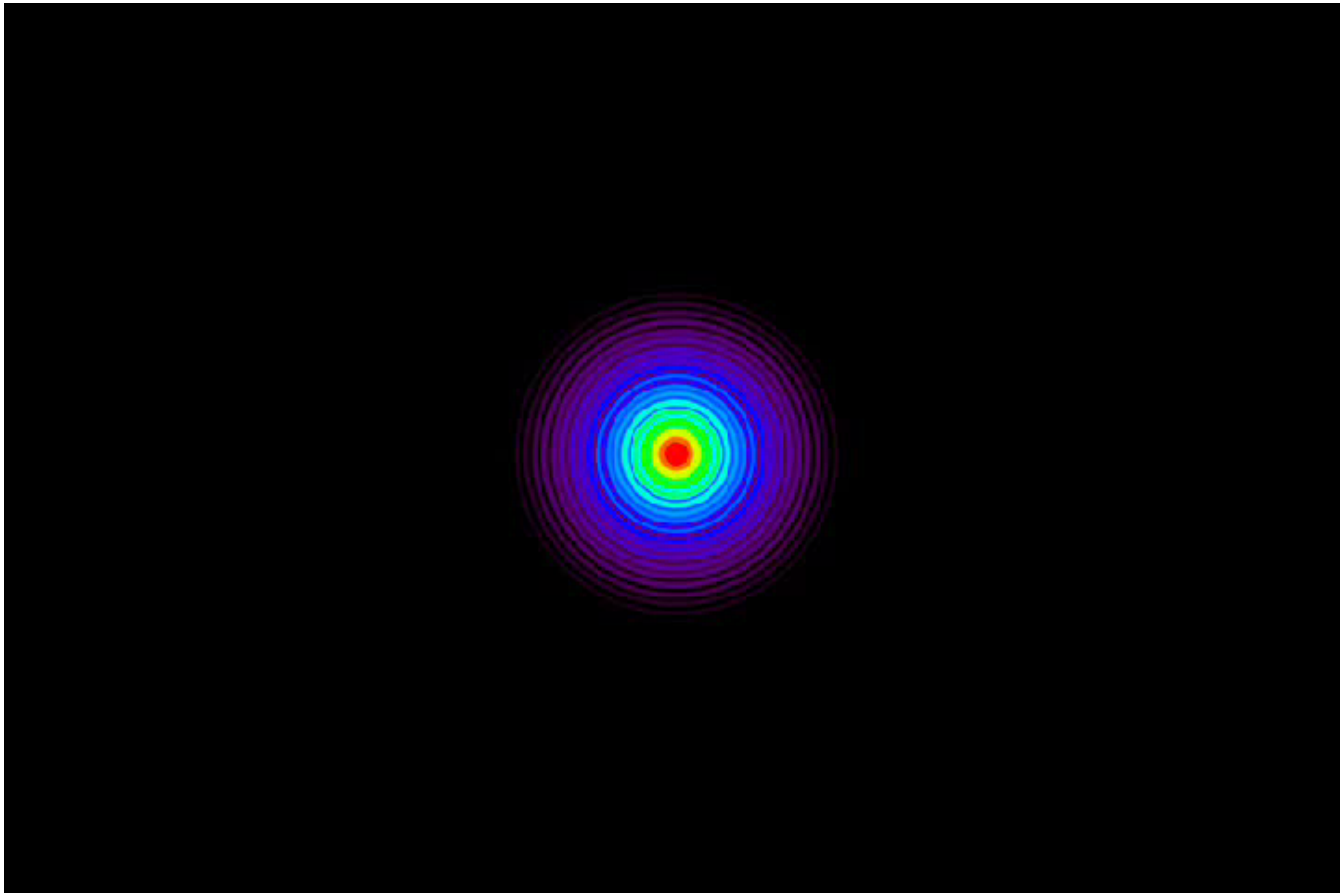
Simuloptics

# Auswertung

- Auswertung der zeitlichen Fluktuationen der Streulichtverteilung
- Berechnung der Winkelkorrelation

