

微粒 Mie 散射光谱中多峰的成因分析

王亚伟 卞保民

贺安之

(江苏理工大学, 镇江, 212013)

(南京理工大学, 南京, 210094)

摘要: 针对激光散射粒度仪的误差问题进行了分析, 认为散射光谱的多峰现象是其产生判读误差的主要原因, 并对其形成的原因进行了详细地讨论, 指出了要提高测量结果的精确度, 必须改进其判读方法。

关键词: 激光粒度仪 Mie 散射理论 测量误差 微粒

Analysis about formation of multi-peak spectrum in Mie scattering of small particles

Wang Yawei, Bian Baoming

(Jiangsu University of Science & Technology, Zhenjiang, 212013)

He Anzhi

(Nanjing University of Science Technology, Nanjing, 210094)

Abstract: According to the analysis of the measurement error of particle-size analyzer, we found that the main reason of mistake judgement was multi-peak scattering spectrum. Several factors could produce the multi-peak scattering spectrum, such as optical unsymmetry of particles, shape of the particles, beam profile un-uniformity. This paper proposed a integrating judgement method to avoid the mistake judgement.

Key words: laser particle-size analyzer Mie scattering theory measuring error small particle

引 言

微小固状粒子或雾滴的尺度分布及其浓度是在很多领域具有极其重要意义的参数。例如在大气监测、涂料、染料及粘合剂加工业、集成电路加工、超精细结构工程、医药保健品生产、汽车发动机效率检测、空间科学、军事工程等方面均是一个重要的评定参数。对此, 无不要求对微粒特性进行准确的测量。

光学测量方法由于具有测量范围广、精度高, 不需要接触, 易于实现实时在线测量等优点已成为粒度测量中最有生命力、最有前景的方法。随着激光器件、光导纤维以及电子和计算机技术的日新月异, 激光光散射式粒度测量仪已成为世界上最先进、应用范围最广的粒度测量仪。其所依据的理论主要是 Mie 散射理论和 Fraunhofer 衍射理论。依此理论, 散射光的强度信号是微粒粒径的函数, 由强度脉冲可以反演出微粒粒径的分布。由强度脉冲信号的个数或是透射光与入射光的强度比可以测定出粒子数的浓度。但是, 在实际测量中往往出现的误差较大, 尤其是根据 Mie 散射理论来测定微粒粒径及其分布时精度的提高存在着一定的困难。研究表明, 散射波频谱的多峰性是在目前判读方法下产生误读误判的主要原因, 由于多峰现象形成的原因较复杂, 难以根本消除, 因此, 改进判读方法是唯一提高微粒粒度测量仪精度的方法, 作者提出了一种排除多峰影响的判读方法。

1 测量原理及其判读方法

1.1 Mie 散射理论

根据 Mie 散射理论^[1]可知,一平面波被一个均匀各向同性的小球散射,则散射场由下式决定:

$$\begin{pmatrix} E_{\parallel s} \\ E_{\perp s} \end{pmatrix} = e^{ikr}/(-ikr) \begin{pmatrix} S_2 & 0 \\ 0 & S_1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_{\parallel i} \\ E_{\perp i} \end{pmatrix} \quad (1)$$

式中, $E_{\parallel s}$, $E_{\perp s}$ 为散射光的两个垂直分量, $E_{\parallel i}$, $E_{\perp i}$ 为入射光的两个垂直分量, $k=2\pi/\lambda$, r 为观察到点散射点的距离, S_1, S_2 为散射复幅度, 见下式:

$$\left. \begin{aligned} S_1 &= \sum (2m+1) [a_m \tau_m(\cos\theta) + b_m \tau_m(\cos\theta)] / m(m+1) \\ S_2 &= \sum (2m+1) [a_m \tau_m(\cos\theta) - b_m \tau_m(\cos\theta)] / m(m+1) \end{aligned} \right\} \quad (2)$$

