

微粒粒度分布 FD 测量法的改进

王亚伟

贺安之 刘晓然

(江苏理工大学数理系, 镇江, 212013) (南京理工大学理学院, 南京, 210094)

摘要: 基于 Fraunhofer Diffraction 原理测量粒度分布的方法应用已久, 然而, 在实际应用中由于 SSPD 等光电器件性能的限制和反演中数学近似的误差影响了测量效果。对此, 充分讨论了衍射中心的正确测定对测量效果的影响以及 PSD 的定位特性和 3D-CCD 的响应特性, 并由此提出了 PSD 光强重心定位法和 CCD 的 RGB 均衡法, 有效地解决了衍射中心确定、峰值饱和、散射连续响应、散射角 θ 的分辨率等问题, 同时结合 Shifrin 积分变换对测量进行了改进, 较好地获得了微粒的连续粒度分布谱图 $n(D)$ 。

关键词: 衍射 微粒 粒度分布 测量 效果

Improvement of FD method to measure the distribution of particles' sizes

Wang Yawei

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

He Anzhi, Liu Xiaoran

(Nanjing University of Science & Technology, Nanjing, 210094)

Abstract: The method to measure the distribution of particles' size based on FD principle has been applied for a long time. However its results are affected by the limitation of SSPD and the error of inversion method itself. In the paper, the effect of diffraction image central framing, the characters of PSD and CCD response property are studied. Then two methods, i. e. the central framing by PSD and RGB equilibrium by CCD for the diffraction image receiving are put forward, which settle the problem of precision of central framing and determination of r and θ and meanwhile escape the problem of peak value saturation by a CCD. Finally, a continual distribution $I(\theta)$ is obtained and the distribution of particles' size $n(D)$ is inverted accurately upon the Shifrin inversion in the measurement.

Key words: diffraction particle distribution of the particles' size measurement effect

引 言

随着国民经济和科学技术的迅速发展, 与微粒特性密切相关的技术问题在工业、农业、医学、环境、国防、科研等领域越来越受到重视。例如, 半导体材料内部杂质的控制; 各种燃料雾化装置所喷射的液滴大小及其分布的测试; 病原细胞大小及其分布的检测; 冶金工业粉体出口处粒度和浓度的在线检测; 环保业中除尘效率的评定; 材料表面光学平整度的计量等等, 无不要对微粒的尺寸和尺寸分布参数进行准确地测量和研究。测量方法按照物理原理的不同有光学法、电学法、动力学法等, 其中, 光学测量方法具有测量范围广、精度高、不接触样品、快速、可自动化实时等优点, 因此, 已被确认为是一种先进的、最具有广泛发展前景的测量方法。而基于衍射的环靶法是目前被商用仪器采用较广的一种光学测量方法。

自 1976 年 Swithenbank 等人发展了基于 Fraunhofer 衍射以环形光电管阵列为接受器件的粒度分布测量方法以来,得到了国内外专家极大的关注和发展^[1]。尽管该法具有光学装置结构简单、算法不太复杂、速度快、测量范围广等优点,但存在着一定的缺陷,主要体现在以下几点:(1) 采用了环靶(SSPD)为接收器的方法,一般为 16 环,最多的为 32 环,其数据采集量少,从而使数据恢复的可靠性和测量精度均受到了影响。而采用 CCD 为接收器的方法中由于光电响应的饱和、衍射极值定位精度和算法的影响,造成了信息量的丢失,也影响了测量精度。(2) 由于反演矩阵为病态,只能用迭代反演的方法,迭代方法中大部分采用模式算法,即先假定被测粒子分布符合某种分布模型如 R-R 模型、Log-normal 模型和 γ 分布模型等,通过求目标函数方法得到微粒粒度分布。但是,当假设的分布模型与实际模型不符或者当粒度分布为双峰或多峰分布时,误差很大。无模式算法^[2]虽然可减少模式算法中的一些问题,但运算速度慢、对噪声非常敏感。(3) 由于衍射中心光强对探测器响应的溢出,不能对中心准确测定,只能估定。针对上述问题,我们对衍射中心位置和衍射分布半径测定的精度进行了讨论,并对位置传感器 PSD 的定位特性和 CCD 的光能响应特性进行了研究(尤其对 PSD 的响应精度和光斑定位的实质),提出了 PSD 衍射中心定位法和 CCD 的 RGB 均衡法,以 PSD 和 CCD 器件取代 SSPD 并对测量光路进行了改进,有效地解决了测量中衍射极值中心确定、峰值饱和、散射连续响应、散射角 θ 的分辨率等问题,同时在 Shifrin 积分变换的基础上实现了微粒分布的反演,获得了微粒粒度 $n(D)$ 连续函数,从而有效地改善了测量效果。