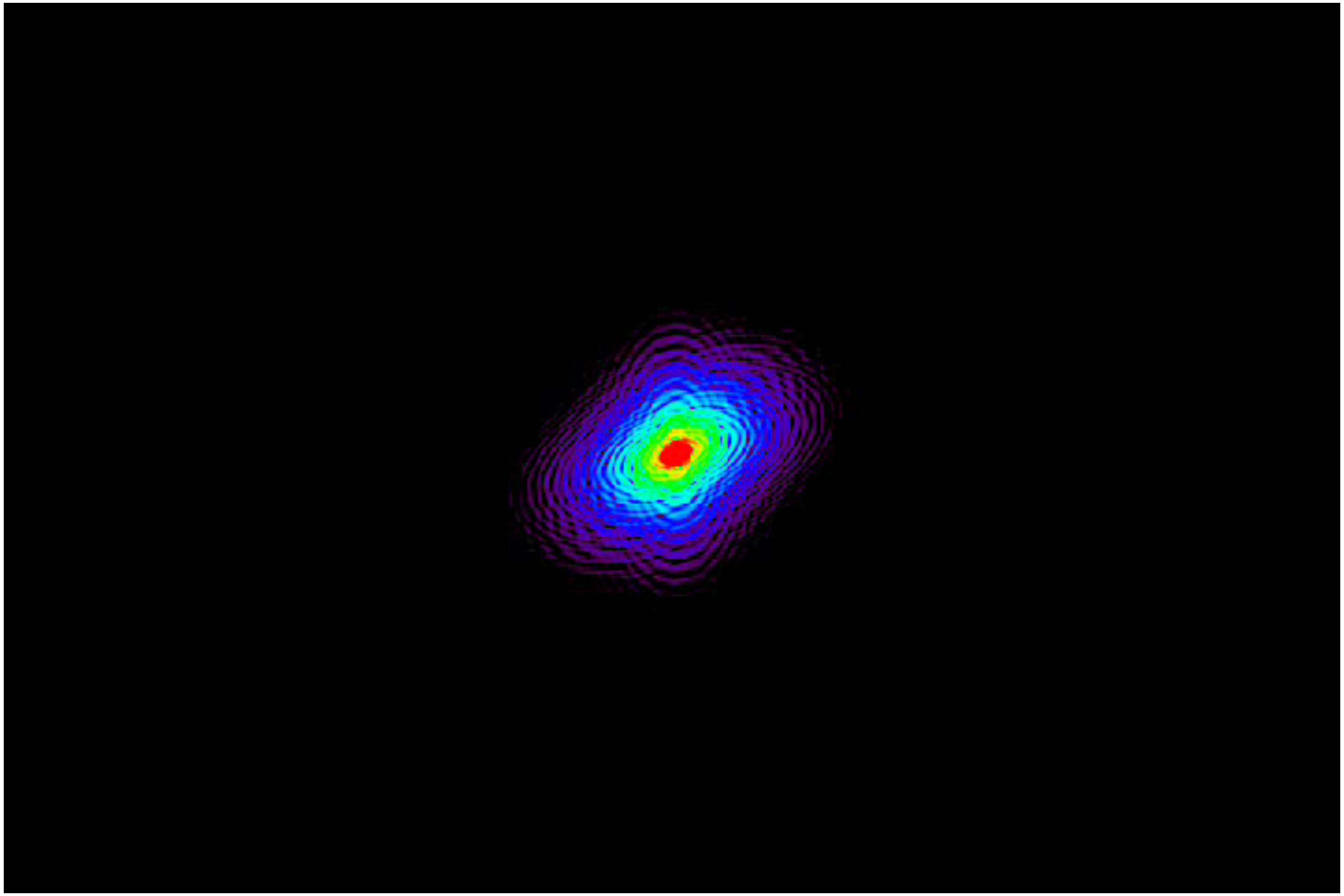
Simuloptics

# Kugeln



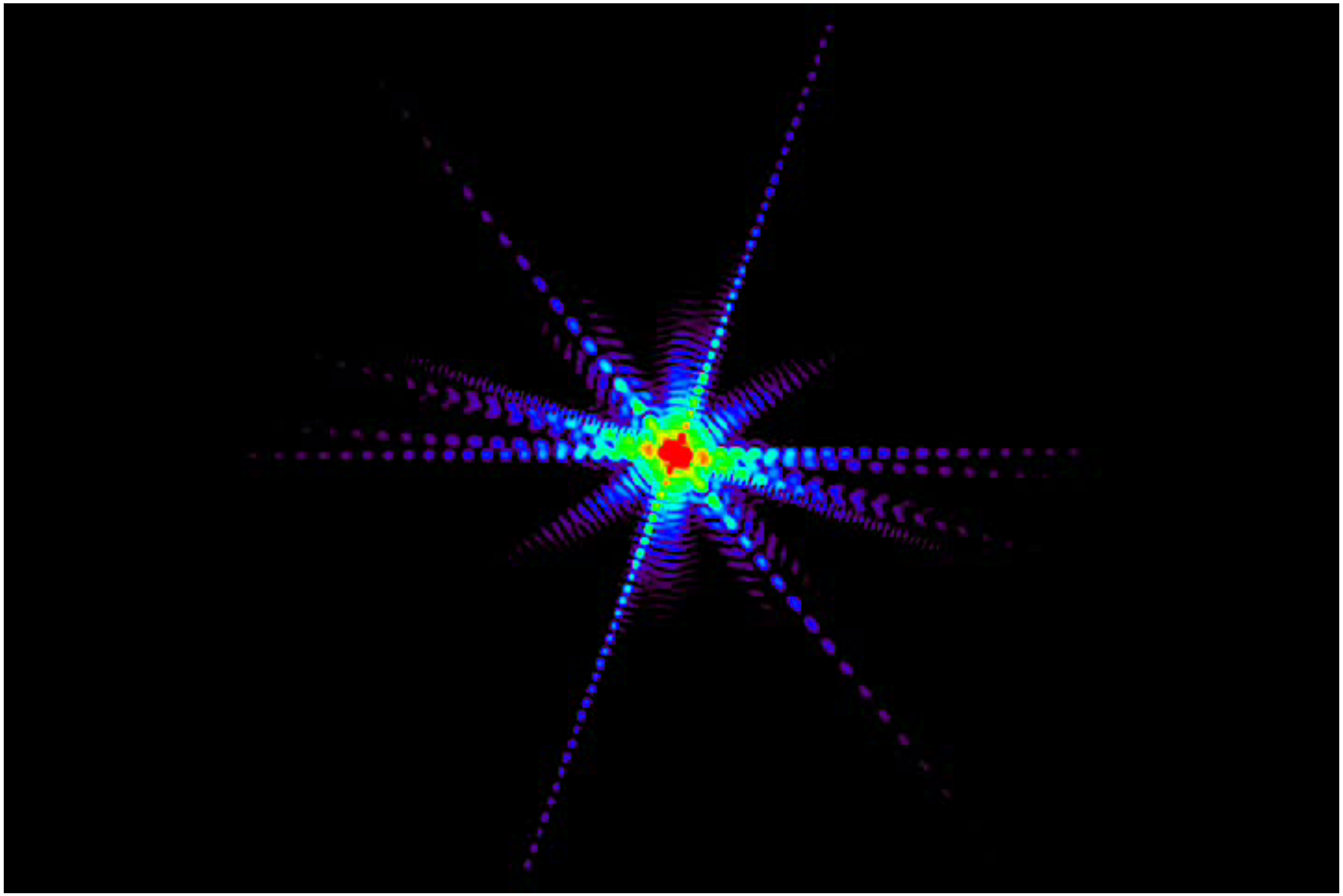
Simuloptics

# Sphäroide (Aspektverhältnis 1:2)



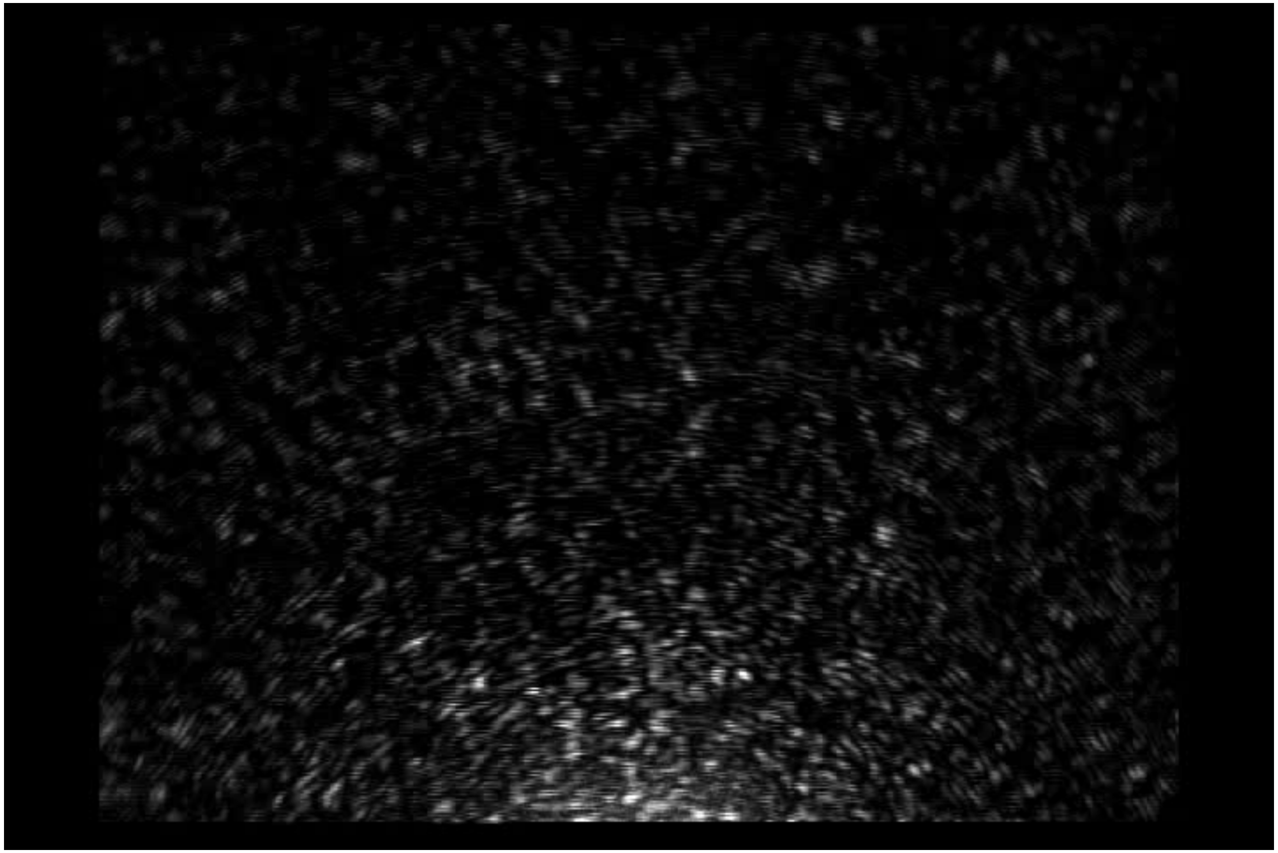
