

关于小角前向散射激光测粒仪 准则数 X 的讨论

沈建琪 王乃宁

(上海理工大学物理教研室 上海 200093)

提要 在激光测粒仪的设计和数据处理过程中,都采用了无因次准则数 $X = 1.357$ 。之后,为了降低激光测粒仪的测量下限,经典的 Mie 散射理论在激光测粒仪的设计中得到了应用。讨论了在利用 Mie 光散射理论时,无因次准则数 X 的取值及其影响因素。

关键词 激光测粒仪,小角前向散射,FD 理论,Mie 散射理论,准则数 X

1 引 言

颗粒测量是颗粒测试技术中最重要、也是最基本的测量。为此,多年来人们发展了多种基于不同工作原理的测量方法和测量仪器。并在粉体工程中得到了应用^[1]。自 70 年代后期开始,基于夫朗和费衍射(FD)原理的激光测粒仪相继问世,这类仪器通过采集散射体(待测颗粒)在前向某个小角度范围内的散射光来得到颗粒的粒径分布信息,故又可称为小角前向散射激光测粒仪或 FD 式激光测粒仪。FD 激光测粒仪以其特有的优点得到了广泛应用,并在国际市场占主导地位^[2]。在 FD 式激光测粒仪中,采用了专门的由 31 个同心半圆环组成的阵列式光电探测元件或 CCD 探测器件,用于接收颗粒的散射光能分布。并在数据处理过程中采用 Swinbank 和 Hirleman 所给出的一个十分重要的无因次准则数^[3]

$$X = \alpha \sin \theta \cong \alpha \tan \theta = \alpha(S/f) = 1.357 \quad (1)$$

来确定待测颗粒系的粒径分档,式中粒径无因次参数 $\alpha = \pi d/\lambda$,其中 d 为球形颗粒的直径, λ 为激光波长; θ 为散射角; S 为光电探测元件任一环的径向尺寸(半径); f 为傅里叶接收透镜的焦距。

众所周知,颗粒对入射光的散射服从 Maxwell 电磁场理论的严格米氏(Mie)解,FD 式激光测粒仪所采用的夫朗和费衍射理论只是颗粒参数满足条件 $\alpha = \pi d/\lambda \gg 1$, $m \gg 1$ 和 $2\alpha|m-1| \gg 1$ (其中 m 为颗粒折射率)时经典米氏散射理论的一种近似^[4,5]。在颗粒测量实践中不少学者提出了各自的适用准则,M. Kerker 认为 FD 理论适用于测量 $d > 4\lambda$ 的颗粒^[5],Van De Hulst 则建议在颗粒满足 $2\alpha|m-1| > 30$ 时才采用 FD 理论^[4]。由此可知,基于 FD 理论的小角前向散射激光测粒仪只适用于测量较大颗粒,在小粒径范围内难以保证其测量精度。然而,随着科学技术和生产工艺的日益进步和发展,近年来超细颗粒得到了越来越多的应用,为了满

足生产实践中提出的这一要求, 世界各仪器制造公司先后发展了基于经典 Mie 散射理论的小角前向散射激光测粒仪, 以降低其测量下限并提高小粒径范围内的测量精度^[6]。这就提出了一个新的问题, 即基于 FD 理论的无因次准则数 $X = 1.357$ 对于 Mie 理论是否仍为 1.357? 应是多少? 与哪些因素有关? 本文对此作一分析讨论。

2 理论分析

2.1 基于 FD 理论无因次准则数 $X = 1.357$ 的由来

根据 FD 理论, 单色平行光照射到直径为 d 的球形颗粒上的散射光强为

$$I(\theta, d) = \frac{\pi^2 d^4 I_0}{16 f^2 \lambda^2} \left| \frac{2J_1(X)}{X} \right|^2 \quad (2)$$

式中 $J_1(X)$ 是关于 X 的一阶 Bessel 函数, I_0 为入射光强度, 参数 X 由式(1) 给出。在光电探测元件上半径为 S 的半圆内的散射光能量为

$$L(X) = \int_0^\pi d\varphi \int_0^{\theta} I(\theta, d) \sin\theta d\theta = \frac{\pi d^2}{4} I_0 [1 - J_0^2(X) - J_1^2(X)] \quad (3)$$

