

# 纳米流体激光自混频功率谱及其计算

陈先庆 沈建琪 王华睿

(上海理工大学理学院, 上海 200093)

**摘要** 激光自混频技术可用于纳米颗粒和纳米流体的探测。在纳米流体自混频信号自相关函数的基础上,理论推导了功率谱函数的表达式。结果表明,纳米流体的激光自混频信号功率谱是洛伦兹线型和高斯线型的卷积,即佛赫特(Voigt)线型。通过数值计算研究了各种典型情况下激光自混频信号功率谱的频谱特征,颗粒定向运动速度决定了多普勒频移和高斯线宽,颗粒粒度决定了洛伦兹线型的宽度,颗粒粒度和速度与功率谱之间的对应关系为纳米流体的测量提供了理论基础。

**关键词** 散射;颗粒测试;激光自混频;功率谱;佛赫特函数

**中图分类号** O436; O439 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/AOS201131.1029003

## Power Spectrum of Self-Mixing Interference Feedback from a Nano-Fluid and Its Calculation

Chen Xianqing Shen Jianqi Wang Huarui

(College of Science, University of Shanghai for Science and Technology, Shanghai 200093, China)

**Abstract** The laser diode self-mixing interferometry can be employed to measure nano-particles and nano-fluids. The analytical expression of power density of the feedback self-mixing signal from a flowing Brownian motion system is obtained theoretically. It reveals that the power density is of the Voigt profile, which is a convolution of the Lorentzian and Gaussian line profiles. The characteristics of the self-mixing spectrum are studied numerically. It is found that the Doppler shift and the Gaussian term in the power density are determined by flow velocity while the Lorentzian term is determined by the Brownian motion of particles (i. e., the particle size). The study provides fundamentals for the measurement of nano-fluids.

**Key words** scattering; particle-size measurement; laser self-mixing interferometry; power spectrum; Voigt function

**OCIS codes** 290.0290; 140.0140; 300.0300

## 1 引 言

最近几年研究人员将自混频相干技术引入纳米颗粒测试技术中,发展了一种基于自混频相干技术的动态光散射纳米颗粒测量方法<sup>[1~6]</sup>。与常规的动态散射光测粒技术不同<sup>[7,8]</sup>,这种方法将颗粒的散射光信号送入激光器的谐振腔放大并与原始光相干得到混频信号(称为自混频相干信号或自混频信号)。自混频信号的频谱特征反映了颗粒作布朗运动的运动特征,从而间接地反映了颗粒的粒度信息。因此,通过对自混频信号进行分析可得到纳米颗粒

的粒度及其分布。

自混频相干方法也可以应用于纳米流体的测量。在纳米流体中,颗粒同时作布朗运动和定向运动。文献[9]基于Lang-Kobayashi速率方程,从理论上得到了纳米流体自混频信号的时间相关函数表达式。自相关函数的处理通常有两种方式:1)先在时间域上采集信号序列,然后由计算机进行自相关运算,这种处理方式比较费时;2)是采用电子相关器,处理速度快,然而成本较高。本文在文献[9]的基础上给出纳米流体的自混频信号的功率谱表达

**收稿日期**: 2011-03-14; **收到修改稿日期**: 2011-05-04

**基金项目**: 国家自然科学基金(50876069)和上海市科委科技支撑计划(10540501000)资助课题。

**作者简介**: 陈先庆(1985—),男,硕士研究生,主要从事光学测量技术方面的研究。E-mail: xqchensh@yahoo.cn

**导师简介**: 沈建琪(1965—),男,博士,教授,主要从事光学测试技术方面的研究。E-mail: jqshenk@163.com

式,并对其谱线特征进行分析讨论。

## 2 功率谱函数

如图 1 所示,从激光二极管(LD)发出的光束经凸透镜会聚形成一束会聚的高斯光束,测量区位于会聚高斯光束的束腰中心,颗粒定向流动方向与光

束传播方向成一倾斜角度。在会聚高斯光束照射下,位于测量区中的颗粒发出散射光。后向散射光通过凸透镜到达激光器的出光口并进入激光介质,对激光器内部的本征光产生反馈扰动(即自混频现象),自混频信号通过激光器后端的光电探测器 PD 接收。