Simuloptics

# Würfel



Simuloptics

# … SiC Partikel im Experiment



# Winkelkorrelationsfunktion

$\rho_i$ Signal auf Sensor i (i=1, 8)

Zeitmittel

$$R_{ij} = \left\langle \left(\rho_i - \langle\rho_i\rangle\right)\left(\rho_j - \langle\rho_j\rangle\right)^2 \right\rangle$$

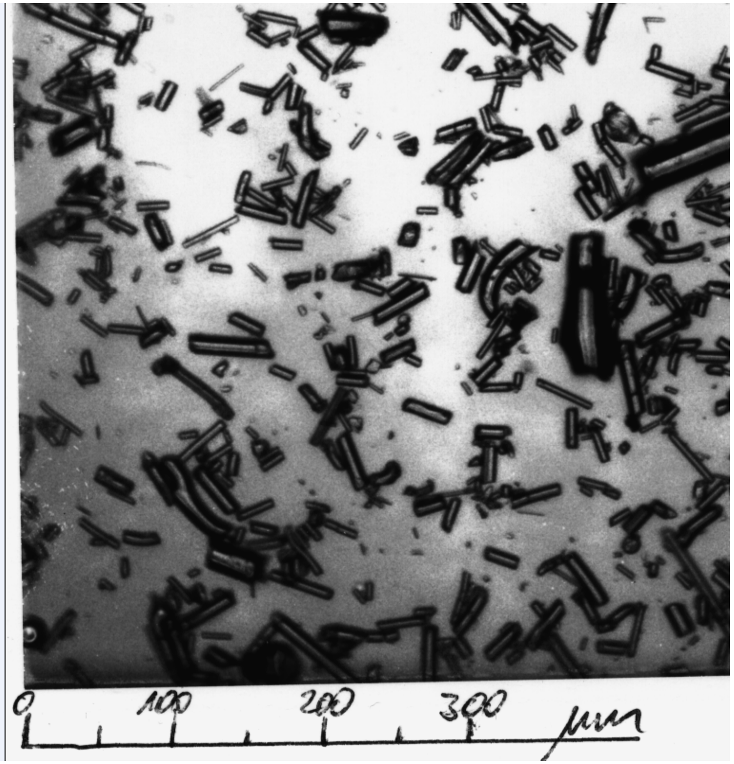
$$C_{ij} = \frac{R_{ij}}{\sqrt{R_{ii}R_{jj}}}$$ Korrelationsmatrix