式中 $\theta = \tan^{-1}(S/f)$, $J_0(X)$ 是关于 X 的零阶 Bessel 函数。由于散射光强随散射角变化, 因此光能同样随散射角或光电探测元件的径向尺寸 S 变化。根据(1) 式, 光电探测元件的径向尺寸 S 可以近似认为与参数 X 成正比。则在单位 X 区域内(即单位散射角或单位径向尺寸区域内)的散射光能或散射光能密度为

$$\frac{dL(X)}{dX} = \frac{\pi d^2}{4} I_0 \frac{J_1^2(X)}{X} \quad (4)$$

对于直径为 d 的球形颗粒, 在光电探测元件上某径向尺寸 S 处散射光能密度存在最大值, 所对应的 X 可由 $d^2 L(X)/dX^2 = 0$ 求得。它最敏感地反映了引起该光能分布的颗粒粒径大小。可得 $3J_2(X) = J_0(X)$ 。其中 $J_2(X)$ 是关于 X 的二阶 Bessel 函数。求解可得 $X = 1.357$, 这就是在 FD 式激光测粒仪中得到采用的无因次准则数的数值。

2.2 基于 Mie 理论的无因次准则数 X

根据 Mie 散射理论, 直径为 d 的球形颗粒, 在波长为 λ 的单色平行光照射下, 散射光的强度分布是颗粒粒径无因次参数 α 和颗粒折射率 m 的函数。当入射光为自然光时, 散射光强由下式给出

$$I(\theta) = \frac{\lambda^2}{8\pi^2 r^2} I_0 (i_1 + i_2) \quad (5)$$

式中 r 为散射颗粒到观测点之间的距离, i_1 和 i_2 为强度函数。可通过编程由计算机完成^[7]。比较(2) 式及(5) 式后不难看出, FD 理论和经典 Mie 散射理论对散射光强的表示式相差很大。理论分析指出: 对于较大的颗粒, 在小散射角情况下二者有相近的计算结果; 而对于较小的颗粒, 二者相差很大。这就是为什么在小粒径范围内采用经典 Mie 散射理论的根本原因。在基于 Mie 散射理论的小角前向散射激光测粒仪中, 无因次参数 X 的取值可以上述相同方法求得。按(5) 式, 光电探测元件上半径为 S 的半圆内的散射光能为

$$L(X) = \iint \frac{\lambda^2 I_0}{8\pi^2 r^2} (i_1 + i_2) r^2 \sin\theta d\theta d\varphi = \frac{\lambda^2 I_0}{8\pi\alpha} \int (i_1 + i_2) \tan\theta dX \quad (6)$$

进一步得到单位 X 区域内(即单位散射角或单位径向尺寸区域内)的散射光能或散射光能密

度

$$\frac{dL(X)}{dX} = \frac{\lambda^2}{8\pi\alpha} I_0(i_1 + i_2) \tan\theta \tag{7}$$

同理, 由 $d^2L(X)/dX^2 = 0$ 可得 $2(i_1 + i_2) + \sin(2\theta) \frac{d}{d\theta}(i_1 + i_2) = 0$ 。该式确定了 Mie 散射理论关于无因次参数为 α 的颗粒的散射光能密度的最大值所对应的散射角 θ , 通过公式(1)中 $X = \alpha \sin\theta$ 可求得相应的无因次准则数 X 。显然, Mie 散射时小角前向激光测粒仪的无因次准则数 X 的数值不再是常数 1.357, 而随颗粒折射率 m 和粒径参数 α 的不同而改变。

3 基于 Mie 散射理论的无因次准则数 X 的数值

为了研究 m 和 α 对准则数 X 的影响及其变化规律, 本文进行了详细的数值计算, 下面分别进行讨论。

3.1 无因次准则数 X 与粒径参数 α 的关系

为了详细揭示粒径参数 α 对无因次准则数 X 的影响, 数值计算时 α 在较大的范围内变化 ($\alpha = 5 \sim 1000$)。作为示例, 图 1 给出了相应的 $X-\alpha$ 曲线。可以明显看出: Mie 散射时, 无因次准则数 X 已不再是一常数, 除个别情况外, 其值均小于 1.357; 粒径越小, 偏离 1.357 越多。此外, $X-\alpha$ 曲线呈振荡型; 除主振荡外, 还存在细微的“次振荡”, 粒径较小时, 振荡幅度较大。随着粒径的增大, 曲线的振荡幅度减小而逐渐接近于 1.357。这充分说明: 只有当粒径较大时 FD 理论与经典 Mie 散射理论的无因次准则数 X 才比较接近。当测量较小的球形颗粒时, 用基于 FD 理论 $X = 1.357$ 充当准则数会导致测量误差, 理论上也不够严密。

