

激光非成像方法微粒度分布测量的原理

宋菲君

(北京信息光学仪器研究所)

E. Dan. Hirleman

(Arizona State University)

微粒的线度及线度分布(简称微粒度分布)的测量和研究,在粉末冶金、制药、化工、乳品加工、水煤浆等工业部门有相当重要的意义,微粒度分布参数也是内燃机、燃气轮机、柴油机等热机中燃料燃烧气化过程分析及火焰机理研究中的重要参数。

目前,应用激光技术来研究微粒度分布的方法可分成两大类。

1. 成像技术^[1]: 例如将微粒样品经过光学系统高倍放大后,记录在胶片上进行测量,或用全息技术来记录和分析微粒的线度和分布。该技术的缺点是不能进行实时测量,而且仅适用于单个粒子或粒子数不多的情况。

2. 非成像技术: 该技术又可分成两类:

(1) 系综或多粒子系统分布测量(LDP-SA)。

2) 单粒子计数(SPC)。

本文介绍第(1)种方法的测量原理、标定方法和实例。这种方法采用近代光学中的透镜傅里叶变换效应^[2],来获得准直的激光束通过微粒系统后的功率谱。用环形或环楔形探测器测量功率谱后就可以确定微粒系统的分布函数。该方法具有以下优点:非接触测量,准确度高,测量过程为实时或准实时的,便于用计算机直接进行数据处理。这一方法适用于特征线度比波长大的微粒样品,通常测量范围为2—100 μm 。测量上限主要受透镜焦距的影响,采用长焦距的傅里叶变换透镜,测量上限可以扩展到500 μm 。

理论分析和实验结果表明,当准直的相干物理

光束通过上述微粒系统时,大部分散射光能量集中在近轴范围(即与光轴夹角不大的范围)内,或者说衍射角谱在中心具有明显的峰。这一效应又称为近前向散射(Near-forward scattering)。由于峰值范围内的功率谱包含了微粒系统的主要分布信息,所以对于峰值范围内频谱成分的主要贡献是近轴的夫琅和费衍射。如果用傅里叶变换透镜把衍射光聚焦到谱平面上,信号的角谱就转换成空间谱,可以用环形或环楔形探测器进行测量。理论分析和实验结果表明,用这样的方法得到的结果一般不必再进行修正。

近年来,这一技术发展得很快,国际上已有数家厂商生产激光衍射粒度分析仪。与此相关的标定技术也在发展^[1]。

一、近前向散射模型

参见图1,当准直的激光束通过由大量微粒组成的样品(例如火焰、悬浊液样品)S时,由S出射的直接透射光和散射光,经过透镜L后分别聚焦在L的后焦面D上,其中直接透射光的焦点位于光轴上,散射光的焦点散布在D上。

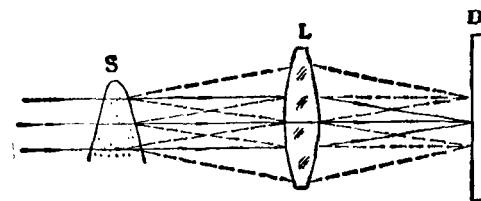


图1 微粒样品对激光的散射

为了简化分析和计算,建立下面的模型:假定样品是一个无限薄的散射屏,所有的微粒的散射截面都是圆,它们无规则地散布在散射屏上,每个微粒都是完全不透明的。

一个位于光轴上的不透明圆斑的透过率可以用函数

$$g(r) = g_0 \left[1 - \text{circ} \left(\frac{r}{a} \right) \right] \quad (1)$$

$$r = (x^2 + y^2)^{\frac{1}{2}}$$

表示,式中 a 为圆的半径, circ 函数定义为

$$\text{circ} \left(\frac{r}{a} \right) = \begin{cases} 1 & r \leq a, \\ 0 & \text{其它}. \end{cases} \quad (2)$$

由于透镜的傅里叶变换效应,在 D 平面上出现 $g(r)$ 的空间频谱:

$$G(v) = g_0 \left\{ \delta(v) - \frac{a^2}{2} \left[\frac{2J_1(2\pi av)}{av} \right]^2 \right\}, \quad (3)$$

$$v = (v_x^2 + v_y^2)^{\frac{1}{2}},$$

J_1 为一阶贝塞耳(Bessel)函数。

相应的功率谱为

$$I(v) = I_0 \left\{ \delta(v) + \frac{a^2}{4} \left[\frac{2J_1(2\pi av)}{av} \right]^2 \right\}, \quad (4)$$

