



作者简介:张福根,工学博士。1983年夏毕业于杭州大学物理系,1986年春提前毕业于南开大学物理系光学专业,并取得硕士学位,随即进入天津大学精仪系光学仪器专业,攻读博士学位,1989年春完成学业,继而留校任教一年,1990年春调珠海特区工作。1992年在珠海创办欧美克仪器公司,专门从事激光粒度仪开发研究。拥有二项专利、一项省级重大科技成果,在国内外发表论文十多篇。

用激光散射法测量大颗粒时 使用衍射理论的误差

张福根 荣跃龙 程路

(珠海经济特区欧美克仪器有限公司) (南开大学物理系)

摘要 从实验数据、物理和几何光学的定性分析及 Mie 理论的严格计算等三个方面证明了即便是远远大于光波长的颗粒的散射光场,其实际光能分布与衍射理论给出的结果之间也有不可忽略的误差:表现为较大散射角上实际的散射光能远大于衍射理论光能。按照衍射理论的计算结果,这一误差等效于 $1\mu\text{m}$ 左右的颗粒产生的光能分布。如果颗粒对光具有吸收性,则误差将显著减少。

关键词 衍射;Mie 散射;光能分布

引言

在激光散射测粒领域,人们普遍认为较大颗粒(一般都指直径大于 $2\mu\text{m}$ 的颗粒)的光散射可以用该颗粒的投影圆片的衍射来描述。然而作者在多年的激光测粒实际工作中,发现即便是直径大致为 $100\sim 200\mu\text{m}$ 的颗粒,用衍射理论推算的分布与实测光能分布之间也存在明显的差异。本文首先给出一组实测结果与衍射理论结果的比较,指出其差异,然后从物理光学、几何光学以及 Mie 理论等几个方面对这种现象进行了分析,最后得出用衍射理论计算大颗粒的散射光能分布在一般情况下是有很大的误差的,并且这种误差会导致对被测样品粒度分析的错误。

1 衍射理论光能与实测光能的差异

笔者在用国家标准物质研究中心公布的 GBW(E)12 条列标准粒子(直径均大于 $2\mu\text{m}$)校准激光粒度仪时,发现在较大散射角上实测光能显著大于理论计算光能,如图 1 如示。

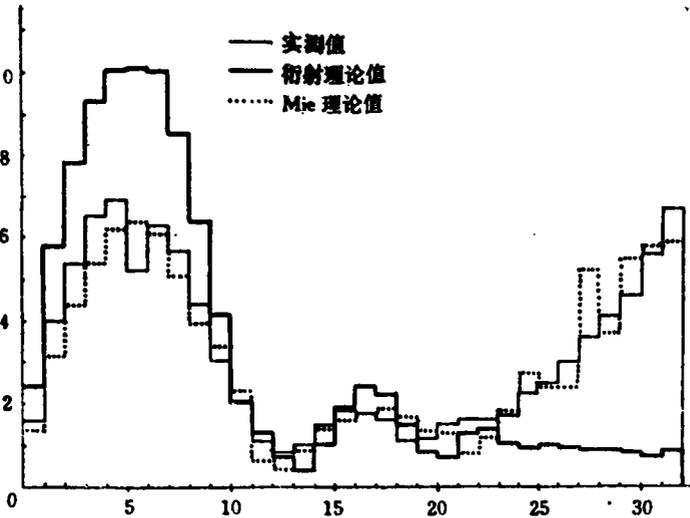


图1 实测光能分布与理论值的比较
细线表示实测光能分布 粗线表示衍射理论光能分布

在此各种光能分布都作了归一化处理,即把1~32单元上的总光能规定为1。从图中可以看出,衍射理论光能与实测光能在24单元以前的变化趋势基本一致(高度相差较大系归一化处理所致),但在24单元以后,衍射理论值越来越小,而实测值则越来越大。在此把这种现象称作“翘尾”。该现象有以下三种可能的解释:(1)标准粒子中混有相当数量的极细($<1\mu\text{m}$)粒子;(2)复散射,即入射光经两次或两次以上散射;(3)理论计算有误差。