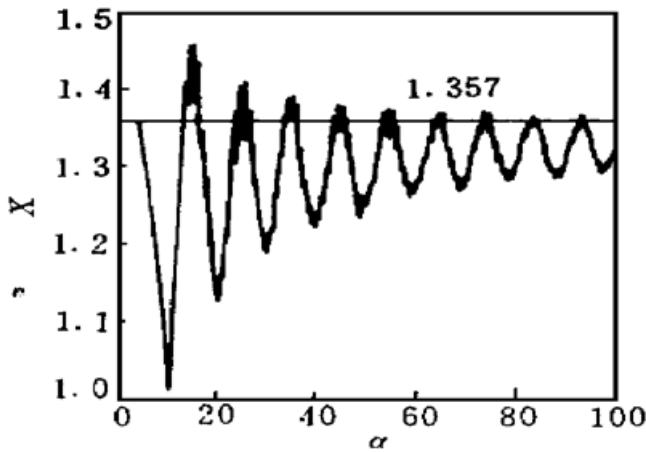


图 1 折射率为 $m = 1.33 - i0.0$ 非吸收颗粒的 $X-\alpha$ 曲线

Fig. 1 $X-\alpha$ curve for non-absorptive particles $m = 1.33 - i0.0$

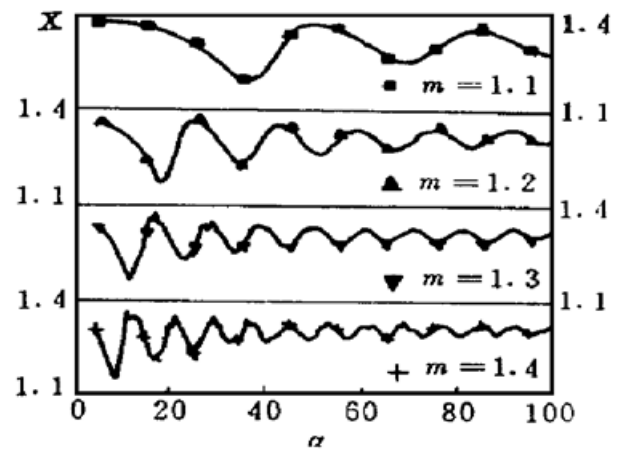


图 2 不同折射率的非吸收颗粒的 $X-\alpha$ 曲线
Fig. 2 $X-\alpha$ curve for non-absorptive particles of different refractive indexes

3.2 无因次准则数 X 与颗粒复折射率 m 的关系

当颗粒受到光的辐射时, 除散射外还可能伴随着吸收。散射和吸收分别与颗粒的物理性质有关。前者与颗粒的光学特性——折射系数 n 相关, 而后者则与颗粒的吸收性——吸收系数 η 相关。为此, 在 Mie 散射理论中, 常把颗粒的折射率表示为一复数 $m = n - i\eta$, 称为复折射率。对于非吸收性颗粒(或非耗散性颗粒), 吸收系数为 0, 复折射率为一实数; 而对吸收性颗粒

(或耗散性颗粒), 吸收系数不为 0, 复折射率为一复数。下面区别不同情况分别进行讨论。

3.2.1 非吸收性颗粒与无因次参数 X 的关系

图 2 给出了非吸收性颗粒的 $X-\alpha$ 曲线。复折射率分别为 $m = 1.1, m = 1.2, m = 1.3$ 和 $m = 1.4$ 。可以明显看出: 各曲线均呈振荡型, 但其振荡幅度及振荡频率并不相同。折射系数较大时, X 的振荡频率较大, 随着 α 的增大, 其 X 值很快趋近于 1.357; 反之, 折射系数较小时, X 的振荡频率较小, 随着 α 的增大 X 较慢趋近于 1.357。

3.2.2 吸收性颗粒与无因次准则数 X 的关系

图 3(a) 给出了关于吸收性颗粒的 $X-\alpha$ 曲线, 对应不同复折射率 $m = 1.33 - i0.05, m = 1.33 - i0.1$ 和 $m = 1.33 - i0.5$, 它们的吸收系数不同, 可以看出: 对吸收性颗粒, 曲线的振荡随粒径参数的增大迅速减弱。当吸收系数较大时, 曲线的振荡甚至完全消失, 呈单调增加且迅速地趋近于 1.357。曲线的另一个显著特点是: 当粒径参数 α 大于某一数值后(本例中 $\alpha > 30$, 相当于粒径 $D > 6 \mu\text{m}$), 尽管吸收系数相差达 10 倍(0.05 与 0.5), 但各曲线的走向完全一致, 无因次准则数 X 有着完全相等的数值。对其它吸收性颗粒所进行的大量分析计算给出了与上类似的结论。