其中 δ 函数表示由直接透射光形成的零级光斑。当圆斑位于轴外时,在空间频谱 G 中出现位相因子,但功率谱的表达式完全一致。亦即样品中相同大小的微粒对功率谱的贡献相同。

设谱面上的极坐标矢径为 ρ , 透镜焦距为 f , 散射角 $\theta \approx \rho/f$ (参见图 2), 则空频 $v = \rho/\lambda f$, λ 为波长。

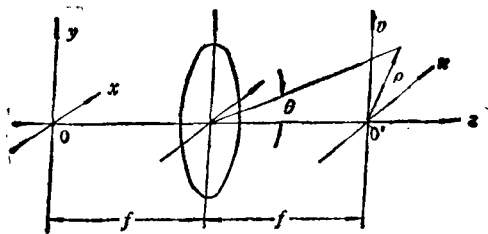


图 2

引入微粒度的特征线度 α :

$$\alpha = \frac{2\pi a}{\lambda}. \quad (5)$$

忽略中心亮斑,(4)式可化作

$$I(\theta, \alpha) = I_0 \frac{\alpha^2 \lambda^2}{16\pi^2} \left[\frac{2J_1(\alpha\theta)}{\alpha\theta} \right]^2. \quad (6)$$

设样品中半径为 a 的微粒数为 $n(\alpha)$, 则在 uv 平面(谱平面)上对透镜中心张成 θ 角的圆环上的光强为

$$I(\theta) = I_0 \frac{\lambda^2}{16\pi^2} \int_0^\infty n(\alpha) \alpha^4 \left[\frac{2J_1(\alpha\theta)}{\alpha\theta} \right]^2 d\alpha \\ = I_0 \frac{\lambda^4}{4\pi^2} \int_0^\infty n(\alpha) \alpha^4 \left[\frac{J_1(\alpha\theta)}{\alpha\theta} \right]^2 d\alpha. \quad (7)$$

上式还可以写成

$$F(\theta) = \frac{4\pi^2 I(\theta)}{\lambda^4 I_0} = \int_0^\infty n(\alpha) \alpha^4 \left[\frac{J_1(\alpha\theta)}{\alpha\theta} \right]^2 d\alpha. \quad (8)$$

(7)式或(8)式称近前向散射的基本方程,它是一个以 $\left[\frac{J_1(\alpha\theta)}{\alpha\theta} \right]^2$ 为核的奇异型第一类

Fredholm 型积分方程。LDPSA 方法的实质,就是积分方程(7)或(8)的求逆,也就是根据实际测得的 $I(\theta)$ 或 $F(\theta)$ 来计算分布函数 $n(\alpha)$ 。

二、近前向散射方程的求解

基本方程式有三种求解方案: Titchmarsh 变换、本征值方法和有限秩方法。由于环形探测器件的研制成功,有限秩方法最容易用于实测仪器,本文将详细地进行讨论。前两种方法在理论上有一定的意义,也可用于实际测量。

1. Titchmarsh 变换

Titchmarsh 变换定义如下^[4]

$$f(y) = \int_0^\infty \frac{d}{dy} [y J_\nu^2(xy)] x \tilde{f}(x) dx,$$

$$\tilde{f}(x) = -2\pi \int_0^\infty J_\nu(xy) Y_\nu(xy) y f(y) dy,$$

式中 J_ν 和 Y_ν 分别为 ν 阶 Bessel 和 Neumann 函数。Chin^[5] 等运用这一积分变换对求解(8)式,令

$$f(\theta) = \frac{d}{d\theta} [\theta^2 F(\theta)],$$

$$\tilde{f}(\alpha) = n(\alpha) \alpha,$$

就得到下面的变换对:

$$f(\theta) = \int_0^{\infty} \frac{d}{d\theta} [\theta f_1(\alpha\theta)] \alpha \tilde{f}(\alpha) d\alpha,$$

$$\tilde{f}(\alpha) = -2\pi \int_0^{\infty} J_1(\alpha\theta) Y_1(\alpha\theta) \theta f(\theta) d\theta,$$