对第一种解释,作者做了如下实验:先将盛放标物的小瓶摇晃多次,使粒子均匀地悬浮在液体中。然后将瓶子竖立放置,瓶口朝上。观察到瓶内粒子大致已沉到瓶底时,再将瓶子慢慢倾斜,至瓶内液面略高于瓶口位置,挤出几滴液体到样品池中,测量光能分布。如果液体中混有足够数量的细颗粒,那么摇匀后再与正常使用情况下测得的结果基本一致。竖放瓶子时,大颗粒下沉快,小颗粒下沉慢,因而按上述方法挤出的液体中细颗粒含量应大大高于正常方法挤出的液体,故而“翘尾”将更加严重,但测量结果与正常使用情况下测得的结果基本一致。所以本实验证明细颗粒不是造成“翘尾”的主要原因。

为检验第二种解释,我们对同一种标样取3%~20%之间和各种遮光比(对应于不同的粒子浓度)进行测量,发现测得的光能分布基本相同。如果“翘尾”是复散射所致,那么浓度越高“翘尾”就越严重。因此该实验证明在遮光比小于20%的范围内,没有明显的复散现象。

最后,只能把“翘尾”解释为衍射理论在较大散射角上的不准确。

图1所示光能分布对应的标准粒子编号为GBW(E)120006,遮光比9%。标称的库尔特计数器测定结果如表1所示。

由于没能得到更详细的粒度分布,作理论计算时只取了三个代表粒径,即 $18.08\mu\text{m}/20\%$, $20.93\mu\text{m}/50\%$, $22.78\mu\text{m}/30\%$ 粒度分布不同计算得到的光能分布细节也有不同,但总体趋势不会变。

粒度仪的光学系统

如图2所示,付里叶透镜焦距 $f=60\text{mm}$,探测器参数如表2所示。

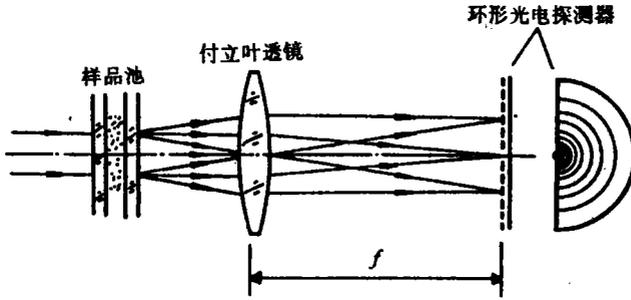


图2 粒度仪的光学系统

表 1 GEW(E)12006 粒度分布

道	粒径 / μm	道均径 / μm	微分分布 重量/%
9	12.70	14.35	0.6
10	16.0	18.08	39.7
11	20.16	22.78	59.0
12	25.40	28.70	1.0
均值粒径/ μm		20.93	

表 2 环形光电探测器阵列几何参数

环(单元)序号	内半径 /mm	外半径 /mm	面积 / mm^2
1	0.14	0.23	0.0258
2	0.27	0.38	0.0638
31	12.23	13.62	54.41
32	13.67	15.25	69.51

2 大颗粒光散射的物理和几何光学分析

2.1 光学衍射理论的近似性

衍射实际上泛指光线偏离直线传播规则的现象。光被颗粒散射显然也属于这种现象,但是习惯上衍射特指可以用衍射公式描述的非直线传播现象。

光的衍射公式可以避免光的本质特征而仅仅根据波动现象的基本规律——Huygens 原理推导出。然而光是一种电磁波,应遵守 Maxwell 方程组。但是如果从 Maxwell 方程组出发推导衍射公式,则必须作如下假定(见图 3(a)):

(1)在通光孔内,各点的 U 和 $\partial U/\partial n$ 与没有衍射屏时完全相同。

(2)除通光孔外,屏上各点的 $U = \partial U/\partial n = 0$,其中 U 和 $\partial U/\partial n$ 表示光振幅及其对积分面法线的方向导数。

但是根据电磁场理论,在衍射屏和周围介质之间的界面上,电场的切线分量连续,法线分量的变化则跟表面电荷有关,所以不可能由入射时的强度突变到零。这就是衍射理论的不严格之处。不过实践证明,当孔的尺寸远远大于光波长时,衍射公式基本正确。