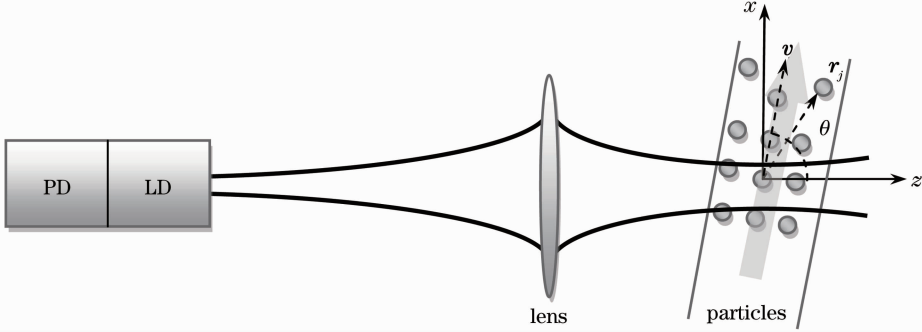


图 1 纳米流体自混频测量原理示意图

Fig. 1 Schematic diagram of the laser diode self-mixing interferometry for nano-fluid

基于 Lang-Kobayashi 速率方程,文献[9]给出了纳米流体自混频信号的时间相关函数表达式:

$$R(\tau) = P_0^2 \left\{ 1 + \underbrace{2m^2 |C_{\text{Mie}}|^2 \langle N \rangle}_{(A)} \underbrace{\cos(\mathbf{q} \cdot \mathbf{v} |\tau|)}_{(B)} \underbrace{\exp(-D q^2 \tau)}_{(C)} \underbrace{\exp\left[-\frac{(v_x^2 + v_y^2) \tau^2}{2\omega_0^2}\right]}_{(D)} \right\}. \quad (1)$$

在(1)式的推导过程中,假定了颗粒是单分散系,所有颗粒的定向运动速度  $\mathbf{v}$  一致, $\tau$  是自相关延迟时间, $\mathbf{q}$  是散射波矢矢量,对于图 1 所示的情况散射波矢的方向沿  $z$  轴正向,大小为  $q=4\pi/\lambda$ (其中  $\lambda$  是入射光波长), $v_x, v_y$  是颗粒定向运动速度  $\mathbf{v}$  在  $x$  和  $y$  方向的分量, $\omega_0$  是高斯光束束腰半径。(1)式中标注的(A)部分表示反馈强度因子,(B)部分表示颗粒定向运动引起的多普勒频移效应,其大小为  $\mathbf{q} \cdot \mathbf{v} = qv_z = qv \cos \theta$ (其中  $\theta$  是  $\mathbf{q}$  和  $\mathbf{v}$  的夹角,如图 1 所示)。(C)部分表示颗粒布朗运动的特征,其中扩散系数  $D(D=k_B T/3\pi\eta d)$  与颗粒的粒径  $d$ 、粘度系数  $\eta$  和温度  $T$  有关。颗粒越大扩散系数  $D$  越小,自相关函数衰减越慢,反之颗粒越小则扩散系数  $D$  越大,自相关函数衰减越快。(D)部分表示当颗粒横向通过高斯光束时,由于光束强度分布导致的散射光起伏信号,反映了颗粒定向运动速度的横向分量  $v_x$  和  $v_y$ 。颗粒横向运动速度越快, $(v_x^2 + v_y^2)/2\omega_0^2$  越大,则自相关函数衰减越快。可以看出,布朗运动和定向运动在自相关函数中的形式不同,颗粒布朗运动导致自相关函数随时间呈指数形式衰减,而颗粒定向运动导致自相关函数随时间平方的指数形式衰

减。

对(1)式做傅里叶变换即可得到功率谱密度函数表达式:

$$S(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} R(\tau) \exp(-i\omega \tau) d\tau, \quad (2)$$