后一式也可写成

$$n(\alpha)\alpha^2 = -2\pi \int_0^{\infty} J_1(\alpha\theta) Y_1(\alpha\theta) \times \frac{d}{d\theta} [\theta^3 F(\theta)](\alpha\theta) d\theta, \quad (9)$$

事实上,由于基本方程只适用于近轴区域,所以(9)式的积分上限总是有限的,设为 θ_2 . 考虑到必须去除零级光斑,积分下限又不能为 0,因此可设下限为 θ_1 . 这样一来(9)式应改写为

$$n(\alpha)\alpha^2 = -2\pi \int_{\theta_1}^{\theta_2} J_1(\alpha\theta) Y_1(\alpha\theta) \times \frac{d}{d\theta} [\theta^3 F(\theta)](\alpha\theta) d\theta. \quad (10)$$

由(10)式可见, θ_1, θ_2 的选取和 $F(\theta)$ 的测量误差构成了这一方法的误差的主要来源. 但当适当选取积分限(特别是 θ_2)和角分辨率 $\Delta\theta$ 时,积分变换方法在噪声较低的情形下仍然给出可靠的结果.

2. 本征值方法^[6]

定义积分算子

$$A = \int_0^{\infty} d\alpha k(\alpha\theta), \quad 0 \leq \theta \leq \frac{\pi}{2}, \quad (11)$$

式中 $k(x) = f_1(x)/x^2$, 则近前向散射的基本方程可用算子形式表示:

$$g = Af + n', \quad (12)$$

式中 $g = F$, n' 代表测量中的噪声. 如果 k 满足条件

$$\int_0^{\infty} \frac{k(x)}{\sqrt{x}} dx < \infty, \quad (13)$$

则积分算子 A 为平方可积函数空间 $L_2(0, \infty)$ 中的连续算子.

由于 A 的不适定性,很少一点噪声 n' 就将引起解的显著变化,所以比较有效的方法是求解(12)式对应的本征方程. 设 λ_ω 和 φ_ω 为算子 A 的本征值和相应的本征函数,满足齐次方程

$$\lambda_\omega \varphi_\omega(\theta) = \int_0^{\infty} k(\alpha\theta) \varphi_\omega(\alpha) d\alpha. \quad (14)$$

本征函数是散射基本信息的荷载者. 在散射过程中[这一过程在数学上表示为算子 A 的作用,即(14)式],它们不改变自身的形式,仅乘以本征值 λ_ω . λ_ω 越大,表示在散射过程中 $\varphi_\omega(\alpha)$ 渗入 $\varphi_\omega(\theta)$ 的效应越显著. 属于较小的 λ_ω 的本征函数有可能淹没在噪声之中,测不出来或测不准确,由它们荷载的信息可能丢失.

McWhirter 和 Pike^[7]指出上述本征问题的实的解析解为

$$\varphi_\omega^+(\alpha) = \frac{\operatorname{Re} \left[\left(\tilde{k} \left(\frac{1}{2} + i\omega \right) \right) \alpha^{-(\frac{1}{2}) - i\omega} \right]^{\frac{1}{2}}}{\left[\pi \left| \tilde{k} \left(\frac{1}{2} + i\omega \right) \right| \right]^{\frac{1}{2}}}, \quad (15)$$

$$\varphi_\omega^-(\alpha) = \frac{\operatorname{Im} \left[\left(\tilde{k} \left(\frac{1}{2} + i\omega \right) \right) \alpha^{-(\frac{1}{2}) - i\omega} \right]^{\frac{1}{2}}}{\left[\pi \left| \tilde{k} \left(\frac{1}{2} + i\omega \right) \right| \right]^{\frac{1}{2}}},$$

式中 $\tilde{k}(y)$ 表示梅林变换:

$$\tilde{k}(y) = \int_0^{\infty} x^{y-1} k(x) dx. \quad (16)$$

相应的本征值为

$$\lambda_\omega^\pm = \pm \left| \tilde{k} \left(\frac{1}{2} + i\omega \right) \right|. \quad (\omega > 0) \quad (17)$$