根据光学互补原理,一个形状和尺寸都与通光孔相同的挡光片产生的衍射场与通光孔的

衍射场位相相反,振幅相同,因此强度相同(见图3(b))。

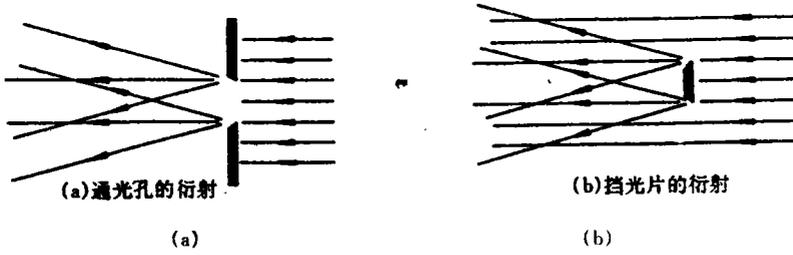


图3 衍射现象示意图

2.2 对衍射机制的表象化理解

从前面的讨论得知,光的衍射理论上不涉及光的本质特征。当入射光为平行光,且观察点离衍射屏无限远时,衍射公式可以写为:

$$U(p) = C \iint \exp[-ik(ax + \beta y)] dx dy \tag{1}$$

这类衍射又称 Fraunhoff 衍射,其中 $U(p)$ 表示观察点 p 上的光振幅, C 是与入射场强度及位相有关的常数, γ 和 β 表示 P 点相对于挡光片(或通光孔)的方向角, A 表示挡光片截面 $R = 2\pi/\lambda$, λ 表示光波长, x 和 y 表示截面内的直角坐标。(1)式表明,衍射场是被遮挡入射波前的付里叶变换,它同挡光片的光学特性无关。因此衍射可以理解成“入射波前受缺损时产生的新波场”。根据能量守恒定律,衍射场的总能量等于投射到挡光片上的总能量。

2.3 几何光学的影响

当一球形颗粒被置于平行光场中时,该颗粒一方面使原光场的波前受缺损,从而产生衍射;另一方面使投射到其上的光产生反射和折射(见图4)。因此颗粒的光散射可以理解成衍射光和折射、反射光的叠加。颗粒越大,则这种近似描述越准确。

如图5所示,一条投射到圆球上的光线首先被反射(见0号光线),进入球体内部的折射光线再次投射到球体与环境之间的界面上时,一部分折射出来(见1号光线)成为散射光的一部分,另一部分反射回球体内部。由此证明,几何散射光的总能量等于投射到其上的光的总能量,且主要集中在1号光线上

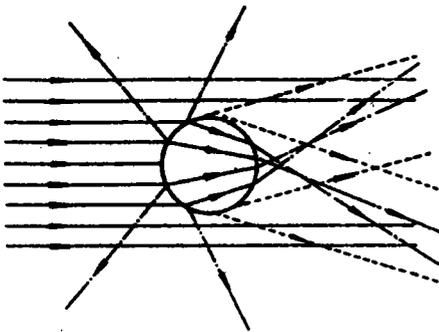


图4 球形颗粒的衍射和几何光学散射

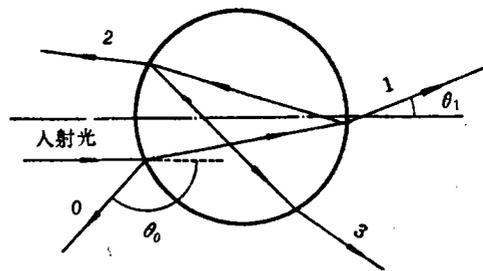


图5 光线在球体内(上)的反射和折射

(虚线表示衍射光,点划线表示几何散射光)

0号光线的出射角范围为 $0 \sim 180^\circ$, 1号光线则为 $0 \sim 2\cos^{-1}(1/n)$ 。 n 表示球跟周围介质

的相对折射率。

2.4 衍射和几何散射的比较

从上面的讨论已经知道,衍射和几何散射光的总能量相等。但是衍射光的角范围比较窄。因而在小散射角上强度很高,几何散射则比较均匀地分布在一个较大的立体角内。

由(1)式可以得出,直径为 D 的圆片的衍射光强为:

$$I(\theta) = q^4 J_1^2(q \sin \theta) / (q \sin \theta)^2, \quad (2)$$

式中 $q = D\pi/\lambda$, θ 为散射角, J_1 为一阶 Bessel 函数。当 $q \sin \theta = 1.22\pi$ 时, $I(\theta) = 0$, 此时衍射光强第一次达到最小, 对应的衍射角为:

$$\theta = \sin^{-1}(1.22\pi/q) \approx 1.22\pi/q. \quad (3)$$

数学证明 83.8% 的衍射光能都集中在此角范围之内。(3)式表明,该角大小与折射率无关,只同球的几何尺寸及波长有关,而几何散射的散射角只同球体与周围介质之间相对折射率有关。与其几何尺寸无关。