1 衍射中心测定精度对 r, θ 准确测定的影响及其改进

1.1 衍射中心的确定对反演精度的影响

当平行光照射到颗粒上发生 Fraunhofer 衍射时,其衍射光强分布是中心对称的。在衍射测量法中,有以 SSPD 为接收器的能量分布谱测量方法^[3],即是以衍射能量分布作为粒度分布反演依据的,其落在第 n 环上的光能为:

$$E_n = C \{ [J_0^2(X_n) + J_1^2(X_n)] - [J_0^2(X_{n+1}) + J_1^2(X_{n+1})] \} \quad (1)$$

式中, $X_n = Dr_n/f$, f 是透镜的焦距, r_n 和 r_{n+1} 分别是第 n 环的内外半径, C 为与光源的波长、功率和探测器敏感程度有关的参数, J_0 和 J_1 分别为零阶 Bessel 函数和一阶 Bessel 函数,若有径参数为 D_j 的颗粒数目为 n_j , 则第 n 环接受的总能量为:

$$E_n = \sum_{j=1}^M \{ C_j n_j [J_0^2(X_j, n) + J_1^2(X_j, n) - J_0^2(X_j, n+1) - J_1^2(X_j, n+1)] \} \quad (2)$$

n 个环组成了 n 阶矩阵方程,由此可以反演出颗粒尺度分布 $n(D)$ 。另一种是以 1D-CCD 为接收器的功率分布谱测量方法,即是以衍射功率径向分布作为粒度分布反演的依据,在 θ 角的光强分布为:

$$I(\theta) = I_0 [2J_1(x \sin\theta) / x \sin\theta]^2 \quad (3)$$

颗粒组成颗粒群时,在傅里叶平面上总衍射光强是各颗粒的衍射光强之和,可以得到:

$$I(\theta) = \int_0^\infty \frac{J_1^2(x\theta) x^2 n(x)}{F^2 k^2 \theta^2} dx \quad (4)$$

式中, k 是波数, F 是焦距, θ 为散射角, $n(x)$ 是粒径参数为 x 的颗粒数, J_1 和 Y_1 分别是第 i 类和第 ii 类的一阶 Bessel 函数。Chin 和 Shifrin 等^[4]求得(4)式逆问题的解析解为:

$$n(x) = -\frac{2\pi F^2 k^2}{x^2} \int_0^\infty J_1(x\theta) Y_1(x\theta) x\theta \frac{d}{d\theta} [\theta^3 I(\theta)] d\theta \quad (5)$$

(5) 式称为 Shifrin 积分变换式。上式说明了由光强分布可以反演出颗粒尺度分布 $n(D)$ 。

在上述两种测量方法中, 从其反演算法可以看出, 衍射中心、衍射分布半径 r 和光强分布 $I(\theta)$ 的准确测定是很关键的。但是基于下述的原因, 衍射中心和衍射分布半径 r 的准确测定问题一直未受到足够的重视和较好地解决。