根据黎曼-勒贝格定理,当 $\omega \rightarrow \infty$ 时, $\lambda_\omega^\pm \rightarrow 0$. 由于本征函数构成区间 $(0, \infty)$ 上的完备正交函数集合,所以任意的平方可积函数 $f(\alpha)$ 可以按 φ_ω^+ 及 φ_ω^- 展开:

$$f(\alpha) = \int_0^{\infty} a_\omega^+ \varphi_\omega^+(\alpha) d\omega + \int_0^{\infty} a_\omega^- \varphi_\omega^-(\alpha) d\omega, \quad (18)$$

式中

$$a_\omega^\pm = \int_0^{\infty} f(\alpha) \varphi_\omega^\pm(\alpha) d\alpha. \quad (19)$$

将(18)式代入(12)式,应用(14)式的结果,得到

$$a_\omega^\pm = \frac{b_\omega^\pm}{\lambda_\omega^\pm} - \frac{c_\omega^\pm}{\lambda_\omega^\pm}, \quad (20)$$

其中

$$b_\omega^\pm = \int_0^{\infty} g(\alpha) \varphi_\omega^\pm(\alpha) d\alpha,$$

$$c_\omega^\pm = \int_0^{\infty} n'(\alpha) \varphi_\omega^\pm(\alpha) d\alpha. \quad (21)$$

如果噪声的影响可以忽略,即 $c_{\omega}^{\pm} = 0$, 则逆问题的解为

$$f(\alpha) = n(\alpha)\alpha^4 = \int_0^{\infty} \frac{b_{\omega}^{+}}{\lambda_{\omega}^{+}} \varphi_{\omega}^{+}(\alpha) d\omega + \int_0^{\infty} \frac{b_{\omega}^{-}}{\lambda_{\omega}^{-}} \varphi_{\omega}^{-}(\alpha) d\omega. \quad (22)$$

利用梅林变换的定义,得到

$$\tilde{k}(y) = \int_0^{\infty} x^{y-1} \frac{J_1(x)}{x^2} dx = \frac{2^{y-3} \Gamma(3-y) \Gamma(y/2)}{\Gamma^2(2-y/2) \Gamma(3-y/2)}, \quad (23)$$

代入 $y = \frac{1}{2} + i\omega$, 借助于(15)式及(17)式可以算出本征值 λ_{ω}^{\pm} 和本征函数 φ_{ω}^{\pm} .

3. 有限秩方法^[8]

平方可积空间为希尔伯特空间。一般来讲,算子 A 为全连续厄密算子,因此总可以找到一个有限秩的算子 A_N 来逼近 A ; A_N 的本征值趋近于 A 的本征值, A_N 的本征函数按范数趋近于 A 的本征函数。这样一来,我们可以把积分方程的求逆转化为线性方程组的求解。有关有限秩方法的严格叙述,请参见文献[8],我们只打算利用这种算法来求解基本方程(7)。

样品中的 α 值总归是有限的,设其最大值为 α_0 , 将区间 $(0, \alpha_0)$ 分成 N 份: $\{(\alpha_{\mu-1}, \alpha_{\mu})\}$, $\mu = 1, 2, \dots, N$, $n(\alpha_{\mu})$ 为第 μ 个区间内的微粒数,则(7)式化为

$$I(\theta) = I_0 \frac{\lambda^4}{4\pi^2} \sum_{\mu=1}^N n(\alpha_{\mu}) \alpha_{\mu}^2 \left[\frac{J_1(\alpha_{\mu}\theta)}{\theta} \right]^2 \Delta\alpha_{\mu}. \quad (24)$$