式中  $\omega=2\pi f$  是角频率( $f$  是频率)。

将功率谱函数写成如下形式:

$$S(\omega) = P_0^2 2\pi \delta(\omega) + M P_0(\omega), \quad (3)$$

式中

$$M = 2m^2 P_0^2 |C_{\text{Mie}}|^2 \langle N \rangle, \quad (4)$$

$$Q = \frac{v_x^2 + v_y^2}{2\omega_0^2}, \quad (5)$$

$$P_0(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \cos(\mathbf{q} \cdot \mathbf{v} \tau) \exp(-D q^2 |\tau|) \times \exp(-Q \tau^2) \exp(-i\omega \tau) d\tau. \quad (6)$$

可以看出,自相关函数表达式[(1)式]中第一项的傅里叶变换是一个狄拉克  $\delta$  函数,仅反映了信号输出的平均强度,在纳米流体测量中不起作用故不予考虑。对(6)式中的  $\cos(\mathbf{q} \cdot \mathbf{v} \tau) \exp(-D q^2 |\tau|)$  和  $\exp(-Q \tau^2)$  分别做傅里叶变换:

$$I_L(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \cos(\mathbf{q} \cdot \mathbf{v}\tau) \exp(-Dq^2|\tau|) \exp(-i\omega\tau) d\tau = \frac{Dq^2}{(Dq^2)^2 + (\omega - \mathbf{q} \cdot \mathbf{v})^2} + \frac{Dq^2}{(Dq^2)^2 + (\omega + \mathbf{q} \cdot \mathbf{v})^2}, \quad (7)$$

$$G(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \exp(-Q\tau^2) \exp(-i\omega\tau) d\tau = \sqrt{\frac{\pi}{Q}} \exp\left(-\frac{\omega^2}{4Q}\right). \quad (8)$$

容易看出  $I_L(\omega)$  和  $G(\omega)$  分别为洛伦兹函数和高斯函数。根据卷积定理可知,两个函数之积的傅里叶变换就是两个函数各自傅里叶变换的卷积。因此得到

$$P_0(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} I_L(\omega - \omega') G(\omega') d\omega' = \sqrt{\frac{\pi}{Q}} \int_{-\infty}^{\infty} \left[ \frac{Dq^2}{(Dq^2)^2 + (\omega - \mathbf{q} \cdot \mathbf{v} - \omega')^2} + \frac{Dq^2}{(Dq^2)^2 + (\omega + \mathbf{q} \cdot \mathbf{v} - \omega')^2} \right] \exp\left(-\frac{\omega'^2}{4Q}\right) d\omega', \quad (9)$$

令  $\Gamma_L = 2Dq^2, \Gamma_G = \sqrt{Q}4(\ln 2)^{1/2}, t = \frac{\omega'}{2\sqrt{Q}}, x_{\mp} = \frac{\omega \mp \mathbf{q} \cdot \mathbf{v}}{2\sqrt{Q}}, y = \frac{\Gamma_L(\ln 2)^{1/2}}{\Gamma_G} = \frac{Dq^2}{2\sqrt{Q}}$ , 其中  $\Gamma_L$  和  $\Gamma_G$  分别为洛伦兹线型和高斯函数的半峰全宽,则上式简化为

$$P_0(\omega) = \sqrt{\frac{\pi}{Q}} \cdot \left[ \int_{-\infty}^{\infty} \frac{y}{y^2 + (x_- - t)^2} \exp(-t^2) dt + \int_{-\infty}^{\infty} \frac{y}{y^2 + (x_+ - t)^2} \exp(-t^2) dt \right]. \quad (10)$$

可见,在纳米流体中同时存在颗粒定向运动和布朗运动的情况下,自混频信号的功率谱函数第二项[即  $P_0(\omega)$  部分]是两个佛赫特(Voigt)函数<sup>[10,11]</sup>之和,它包含了颗粒粒度、粒度分布等信息。

为研究纳米流体自混频信号的功率谱特征,需要数值计算 Voigt 函数。关于 Voigt 函数的数值计算方法,已有很多文献可供参考<sup>[10~12]</sup>。