设直径 $30\mu\text{m}$ 的小水珠处在空气中,激光波长为 $0.63\mu\text{m}$, 那么衍射的第一极小散射角为:

$$\theta_d = 1.22\pi / (30\pi / 0.63) = 0.02562 = 1.47^\circ$$

几何散射的 1 号光线最大角为:

$$\theta_G = \cos^{-1}(1/n) = 82.5^\circ$$

作为数量级的估计,不妨认为衍射光能都集中在 $0 \sim \theta_d$ 之间,而几何散射光则集中在 $0 \sim \theta_a$ 之间,因此:

$$\frac{\text{衍射光平均强度}}{\text{几何散射光平均强度}} = (\theta_G/\theta_d)^2 = 3.1 \times 10^3$$

由此可见,从光强考虑,几何散射光远比衍射光弱,甚至可以忽略不计。但是衍射光的分布范围窄,它只能被探测器的内环接收。几何散射光则可以被探测器的所有单元接收。当然在内环上两种光叠加在一起,主要是衍射光起作用;而在外环上,则主要是几何散射光起作用。从表 2 可以看出最内环同最外环的接收面积之比为 $0.0258/69.51 = 3.7 \times 10^{-4}$ 。因此二者接收的能量之比为 $3.1 \times 10^3 \times 3.7 \times 10^{-4} = 1.1$ 。可见外环上的光能具有同一数量级,所以几何散射不能忽略。前述“翘尾”现象即由此所引起。

上面所讨论的主要是透明颗粒。对吸收性的颗粒,光线经球体内部后再折射出来时强度衰减为入射时的 $\exp(-2kn'p)$, 其中 n' 表示折射率的虚部, p 为光线在球体内走过的光程。例如,对钢球而言, $n = 1.51 - 1.63i$, 故 $kn' = 2\pi \times 1.63 / (0.63/1.51) = 24.5\mu\text{m}^{-1}$ 。对 1 号光线, $P \approx D$ 。设 $D = 10\mu\text{m}$, 则 $\exp(-2kn'p) = \exp(-2 \times 24.5 \times 10) = 0$ 。故而几何散射的主要能量被吸收,只有 0 号光线仍对散射光场有贡献,但其强度远比透明颗粒情况下的 1 号光线弱。

3 大颗粒光散射的 Mie 理论计算

Mie 理论是描述球形颗粒光散射的严格理论。它只需假定颗粒材料是光学均匀,且各向同性,就可以由 Maxwell 方程组及边界条件推导而出。因此它适用于描述任何尺寸的球形颗粒的光散射。但是 Mie 理论在数学表达上极其复杂,到目前为止只见较小颗粒($q \sim 10$)的光散射用 Mie 理论计算的报导。我们经努力,最终以数学技巧解决了大颗粒(q 值可达 1000 以上)的 Mie 理论计算问题。

图1中的虚线表示 GBW(E)120006 标物的 Mie 理论计算结果。与实测值比较可知,除细节外总体趋势完全一致。细节的不一致可解释为探测器的误差和标物粒度分布的标称值不够详尽和准确所致。

$q = 100, n = 1.52/1.33 = 1.44$ (相当于玻璃珠在水中)时的散射光 Mie 理论结果和衍射理论结果如图6所示。图6(a)表示光的强度分布,其中实线表示 Mie 理论,虚线表示衍射理论。由该图可以看出,两种理论的计算结果在前面两个峰上一致性很好,从第三个峰开始 Mie 理论结果比衍射结果大,10° 散射角以后前者比后者大 10 倍以上。这种差异可认为是前一节所说的几何散射所致。不过就按相对较大的 Mie 理论结果看,第三个峰的极大也比第一个峰的极大小 100 倍左右,后面的各个峰小得就更多了。如果主要关心的是强度分布,那么后面各个峰可以不予考虑,这样两种理论的结果就基本一致了。也许这就是人们认为的大颗粒散射可以用衍射理论描述的原因。但是在激光粒度仪中,置于大角度上的探测单元对应的散射角范围比小角度上的要大得多,因而后面各单元接收到的总能量未必比前面的单元少。