式中, $\tau_m(\cos\theta)$, $\pi_m(\cos\theta)$ 为综合 Legendre 函数, a_m, b_m 为 Riccati-Bessel 函数的复合式。

$$\left. \begin{aligned} a_m &= [n\phi_m(nx)\phi_m(x) - \phi_m(x)\phi_m(nx)] / [n\phi_m(nx)\xi_m(x) - \xi_m(x)\phi_m(nx)] \\ b_m &= [\phi_m(nx)\phi_m(x) - n\phi_m(x)\phi_m(nx)] / [\phi_m(nx)\xi_m(x) - n\phi_m(nx)\xi_m(x)] \end{aligned} \right\} \quad (3)$$

式中, $x=2\pi D/\lambda$, D 为粒子直径, n 为复折射率。光电接收器的总的光散射响应值为:

$$V = \iint (\mathcal{N}8\pi^2) (|E_{\parallel s}|^2 + |E_{\perp s}|^2) F d\phi d\theta \quad (4)$$

式中, $F(\theta, \phi)$ 为几何因子。

其响应频谱见图 1, 可见不同的波峰对应不同的粒径, 由此给判读提供了理论依据。

1.2 判读方法

针对图 1 频谱波形, 对光电传感器所接收的信号检测其波峰值 V , 由 V 值根据 Mie 散射逆变换理论可以反演出其微粒粒径, 对不同的 V 值分段, 即分通道, 对不同通道内的信号个数统计即可求出各通道粒子数, 从而最终获得粒子粒度分布 $N(D)$ 函数。

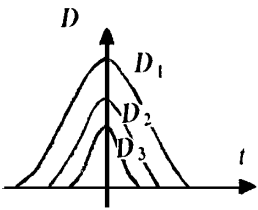


Fig. 1 The desirable scattering spectrum for different particles

2 多峰现象的影响及其形成原因

实际测量中发现光电器传感器所接收的频谱并非都是如图 1 的情况, 时常出现图 2 的波形, 由此波形判读出的结果是在两个不同的通道中(不同的粒径)都存在一个粒子, 共有两个不同 D 的粒子, 但是实际情况是只有一个粒子, 由此可见产生了判读错误。当然, 仪器本身的噪声(如电躁声、光噪声等)会导致波形的失真, 如图 2 中的线脉冲正是属于此种情况, 但是对于频谱较宽的双峰、多峰却不是仪器本身的噪声, 而是由于下述的原因造成。

2.1 不对称参数 g 的影响

实际情况下, 微粒并不能保证是一个各向同性的球体, 则散射复振幅 S_3, S_4 未必为 $0^{[2]}$,

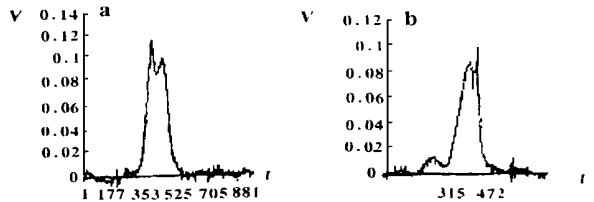


Fig. 2 An example of multi-peak scattering spectrum in real case

通常情况下

$$\left. \begin{aligned} S_3 &= -i \sum \sum (-i)^n \exp(im\phi) [a_{nm} \pi_{nm} + b_{nm} \tau_{nm}] \\ S_4 &= \sum \sum (-i)^n \exp(im\phi) [b_{nm} \pi_{nm} + a_{nm} \tau_{nm}] \end{aligned} \right\} \quad (5)$$

不对称参数为 g , $g = \left[\iint (|S_1|^2 + |S_2|^2 + |S_3|^2 + |S_4|^2) \cos\theta \sin\theta d\theta d\phi \right] / 2k^2 C_{sca} \quad (6)$