### 3 自混频信号功率谱特征

在以下讨论中,自相关函数和功率谱通过对(1)式(取第二项并忽略系数)和(10)式进行数值计算得

到。当纳米流体通过高斯光束束腰位置时,定向运动速度存在纵向(沿  $z$  轴)分量  $v_z$  和横向分量  $v_x, v_y$ ,且同时做布朗运动。则在自相关函数中同时存在多普勒频移项、布朗运动项和定向运动高斯项,功率谱为 Voigt 线型,如图 2 所示。当  $\mathbf{q} \cdot \mathbf{v} = 2 \times 10^4 \text{ s}^{-1}$  时,功率谱峰值出现在  $f = 3.18 \text{ kHz}$  处。根据(10)式可知,  $\mathbf{q} \cdot \mathbf{v}$  与多普勒频移  $f$  之间满足正比关系

$$f = \frac{\mathbf{q} \cdot \mathbf{v}}{2\pi} = \frac{2v_z}{\lambda}. \quad (11)$$

因此,只要知道入射光波长,即可从多普勒频移得到流体定向运动速度在  $z$  轴上的分量。

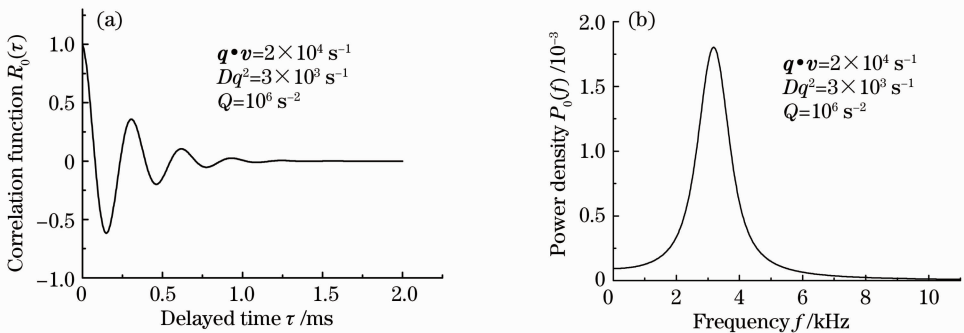


图 2 纳米流体自混频信号的自相关曲线和功率谱曲线

Fig. 2 Autocorrelation and power density of the self-mixing signals for the nanofluid

当束腰很大(或者颗粒定向运动速度的横向分量很小)时,自相关函数中高斯项缺失。此时,自相关函数是指数衰减的振荡曲线,而功率谱是存在频率偏移的洛伦兹线型,如图 3 所示。其峰值在  $f =$

$3.18 \text{ kHz}$ ,与  $\mathbf{q} \cdot \mathbf{v} = 2 \times 10^4 \text{ s}^{-1}$  对应。峰值频率对应了纳米流体定向运动速度,洛伦兹线宽对应了布朗运动速度。因此,从功率谱中可同时获得纳米流体定向运动速度和颗粒粒度信息。