此外,散射光能量一般来说集中在谱面的中心近旁。取足够大的孔径角 Θ , 略去 $\theta > \Theta$ 的信号,我们可以把区间 $(0, \Theta)$ 分成 N 份: $\{(\theta_{\nu-1}, \theta_{\nu})\}$, $\nu = 1, 2, \dots, N$, 第 ν 个环内的散射光功率为

$$I_{\nu} = \int_0^{2\pi} d\varphi \int_{\theta_{\nu-1}}^{\theta_{\nu}} I(\theta) f^2 \theta d\theta = I_0 \frac{\lambda^4 f^2}{2\pi} \sum_{\mu=1}^N n(\alpha_{\mu}) \alpha_{\mu}^2 \Delta\alpha_{\mu} \int_{\theta_{\nu-1}}^{\theta_{\nu}} \left[\frac{J_1(\alpha_{\mu}\theta)}{\theta} \right]^2 \theta d\theta$$

$$= I_0 \frac{\lambda^4 f^2}{2\pi} \sum_{\mu=1}^N n(\alpha_{\mu}) \alpha_{\mu}^2 \Delta\alpha_{\mu} \times \{ [J_0^2(\alpha_{\mu}\theta_{\nu-1}) + J_1^2(\alpha_{\mu}\theta_{\nu-1})] - [J_0^2(\alpha_{\mu}\theta_{\nu}) + J_1^2(\alpha_{\mu}\theta_{\nu})] \},$$

引入记号

$$x_{\mu} = n(\alpha_{\mu}) \alpha_{\mu}^2 \Delta\alpha_{\mu}, \\ a_{\nu\mu} = [J_0^2(\alpha_{\mu}\theta_{\nu-1}) + J_1^2(\alpha_{\mu}\theta_{\nu-1})] - [J_0^2(\alpha_{\mu}\theta_{\nu}) + J_1^2(\alpha_{\mu}\theta_{\nu})], \quad (25)$$

则有

$$I_{\nu} = \sum_{\mu=1}^N a_{\nu\mu} x_{\mu}, \quad \nu = 1, 2, \dots, N. \quad (26)$$

这样一来,由测得的 N 个环内的总功率 I_{ν} 值,就可以通过(26)式解出 N 个分布参数的抽样值 x_{μ} 。只要上述对 α 的抽样及对 θ 的抽样足够密集,就能确保最后结果的精度。这正是用数值方法来求逆的一般手法。

x_{μ} 也可以用微粒的三重重量分布 W_{μ} 来表示:

$$W_{\mu} = x_{\mu} \alpha_{\mu}. \quad (27)$$

这样求得的解直接就是重量百分比。

此外,具有参数 α 的某种微粒的环形探测功率的峰值由下式确定:

$$\frac{d}{d\theta} \left[\frac{J_1(\alpha\theta)}{\alpha\theta} \right] = 0, \quad (28)$$

即

$$J_0(\alpha\theta) = 3J_1(\alpha\theta), \quad (29)$$

其中第一个峰的位置为

$$\alpha\theta_1 = 1.357, \quad (30)$$

或由它距离中心的半径 ρ_1 表示:

$$\rho_1 = 1.357 \frac{\lambda f}{2\pi a}. \quad (31)$$

三、散射光功率谱的探测和系统标定

上一节最后一种求逆方法,正是目前各种激光衍射微粒度分析仪的基础,其关键问题在于测定 N 个环内的散射光功率 I_{ν} 。通常有以下几种测量方法:

1. 用线性探测列阵 (linear solid-state de-

ector array) 测量谱面的光强分布 $I(u, v)$.

2. 用环形探测器 (annular ring detector array) 直接测量 $I(\rho)$ 即 $I(\theta)$.

3. 用一个在谱面上扫描的针孔光阑及聚光镜-光电倍增管系统探测谱面上的光强分布.

目前用得最多的还是环形探测器, 常用的有 31 环及 16 环探测器(见图 3), 这是一种固体光电器件, 环的中心开孔透过零级, 或设置零级谱的探测环. 由于零级谱功率很高, 常常会影晌内环的探测精度, 因此常用的还是开孔的探测器.

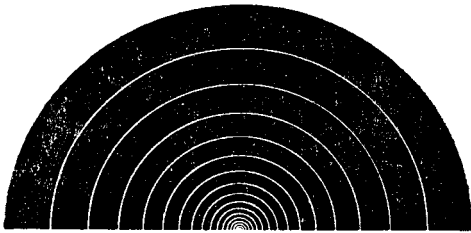


图 3 环形探测器

利用环形探测器, 可以直接测到 N 个值 I_ν ($\nu = 1, 2, \dots, N$), 经过计算后就可以得到分布参数 $n(\alpha_\mu)$ ($\mu = 1, 2, \dots, N$).