式中, C_{sca} 为散射截面 $C_{sca} = \left[\iint (|S_1|^2 + |S_2|^2 + |S_3|^2 + |S_4|^2) \sin\theta d\theta d\phi \right] / 2k^2 \quad (7)$

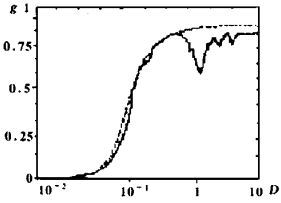


Fig. 3 The spectrum of unsymmetry parameter g

与 Mie 各向同性理想球体散射结果相比较可见, 对任何单体模式并不存在理想散射半球面, 而且 g 是粒径 D 和散射角 θ 的非线性函数, 如图 3 所示。微粒在散射过程中, 由于自身处于变化运动状态过程中, 因此, 光学等效粒径 D 与散射角 θ 都可能发生变化, 从而导致了散射峰值 I 的变化, 即响应信号 V 的变化。另外, 散射截面 C_{sca} 也是角度 θ 、粒径 D 的函数, 对于非理想球体, C_{sca} 在散射过程中因非对称性的运动也会发生变化, 从而导致了双峰、多峰现象的产生。

2.2 散射体形状的影响

Mie 散射强度响应 V 是对球体形状推得的, 一般情况下微粒的形状是不定的, 不一定是球体, 可能是柱体、椭球体或片状, 对此已有不少专家分别进行了讨论^[3-5], 其结果与 Mie 理论的球散射结果也不相同, 对于非球体形状的散射体, 其空间的取向对散射强度的响应值 V 影响较大, 例如对于圆盘, 由 Lock J A 的 Ray 理论^[4]可以推得:

$$E_{sca}(\theta, \phi) = [iE_0 \exp(ikr - i\omega t) S(\theta, \phi) \exp(i\delta(\theta, \phi)) \varepsilon(\theta, \phi)] / kr$$

可见与球体形状散射物散射强度 E_{sca} 不同。由 S 函数可知, 散射角 θ, ϕ 的变化将直接影响到信号响应 V 的值, 因此, 非球体散射时, 空间取向

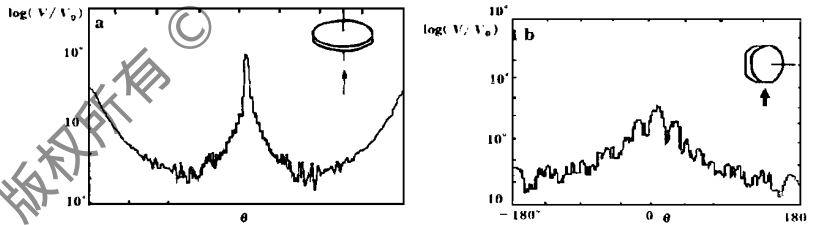


Fig. 4 Scattering spectrum of disk for different incident

的变化将直接改变散射响应信号值 V 的分布。如图 4 可见, $\log(V/V_0)$ 的分布与圆盘的空间取向 θ 有明显的联系。

2.3 光束高斯分布的影响

激光谐振腔中产生光束为高斯光束, 其电矢量的传播式可表为:

$$E(x, y, z) = A_0 / \omega(z) \exp[-(x^2 + y^2) / \omega^2(z)] \times \exp\{-ik(x^2 + y^2) / [2R(z) + z] + i\phi(z)\} \quad (8)$$

$$\text{式中, } \omega(z) = \omega_0 [1 + (z / N\pi\omega_0^2)^2]^{1/2} \quad (9)$$