(1) 习惯上把光路几何中心即认为是衍射中心, 未充分考虑到光源的模式变化、高斯分布和非高斯分布的影响以及光学系统的实际偏差, 尤其是未充分考虑衍射图像是众多粒子衍射的统计结果, 所以, 衍射中心应是光斑光强统计分布的重心, 既不是光路几何中心也不是衍射图像的几何中心。在实验上, 数据处理通常是按一维处理(运算速度的要求), 由于真实情况的影响使得衍射图像未必呈中心对称性, 如图 1 为 CCD 对标准粒子 GBW(E) 120004 测量的未经拟合的衍射图, 从中

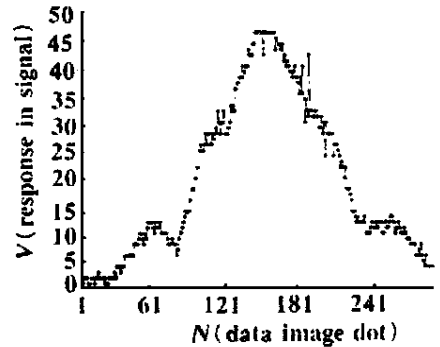


Fig. 1 Saturation in the diffraction received by a CCD

可见, 衍射图未必完全对称。故由衍射图的对称性确定中心必然会产生误差, 影响测量精度。

(2) 认为衍射中心和衍射分布半径 r 精度不是很重要, 其实不然。对(4)式求导可得极值分布函数, 表 1 是一般衍射条纹的强度极值分布。取 $f=55\text{mm}$, $N=2$ (第 2 级衍射极大), $\Delta r=10^{-2}\text{mm}$ (也即为普通 CCD 的 4 个像素间距, 后面的讨论将说明此误差是通常的), 则 $\Delta\theta/\theta=10^{-2}$ 量级, 似乎误差不大。但是, $r_{\text{mM}}=0.017055\text{mm}$ (第 3 级极小到第 2 级极大的间距), 则 $\Delta r/r_{\text{mM}}\approx 1$ 量级, 可见误差较大,

而 r 测量误差必然造成了 θ 的误差, 最终造成 $I(\theta)$ 的分布误差。从中可见不同 D 对应不同极值分布, 可知 r 的误差将严重影响了反演的结果, 因此, 不得不考虑衍射中心测定和衍射分布半径 r 的测定精度。

(3) 实验上难以克服的困难, 主要体现在: (a) 由于中心光强大溢出 CCD 和 SSPD 的响应, 因此, 通常在光路中都用光陷阱进行吸收, 故光路中无定位作用, 从而无法准确测定中心位置; (b) CCD 和 SSPD 对零级极大的饱和和对高级极大噪音淹没, 从而影响了对中心的精度测定和 r 值精度的提高, 如图 1 可见峰值处饱和, 难以准确确定中心和极值的位置。即使用分辨率较高的 CCD 作为探测器, 因为在真实测量中通常不是从 CCD 每个像素中取值的(为保持一定的运算速度), 对 256 灰度级, 一般是隔 1 或 3 个像素取值, 从而器件分辨率为 $4\times 2\times 10^{-5}\text{m}$ 。然而, 实际测量中产生的误差大于此, 从图 1 的衍射分布中可见最大灰度值的电响应值为 46 的共有 16 个值, 则误差为 $16\times 4\times 2\times 10^{-5}\text{m}$, 达到 10^{-3}m 量级。

1.2 PSD 的特性及其衍射中心的测定

PSD(position sensitive detector) 是一种位置探测器, 其原理为 LP 效应(横向光电效应), 所以具有连续定位性质和高分辨率(100nm)。然而在实际应用中理论上的光点变成了具有一定大小的光斑, 由此所响应的位置值是光斑几何中心还是光强分布重心, 其中心处响应是否会出现

Table 1 Date of the diffraction distribution

grate	x	θ	$I/I_0(\%)$
0	0	0	83.78
min1	0.0383	138°	0
max1	0.0515	186°	7.22
min2	0.0702	252°	0
max2	0.0841	303°	2.77
min3	0.1017	367°	0
max3	0.1160	418°	1.62