图 3(b) 给出了颗粒的吸收系数(折射率虚部)相同(0.5)而折射系数(折射率实部)相差 2.7 倍(3.60 与 1.33)的 $X-\alpha$ 曲线, 由于吸收系数较大, 各曲线均呈单调增大; 而折射系数的不同使准则数 X 的数值相差不超过 2%。这表明对吸收性颗粒, 无因次准则数 X 的振荡特性主要取决于复折射率的虚部。

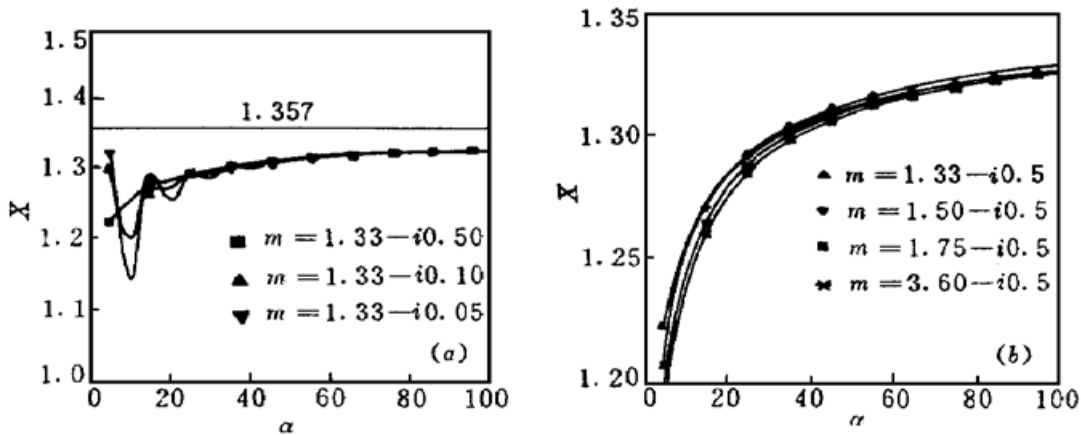


图 3 不同吸收系数 (a) 和不同散射系数 (b) 的吸收性颗粒的 $X-\alpha$ 曲线

Fig. 3 $X-\alpha$ curve for absorptive particles of different absorptive coefficients (a) and different scattering coefficients (b)

4 无因次准则数 X 的近似式

为了给出无因次准则数 X 的近似计算式, 先对振荡曲线 $X-\alpha$ 进行光滑化处理, 再用回归方法以平均中心线表征之。经以上处理后, 给出无因次准则数 X 的近似计算式为

$$X = 1.357 [1 - \exp(A - B\alpha^{0.0625})] \quad (8)$$

式中 A, B 为拟合系数, 与折射率实部 n 有关。由于对 X 进行了光滑化处理和平均中心线回归, 相当于折射率虚部取某个不为零的定值(如 0.5), 拟合系数 A, B 与折射率虚部的关系固定。当折射率实部 n 值在 $[1.1, 1.75]$ 范围内时,

$$A = -3.813n^2 + 13.31n - 5.1420 \quad (9)$$

$$B = -2.709n^2 + 9.401n - 0.4673 \quad (10)$$

折射率实部值 n 在 $[1.75, 4.00]$ 范围内时

$$A = -0.5268n^2 + 1.949n + 4.700 \quad (11)$$

$$B = -0.3459n^2 + 1.241n + 6.599 \quad (12)$$

图 4 中是折射率为 $m = 1.33 - i0.5$, $m = 1.33 - i0.1$ 和 $m = 1.33 - i0.05$ 的球形颗粒按 Mie 理论和由近似式计算得到的 X - α 曲线。对吸收性颗粒, 二者完全一致; 对非吸收性颗粒, 当 $\alpha > 20$ 后, 二者吻合良好。