这是散射腔的腰半径, 因而散射腔内光强为非均匀分布。见图 5。

粒子运动到 (x, y) 处脉冲电信号为

$$V = V_0 \exp[-2y^2 / \omega^2(z)] \quad (10)$$

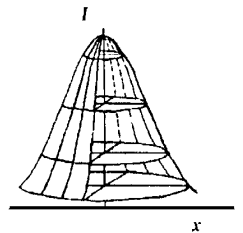


Fig. 5 Gauss profile

$$\tau = 2 \{ [\omega^2(z) \ln(V/V_0)] / 2 \} / V \tag{11}$$

由此可知,相同直径微粒在不同位置穿越散射腔时,脉冲信号频谱分布不同,同理,在真实情况下,穿越散射腔时,并不能保证每个粒子在穿越时保持位置 (x, y) 不变,从而散射信号 V 会发生变化,所以,会产生如图2所示的多峰现象。同时,如果考虑到高阶高斯效应对此的影响,则频谱分布将更复杂。

3 判读方法的改进

应用 Mie 散射理论进行微粒测量时,虽然流速相对较稳定(小雷诺系数下的层流,即为 de Laval 型),散射腔内微粒流速各点可以认为均匀,但在其真实情况下,在散射腔内,微粒的运动存在着随机性。因此,根据实验和理论我们可知:散射腔内散射光电脉冲信号的脉冲幅度与微粒的粒径并非一一对应,从对计数器的信号处理的过程可知,对散射光的电脉冲信号只利用了其脉冲信号

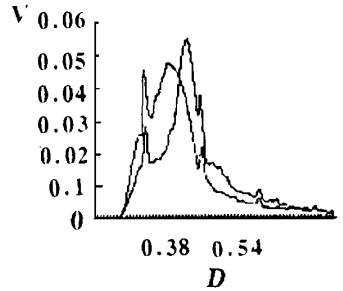


Fig. 6 The scattering spectrum by means of pulse method

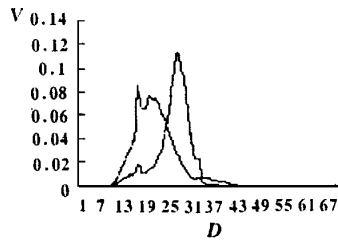


Fig. 7 The scattering spectrum by means of integrating method

的幅度值,而信号的脉宽信号未加以利用。由(11)式可知脉宽 τ 与 V/V_0 比值有关,即与粒径有关。当频谱出现多峰时,脉宽不失为一种判读的依据,但是对于非球体仍旧会产生较大的判读错误。对此,我们将脉冲频谱的积分作为判读的依据可以大大避免多峰误读误判的错误。也即将 $\int_0^{\tau} V dt$ 作为信息量,图6、图7分别是两种标准粒子在两种判读方法下的分布图,即脉冲幅度法和积分法的测量曲线,从曲线对比可见,图7结果显然好于图6的结果,若曲线进行拟合后,则更能看出积分判读法的优势。

4 结 论

激光散射粒度测量仪的测量误差有两大类,第一类是仪器本身产生的误差(系统误差),如电噪声、光噪声等。此类误差的减小有待于仪器结构、制造方法、加工工艺等方面的改进和提高。第二类则是由于理论模型与实际情况之间的差异而产生的误差;如作者所论述的由于光束的高斯效应、微粒形状的非对称因子的非线性、散射截面的取向性、测量过程中微粒运动的不定性等因素而产生的误差。此类误差的消除有待于理论和方法的改进。积分判读法仅是解决频谱多峰影响行之有效的方法之一,其它更好的方法有待于进一步的研究。

参 考 文 献

- 1 玻恩 M. 光学原理. 北京: 科技出版社, 1982: 843~ 887
- 2 Videen G, Pinnick R G, Ngo D *et al.* Appl Opt, 1998; 37(6): 1104~ 1109
- 3 Lock J A. Appl Opt, 1996; 35(3): 500~ 514
- 4 Holl A C, Gagne. Appl Opt, 1970; 9(5): 1113~ 1129
- 5 Manickavasagam S. Appl Opt, 1998; 37(12): 2473~ 2482

作者简介: 王亚伟,男,1957年2月出生。副教授,博士生。现从事光散射方面的科研工作。