饱和,这是实际应用的关键。现理论分析如下,当光照射到 PSD 敏感面上时(假设为 P 型区表面),则 PSD 吸收辐射而在入射点产生电子空穴对。设 g 为单位时间成功分离的电子空穴对数密度, I 为单位波长的光通量密度, k 为比例系数, q 为量子效率, λ 为波长,则有:

$$g = \int_0^{\lambda_0} kqI d\lambda \quad (6)$$

$$\text{由欧姆定律微分形式:} \quad \therefore \Phi = - \rho J \quad (7)$$

$$\text{又从 } J \text{ 散度的物理意义可知:} \quad \therefore J = - \partial \rho / \partial t \quad (8)$$

$$\partial J_z / \partial z = (J - qg) / H \quad (9)$$

式中, Φ 为电势, ρ 为电阻率, J 为电流密度, H 为 P 区的厚度, z 为 P 区纵向坐标。

由于 1D-PSD 和 2D-PSD 的特性相同,所以,为简单起见只从一维考虑,从上各式可解得:

$$\partial \Phi^2 / \partial x^2 - \rho J / H - C \rho \partial \Phi / H \partial t = - \rho q g / H \quad (10)$$

式中, x 为横向坐标, C 为结电容, (10) 式为含时光电效应电势方程。

$$\text{考虑到直流信号和交变信号的情况,令:} \quad \Phi = \Phi_0 + \Phi_v \quad (11)$$

$$g = g_0 + g_v \quad (12)$$

下标 0 表示直流恒量, v 表示交变量, 则(10)式在交变量的情况下为:

$$\partial \Phi_v^2 / \partial x^2 - C \rho \partial \Phi_v / H \partial t = - \rho q g_v / H \quad (13)$$

$$\text{由边界和初始条件:} \quad \Phi |_{t=0} = 0, \quad \Phi |_{x=0} = 0, \quad \Phi |_{x=L} = 0$$

$$\text{同时,设电势解的形式为级数:} \quad \Phi_v = \sum_{n=1}^{\infty} \Phi_{vn} \sin(n\pi x / L) \quad (14)$$

$$\text{信号源的解也为级数:} \quad g_v = \sum_{n=1}^{\infty} g_{vn} \sin(n\pi x / L) \quad (15)$$

则由上述各式可解得:

$$\Phi_v = \frac{2q}{CL} \left\{ \sum_{n=1}^{\infty} \sin(n\pi x / L) \int_0^L \int_0^t g_v \sin(n\pi x / L) \exp\left[-\frac{n^2 \pi^2 H}{\rho CL^2} (\mu - t)\right] dx d\mu \right\} \quad (16)$$

$$\text{因为} \quad \partial \Phi_v / \partial x = - i \rho / H$$

式中, i 为通过单位宽度、 H 厚度的电流, i_l 为通过左向电极, i_r 通过右向电极, $i = i_l + i_r$, 则可解得:

$$i_l = qg_m \int_{x_1}^{x_2} g_v dx \left[1 - \frac{\int_{x_1}^{x_2} x g_v dx}{L \int_{x_1}^{x_2} g_v dx} \right] \quad (17)$$

式中, g_m 为 g_v 的最大值, x_1, x_2 是光斑的左右边界。

令 $i_0 = qg_m \int_{x_1}^{x_2} g_v dx$ 电流的幅值, $x_{g_0} = \frac{\int_{x_1}^{x_2} x g_v dx}{\int_{x_1}^{x_2} g_v dx}$, 可见 x_{g_0} 表示了光强分布的重心, 即是统计意义下的衍射中心。

$$(17) \text{式即为:} \quad i_l = i_0 (1 - x_{g_0} / L) \quad (18)$$

同理可得 i_r 解形式同 i_l , 因而从(18)式可见 PSD 探测器电流 i 与光强分布重心 x_{g_0} 成线性关系, 测定的是光斑重心。同时从 g_m 的意义可见, 对强光信号会产生饱和, 这可以通过光学或电学衰减来解决。至此, 可以看出用 PSD 完全可以精确地测定衍射中心, 大大提高 r, θ 的测量精度, 正确地反映 $I(\theta)$ 的分布。