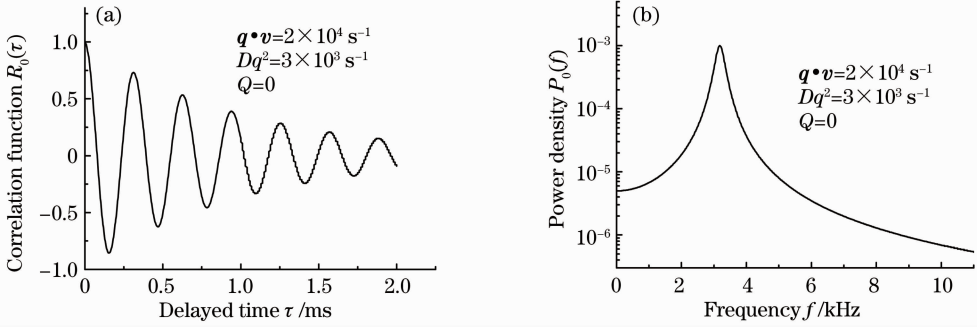


图 3 高斯项消失时的自相关曲线和功率谱曲线

Fig. 3 Autocorrelation and power density in the absence of the Gaussian profile

当颗粒粒度比较大、布朗运动可忽略时,自相关函数中布朗运动项(洛伦兹项)缺失。此时,自相关函数是时间平方的指数衰减振荡曲线,功率谱曲线

是存在频率偏移的高斯线型(见图 4)。从功率谱中可获得流体定向运动速度信息。

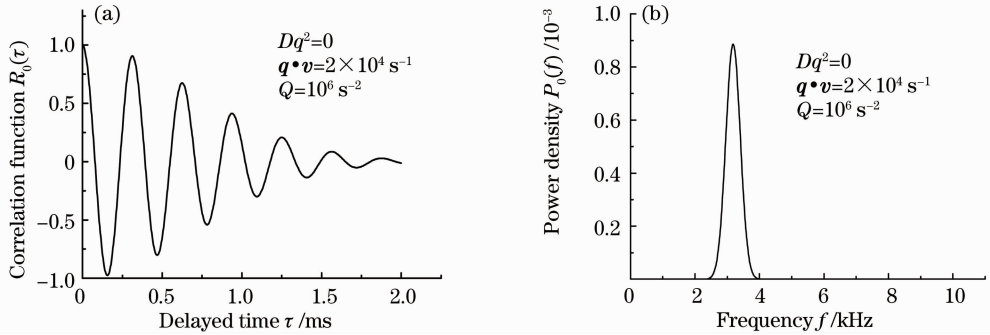


图 4 洛伦兹项消失时的自相关曲线和功率谱曲线

Fig. 4 Autocorrelation and power density in the absence of the Lorentzian profile

当纳米流体同时存在布朗运动和定向运动且定向运动速度  $v$  与  $q$  垂直(即  $\theta = 90^\circ, q \cdot v = 0$ )时,多普勒频移项缺失。此时,自相关曲线不再出现振荡,功率谱仍然是 Voigt 线型且分布在低频区域,无频移。图 5 给出了三个典型曲线,分别对应了(a)洛伦兹线型半峰全宽  $\Gamma_L$  远小于高斯线型半峰全宽  $\Gamma_G$  (■曲线,  $\Gamma_L = 0.01\Gamma_G$ ), (b)  $\Gamma_L$  与  $\Gamma_G$  相当(●曲线,  $\Gamma_L = \Gamma_G$ ), (c)  $\Gamma_L$  远大于  $\Gamma_G$  (▲曲线,  $\Gamma_L = 100\Gamma_G$ )。可以看出:当  $\Gamma_L$  远小于  $\Gamma_G$  时,自相关曲线和功率谱曲

线以高斯项为主,在功率谱曲线上,当高斯项很小 ( $f \geq 1$  kHz)时才呈现出明显的洛伦兹线型;当  $\Gamma_L$  远大于  $\Gamma_G$  时,自相关曲线和功率谱曲线以布朗运动项为主,在功率谱曲线上高斯项几乎不可见(需要指出,当颗粒定向运动速度为零时,即使  $\theta \neq 90^\circ$  也仍然只有洛伦兹线型;当  $\Gamma_L$  与  $\Gamma_G$  很接近时,自相关曲线的形状与上述两种情况有明显差别,功率谱曲线则以布朗运动项为主。

图 6 给出了当  $Dq^2 = 10^3 \text{ s}^{-1}$  不变,颗粒定向运

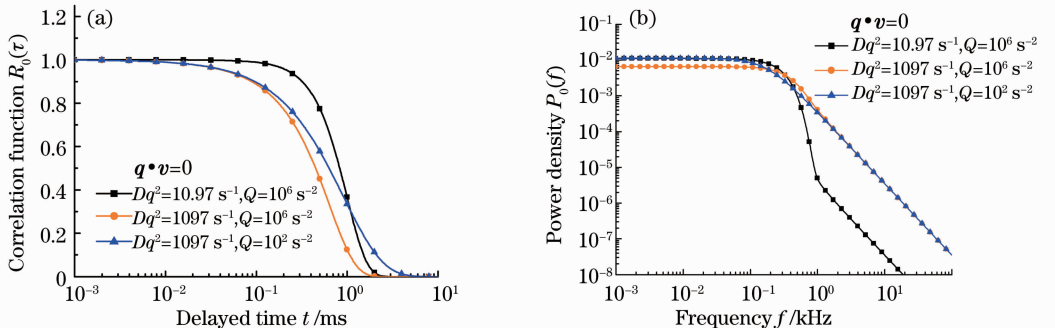


图 5 多普勒频移项消失时的自相关曲线和功率谱曲线

Fig. 5 Autocorrelation and power density in the absence of the Doppler effect

动速度逐步增大时的自相关函数和功率谱理论曲线。定向运动速度  $v$  的增大同时引起  $q \cdot v$  和  $Q$  的增大。假设纳米流体定向运动方向不变,但其  $v$  值分别