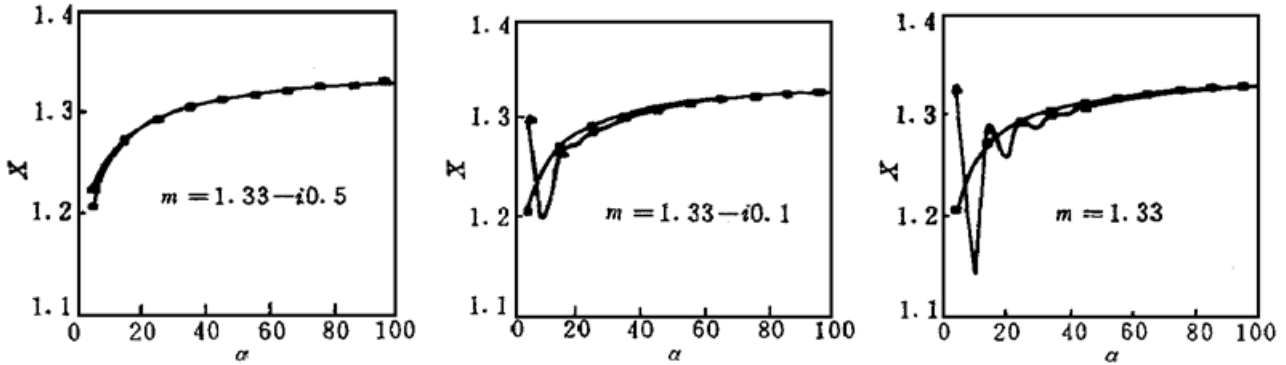


图 4 近似公式计算和理论精确计算 X 值的比较。■: 近似值; ▲: Mie 理论精确计算值

Fig. 4 Comparison of approximate values and theoretically calculated values of X

■: approximate value; ▲: theoretically calculated value from Mie theory

图 4 近似公式计算和理论精确计算 X 值的比较。□: 近似值; ▲: Mie 理论精确计算值

Fig. 4 Comparison of approximate values and theoretically calculated values of X

□: approximate value; ▲: theoretically calculated value from Mie theory

5 结 论

1) 测量较大颗粒时, 小角前向散射激光测粒仪以采用夫朗和费衍射理论为主, 无因次准则数 $X = 1.357$ 。

2) 颗粒较小时, 小角前向散射激光测粒仪应采用经典的 Mie 散射理论, X 不再是常数 1.357, 而与颗粒的粒径参数 α 和复折射率 m 有关。

3) Mie 散射理论时 X 在大部分情况下小于 1.357, α 较小时, X 值偏离 1.357 较多; α 增大时, X 值趋近于 1.357。

4) 非吸收性颗粒的 X 随 α 的变化而振荡, 折射系数越大, 振荡频度越高, 且很快趋向于 1.357; 反之折射系数越小, 振荡频度越低, 趋向于 1.357 的速度较慢。

5) 吸收性颗粒的 X 的振荡性与吸收系数有关。吸收较弱, α 较小时 X 值有轻微的振荡, α 较大时这种振荡现象消失; 吸收较强, X 随 α 的振荡现象消失, 且随 α 值单调增加且趋近于 1.357。

参 考 文 献

- 1 T. Allen. Particle Size Measurement, 4th. ed, Chapman and Hall, 1990
- 2 H. G. Barth, R. B. Flippen. Particle size analysis. *Analytical Chemistry*, 1995, **67**(12): 257R~ 272R

- 3 E. D. Hirleman, V. Oechsle, N. A. Chigier. Response characteristics of laser diffraction particle size analysis: optical sample volume extent and lens effects. *Opt. Eng.*, 1984, **23**(5): 610~ 619
- 4 Van de Hulst H. C. . Light Scattering by Small Particles. London: Chapman and Hall, 1957. 132~ 134
- 5 Kerker M. . The Scattering of Light and Other Electromagnetic Radiation. New York: Academic Press, 1969. 97~ 139
- 6 Wang Naining, Zhang Hongjian. A study of the accuracy of optical fraunhofer diffraction sizer analyzer. *Particulate Science and Technology*, 1987, **4**(4): 403~ 408
- 7 Gu Guanliang, Wang Naining. The method of calculation of different physical quantities about scattering by small particles. *J. of Shanghai Institute of Mechanical Engineering* (上海机械学院学报), 1984 (4): 21~ 23 (in Chinese)

A Discussion on the Criterion Number X of a Small-angle Forward Scattering Laser Particle Sizer

Shen Jianqi Wang Naining

(*University of Shanghai for Science and Technology, Shanghai 200093*)

Abstract The criterion number X which equals 1.357 is adopted in the design and data processing of the laser FD-based particle sizes. The classical Mie light scattering theory is used in the design of the laser particle sizers to extend their lower size limit. According to the theory, the criterion number X and the factors influencing X are discussed in detail.

Key words laser particle sizer, small-angle forward scattering, FD theory, Mie scattering theory, criterion number X