2 Shifrin 反演存在的主要问题及其改进

2.1 Shifrin 反演中的发散现象

从(5)式可见,未对 $n(x)$ 提出任何假设,所以,这种类型的计算不受限制,因此,有效地避免了矩阵迭代法中的问题。从理论上讲,由连续的 $I(\theta)$ 求 $n(D)$ 不存在误差。实际中,我们采集到的都是离散数据,所以,它需要大量详细的数据作为反演的基础,如果能提供大量且正确的数据,那么,该法将具有很高的精确度,而以 SSPD 的 32 环靶环为接收器所采集的数据量有限,使得精度提高较为困难而且影响反演矩阵迭代的收敛性。若用 CCD 可以收集到大量的数据,但由于衍射中心的信号溢出丢失,从而不能得到正确分布的 $I(\theta)$,所以,也就不能用 $I(\theta)$ 进行反演得到正确的 $n(D)$ 。如图 2 是对 GBW(E) 120004 粒子的实验结果,采用了 Shifrin 反演。从中可见,由于存在中心定位不准、中心饱和等问题,反演时中心无定义,由此造成了 $n(D)$ 在 $D \rightarrow 0$ 范围内发散。因此,若要得到正确 $n(D)$,必须测到正确分布 $I(\theta)$ 。所以,仅解决中心定位问题远不够,还必须要解决 CCD 饱和问题。

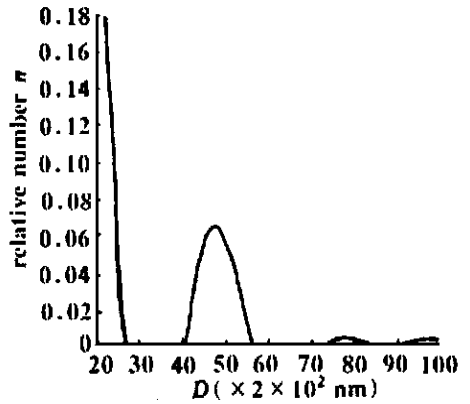


Fig. 2 Distribution of the standard particles before improving

2.2 CCD 的 RGB 均衡方法及其 $I(\theta)$ 连续谱的准确获得

单色 CCD 对相应极值溢出的缺陷是否能用 3G-CCD(真彩 CCD)克服。实验研究表明,由于 3G-CCD 对彩色图像响应是以三基色响应为基础的,而激光光源具有较高的单色性,所以,3G-CCD 出现饱和时通常是某色响应饱和,其它两色未必饱和,例如,对一维响应情况下,设红色 $R(x)$ 线在 $[x_1 - x_2]$ 响应区间内饱和,即无定义值,但黄、蓝未饱和,即 G, B 线有定义值。根据三色响应曲线的类似性,则可以定义:

$$R(x) = [\Delta G_{(x-\Delta x)} + \Delta B_{(x-\Delta x)}] / 2,$$

给予取值拟合,其中, $\Delta G, \Delta B$ 分别为 G 线、 B 线在 $[x - \Delta x, x]$ 区间上的增量,依次逐步拟合,最终得到 R 在饱和区的分布,与非饱和区的响应曲线对接,则可得到全区响应曲线。由此可见,用 3D-CCD 采取上述 RGB 均衡法拟合,可解决饱和问题,正确获取 $I(\theta)$ 分布,为反演提供了正确的依据。图 3 为采用 PSD 定位法、3G-CCD RGB 均衡法后对 GBW(E) 120004 粒子获得的 $V(N)$ (即为 $I(\theta)$) 连续谱,与图 1 比较可知,衍射中心明确可见,无饱和现象。经反演后得到了 $n(D)$ 的