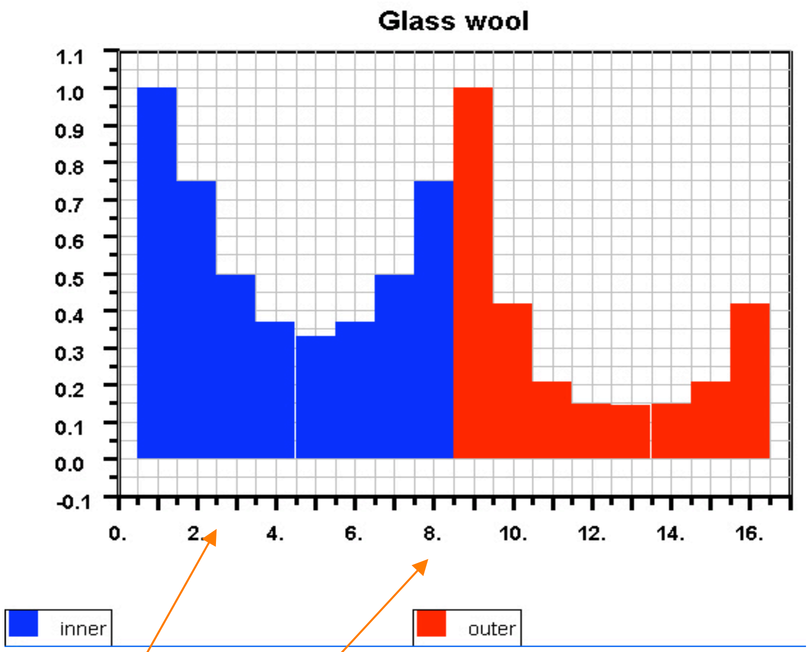
Aus Symmetriegründen sind $C_{12}$, $C_{13}$, $C_{14}$, und $C_{15}$ die einzigen unabhängigen Elemente