光探测器本身不可能做得均匀一致, 加上准直光束与系统光轴不同轴误差、光学零件的疵病、灰尘等引起的背景和噪声, 形成了系统的误差, 在实测时必须进行校正和标定.

一种行之有效的标定方案^[3], 是用计算机控制的绘图仪按预先设计的程序画出随机分布的斑点, 斑点的尺寸分布模拟某种实际的分布函数, 然后用照相制版的方法在玻璃基底上制

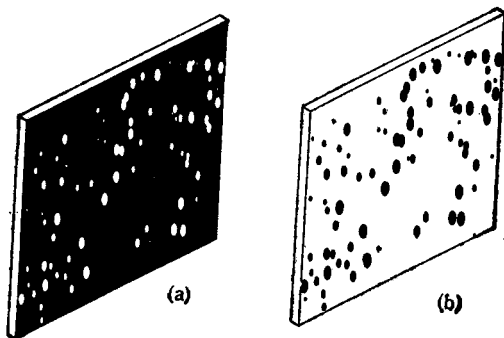


图 4 暗场 (a) 和亮场 (b) 标定板

造标定板. 常用的标定板分为亮场和暗场两种(见图 4).

常用的半经验分布函数为 Rosin-Rammler 分布:

$$R = \exp\left[-\left(\frac{D}{\bar{x}}\right)^N\right], \quad (32)$$

式中 R 表示直径大于 D 的微粒占微粒总体积的比值, \bar{x} 为平均直径, N 是一个表征微粒一致性的参数, $N \rightarrow \infty$ 时, 表示为单一粒子.

文献 [3] 中介绍的一种典型的标定板上共有 10,491 个圆斑, 分布在直径为 8mm 的范围内, 其直径从 $5.2 \mu\text{m}$ 到 $92.7 \mu\text{m}$, 包括 23 种不同的尺寸.

将标定板作为样品, 用 LDPSA 系统进行测量, 然后将实测数据与样品的设计数据进行对比, 就可以扣除背景噪声, 对系统进行标定.

这种的标定方法简便可靠, 即使将探测器误差、计算误差及标定板本身的离散性考虑入内, 标定板的最大偏差也不会超过 10%.

四、激光衍射微粒度分析仪及测量实例

激光衍射微粒度分析仪的光学系统如图 5 所示. 从激光器 LA 辐射的激光束经扩束镜 K、空间滤波器 PH、准直镜 L_0 后形成直径为 8mm 左右的准直光束, 照射样品池 S, 从 S 出射的散射光经傅里叶透镜 L_1 聚焦在 L_1 的后焦面上, 形成散射光的功率谱, 由环形探测器 D 测量. 直接透射光形成功率谱的零频成分, 穿过 D 中心的小孔, 由光电管 D_1 探测, 用以补偿由激光器光强的漂移引起的误差. 从 D 的 N

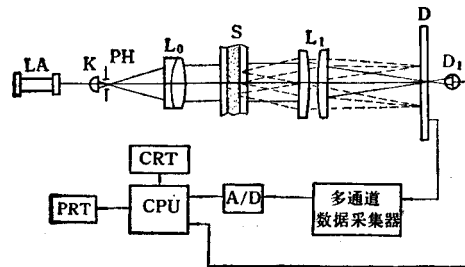


图 5 激光衍射微粒度分析仪光学系统

个环得到的光电信号经过多通道数据采集器采集,经 A/D 转换后送入微处理机 CPU 进行数据处理,结果由 CRT 显示,或通过打印机 PRT 打印输出。

图 6 表示用 LDPSA 系统测量标定板的结果,标定板近似满足 Rosin-Rammler 分布, $\bar{x}=53.20 \mu\text{m}$, $N=3.18$ 。图中纵坐标 R 的意义如