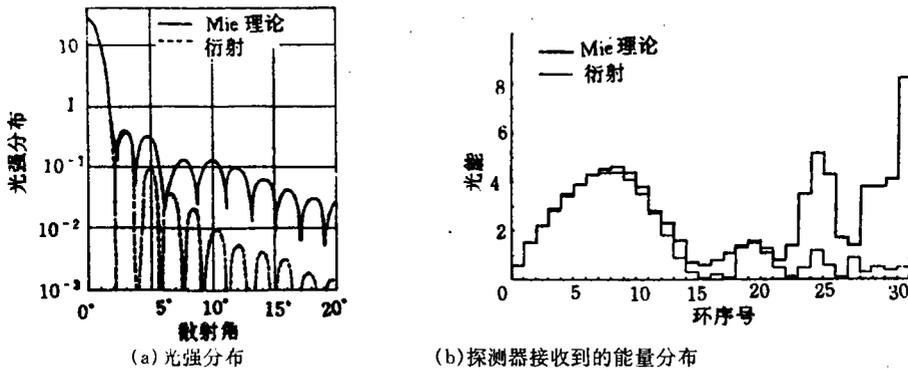


图6 $q = 100, n = 1.14$, Mie 理论和衍射理论计算结果

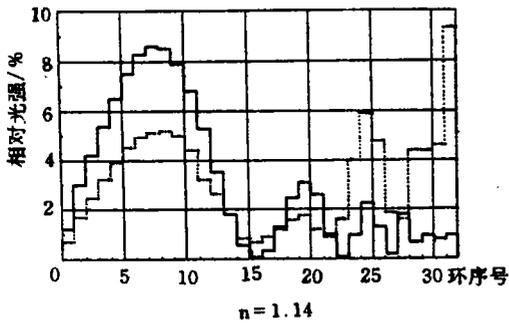
图6(b)表示图2所示的光学系统接收到的光的能量分布,其中粗线表示 Mie 理论结果,细线表示衍射结果。由图中可以看出,主峰上两种理论结果基本一致,以后则是 Mie 结果越来越大于衍射结果。可见衍射并没有把散射光场的所有能量都考虑在内(可以直观地认为漏掉了几何散射部分)。

图7表示各种折射率下的 Mie 理论光能分布,其中 $q = 100$ (若波长为 $0.63\mu\text{m}$, 粒子被置于水中,则此值相当于 $15.1\mu\text{m}$ 的粒子)。虚线表示 Mie 理论值,实线表示衍射理论值,光强数值均经过归一化处理。(a)~(c)分别表示折射率为 1.14 (在水中)、1.33 (水珠)、1.52 (玻璃球)时的能量分布。从中可以看出,随着折射率的增大,“翘尾”现象越来越不明显。这是因为折射率增大使得几何散射角范围增大,从而使几何散射的平均强度减弱。图(d)表示折射率为 $n = 1.14 - 0.5i$ (相当于碳质小球置于水中)时的光能分布。结果表明 Mie 理论分布与衍射理论分布相比除尾部有稍抬外,已基本趋于一致。这与上一节用几何光学方法对吸收球的分析结果相吻合。以上结果还表明,即使是大颗粒。散射光的分布也同折射率有关。

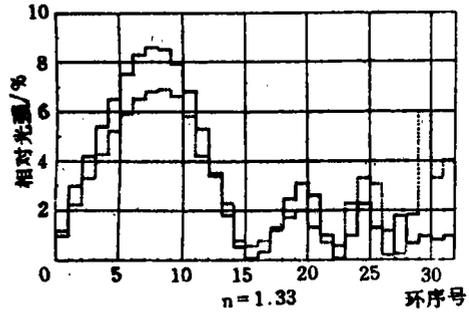
4 采用衍射理论的后果

除了吸收性颗粒外,散射光能分布的“翘尾”现象是正常的。而衍射理论却反映不出这种事实。根据衍射理论的计算结果,“翘尾”相当于一个 $1\mu\text{m}$ 左右的小粒子产生的散射(见图8)。