Simuloptics

# Beispiel: Glaswolle

Winkelkorrelation

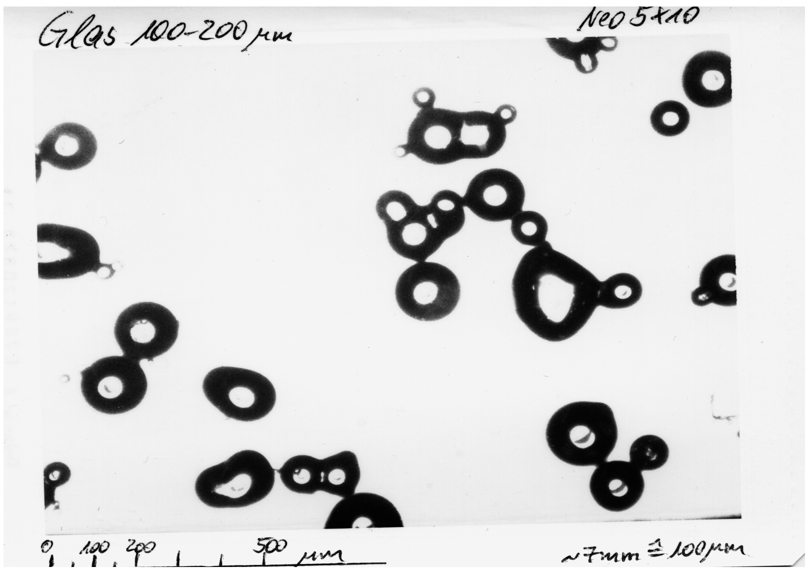


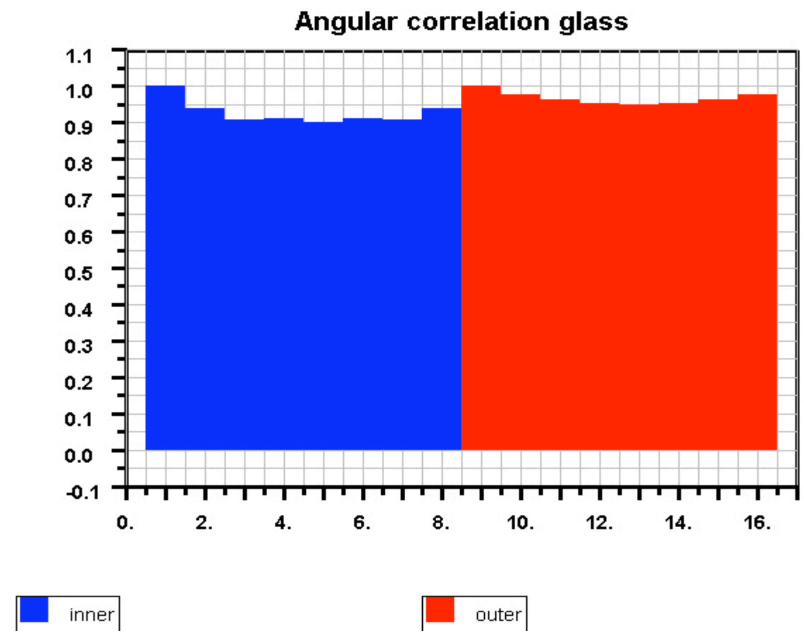

zwei Ringe von Sensoren

Simuloptics

# Glaskugeln



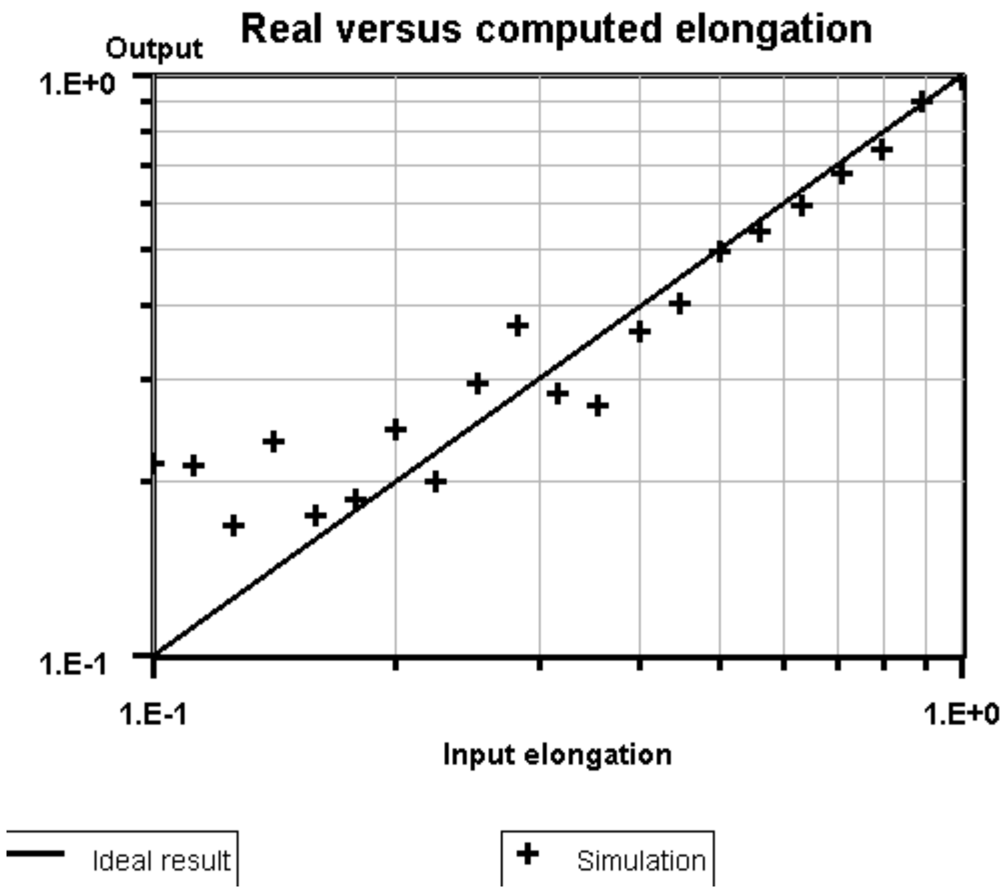

Winkelkorrelation




nahezu 100% Korrelation => Kugelform

Simuloptics

# Berechung der Elongation




Verfahren:

Vergleich mit
Look-up – Table

mit simulierten
Werten von
Sphäroid-Partikeln

Simuloptics

# Probleme, offene Fragen

- Keine Partikelstandards verfügbar
- Funktioniert meist gut, aber nicht immer.
- Gibt es geschicktere Verfahren zur Analyse der zeitlichen Fluktuationen?
- Welche anderen Formparameter könnte man berechnen?

Simuloptics

# Literatur


- Craig F. Bohren, Donald R. Huffman, “Absorption and scattering of light by small particles” (Wiley, New York 1983).

- Press, Flannery, Teukolsky, Vetterling, Numerical Recipes in Fortran: the art of scientific computing


Simuloptics

DANKE!

Simuloptics