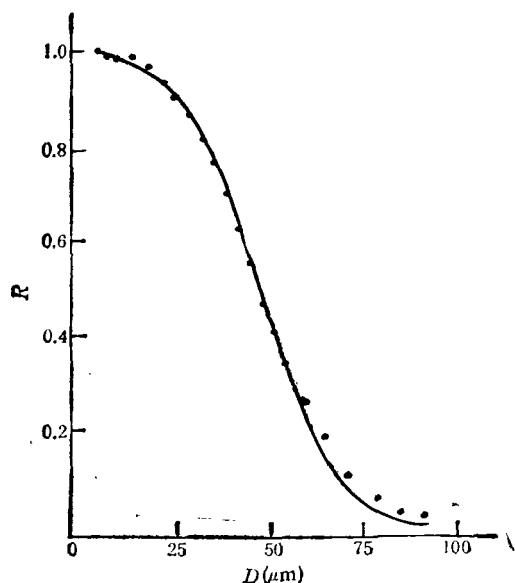


图 6 标定板微粒度分布的最佳逼近曲线(实线)与测量值

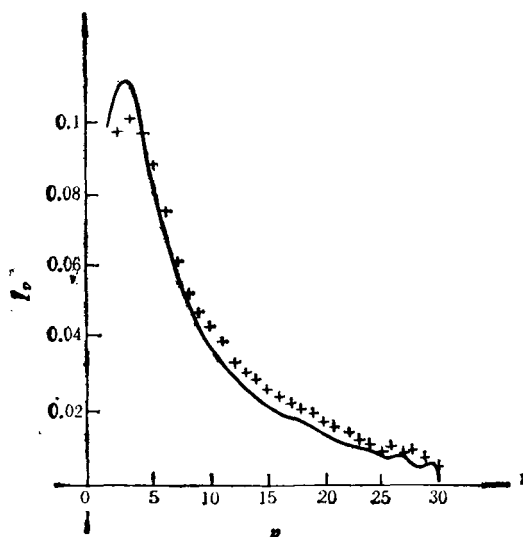


图 7 归一化的散射光能量曲线 $I_s-\nu$, 变换透镜焦距 $f=63\text{mm}$, 实测数据为 10 次测量平均值
+ 为测量值; — 为计算值

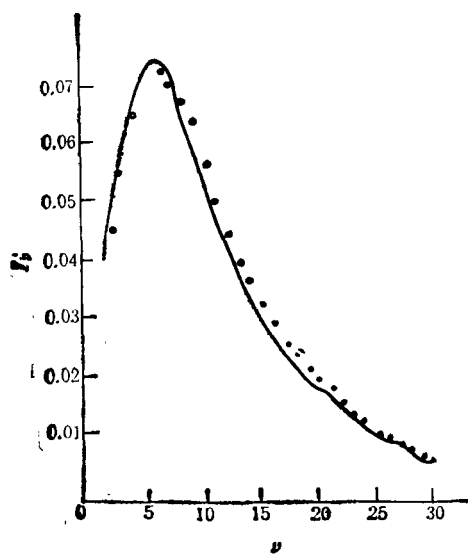


图 8
(同图 7, $f=100\text{mm}$)

上所述,横坐标为微粒直径 D 。实线表示对样品微粒度分布按参数 N 和 \bar{x} 的最佳逼近。由图可见实测值与计算曲线符合得相当好。

图 7 和图 8 表示用焦距为 63 mm 和 100 mm 的傅里叶透镜测定的同一样品的 I_s [探测器各环测得的散射光功率,参见(24)式]与计算值的对比,图中实线为计算值的样条拟合曲线。两者符合得很好。

- [1] B. J. Thompson, *Liquid Particle Size Measurements Techniques*, America Society for Testing and Materials, (1984), 111.
- [2] J. W. Goodman, *Introduction to Fourier Optics*, McGraw-Hill Book Company, (1968), 610.
- [3] E. D. Hirlleman, *Opt. Eng.* 23 (1984), 610.
- [4] E. C. Titchmarsh, *Proc. London Math. Soc.*, ed. *London Math. Soc.*, 23(1925), 2.
- [5] J. H. Chin et al., *J. Phys. Chem. Ithaca*, 5(1955), 841.
- [6] M. Bertero and E. R. Pike, *Optica Acta*, 30(1983), 1043.
- [7] J. G. McWhirter and E. R. Pike, *J. Phys. A*, 11 (1978), 1729.
- [8] F.W. 拜伦, R. W. 富勒, *物理学中的数学方法*, 科学出版社, (1982).