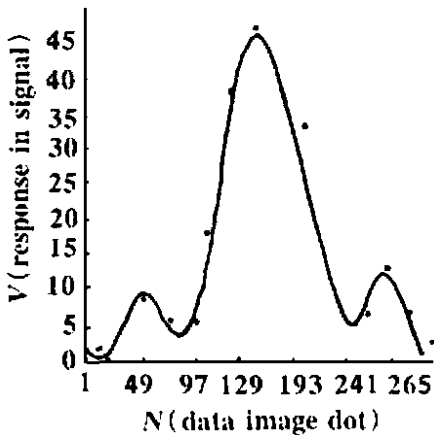


Fig. 3 Diffraction of the standard particles after improving

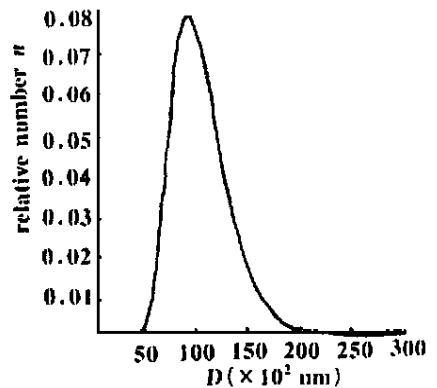


Fig. 4 Distribution of the standard particles

经反演后得到了 $n(D)$ 的

非线性吸收对聚合物 PMMA/DR1 光漂白的影响

贾振红

(新疆大学电子信息科学系, 乌鲁木齐, 830046)

摘要: 研究了在 1064nm 处非线性吸收对有机聚合物材料 PMMA/DR1 光漂白的影响。实验结果表明, 在较强的入射光作用下, 由于双光子吸收的作用, 使得 PMMA/DR1 发生光漂白, 其折射率产生微小的变化, 且随光漂白时间的增加而产生饱和。

关键词: 光漂白 PMMA/DR1 聚合物薄膜 双光子吸收

Influence of the nonlinear absorption on the photobleaching of polymer PMMA/DR1

Jia Zhenhong

(Department of Electronics and Information Science, Xinjiang University, Urumqi, 830046)

Abstract: The influence of the nonlinear absorption on the photobleaching of polymer PMMA/DR1 film is studied in this paper. The experimental results show that the photobleaching induced by the two-photon absorption at 1064nm wavelength can make the film's refractive index change, but this change will become saturated with the photobleaching time.

Key words: photobleaching PMMA/DR1 polymer film two-photon absorption

粒度分布谱如图 4, 与图 2 比较可见, 无发散现象。测量效果得到了较大的改善。

3 结 论

改进后的方法与用 SSPD 为接受器并以矩阵迭代为反演手段的方法相比, 具有以下优点: (1) 由于获取的数据量大, 减少了病态的出现, 为反演提供了良好的基础, 所以, 恢复数据更为可靠, 有更好的数值稳定性; (2) 由于准确地测定了衍射中心, 从图样中获得的数据精度高, $I(\theta)$ 分布谱图正确, 经运算模型数值处理后, 得到了 $n(D)$ 的正确分布, 有效地解决了局部的反演发散问题; (3) 仅需要很少的预知信息, 可以不考虑微粒的形状、折射率、分布模式等参数。

参 考 文 献

- 1 Allen T, Particle Size Measurement (fourth edition). New York: Chapman & Hall, 1990: 124~ 200
- 2 Bassini A, Musazzi S, Paganini E *et al*. Opt Engng, 1992; 33(31): 1112~ 1117
- 3 Yi S S, Stafsudd O M. Appl Opt, 1998; 37(19): 4112~ 4115
- 4 Fymat A L. Appl Opt, 1978; 17(11): 1677~ 1678

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学研究。