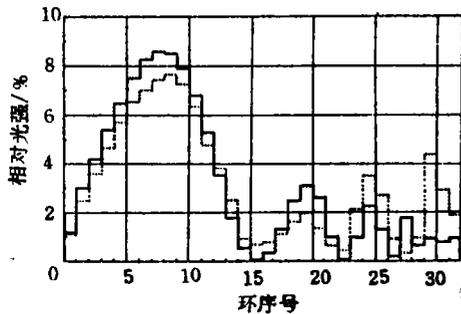
这样当我们用衍射理论去分析一个较大颗粒(例如 $20\mu\text{m}$)的散射光能分布时,会得出被测样品由 $20\mu\text{m}$ 和 $1\mu\text{m}$, 两种尺寸粒子所组成的结论(如果仪器能进行多峰分析)。这里 $1\mu\text{m}$ 的粒子显然是“无中生有”。



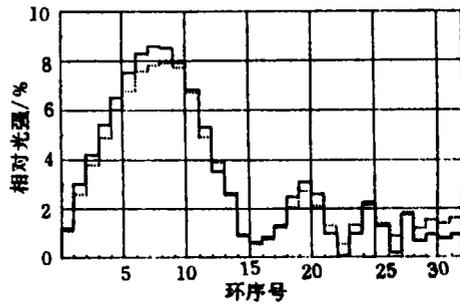
(a) $n = 1.14$



(b) $n = 1.33$



(c) $n = 1.52$



(d) $n = 1.14 - 0.5i$

图 7 同一直径不同折射率的球的散射光能分布
(实线表示衍射理论值,虚线表示 Mie 理论值)

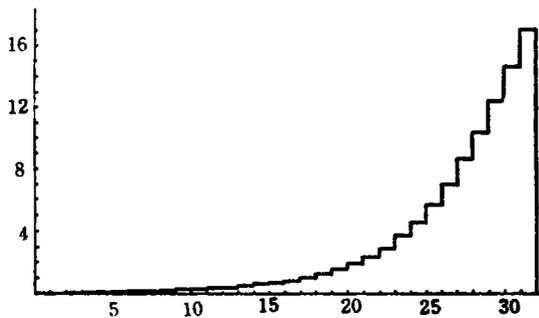


图 8 $q = 8(D = 1.1\mu\text{m})$ 的粒子产生的散射光能分布

5 结束语

本文通过实验表明,即便是对远远大于光波长的颗粒,用衍射理论计算的散射光能分布仍有严重的误差。理论分析认为,当颗粒同波长相比大很多时,衍射公式本身有相当高的精确性;但是置于光场中的颗粒除了具有衍射作用外,还有由几何光学的反射和折射引起的几何散射作用,后者就强度而言远小于前者,但总的能量不相上下。用衍射理论计算散射光能分布显然忽视了几何散射,因而有较大误差。Mie 理论是描述颗粒光散射的严格理论。计算结果表明,对吸收性颗粒而言,Mie 理论诸结果同衍射理论结果基本一致。对非吸收性颗粒而言,颗粒相对于周围介质的相对折射率越大,则衍射与 Mie 理论的结果越相近,这也说明大颗粒的光散射也同折射率有关。对非吸收性颗粒,用衍射理论去分析散射光能时,将会“无中生有”地认为在仪器的测量下限附近有小粒子(如果仪器有进行多峰分析的能力)。

THE ERROR OF THE DIFFRACTION THEORY IN LARGE PARTICLE SIZE MEASUREMENT BY LASER SCATTERING METHOD

Zhang Fugen Rong Yuelong Cheng Lu

(OMEC Instrument Co. Ltd., Zhuhai S. E. Z.) (Dept. of Physics, Nankai University)

Abstract On the basis of experimental data, quantitative analysis by both physical and geometric optics and calculation by Mie's scattering theory, it is proved that the error of the calculated light energy distribution by the diffraction theory could not be neglected in the laser particle sizer even for large particles relative to the light wavelength. This error is distributed mainly over the scope of large scattering angle, which approximately equal to the light energy distribution scattered by particles of diameter about $1\mu\text{m}$. It is also proved that the error will strikingly decrease if the particles is absorbent of light.

Key words diffraction, Mie's Scattering, light energy distribution