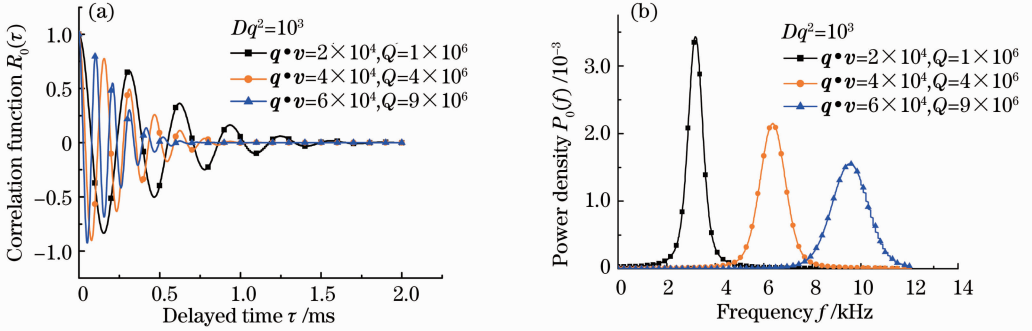


图 6 自相关曲线和功率谱曲线与流体定向运动速度  $v$  的关系

Fig. 6 Dependence of the autocorrelation and power density on the flowing velocity

可以看出,随着定向运动速度的增大,自相关曲线的振荡周期变小且衰减速率增大;功率谱曲线除了多普勒频率之外,还伴随着线型的变化。定向运动速度的增大导致线型宽度增大、峰值下降。这对定向运动速度较大的纳米流体测量是不利的。根据(5)式可以看出,增大光束束腰半径  $w_0$  可减小  $Q$  值,从而克服线型展宽和峰值降低的问题。

与图 6 对应,图 7 给出了  $q \cdot v = 2 \times 10^4 \text{ s}^{-1}$  和  $Q = 10^6 \text{ s}^{-2}$  不变、 $Dq^2$  分别为  $10^1$ ,  $10^2$  和  $10^3 \text{ s}^{-1}$  的自相关函数和功率谱理论曲线。 $Dq^2$  与颗粒粒径之间存在反比关系:

$$Dq^2 = \frac{16\pi k_B T}{3\gamma \lambda^2} \cdot \frac{1}{d}. \quad (12)$$

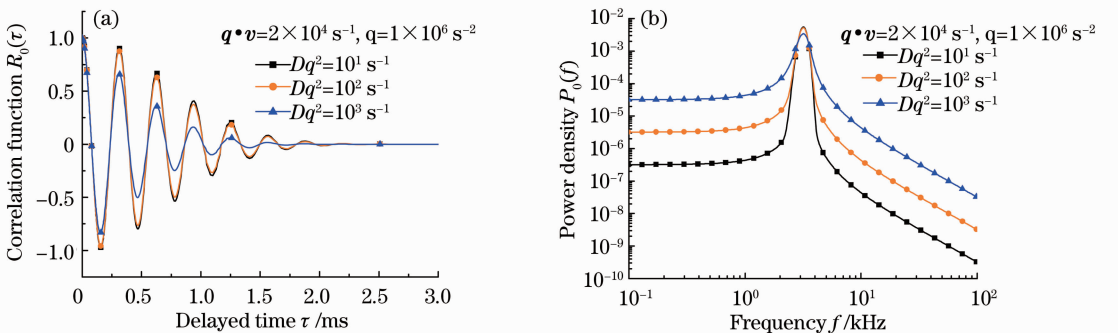


图 7 自相关曲线和对应的功率谱与  $Dq^2$  的关系

Fig. 7 Dependence of the autocorrelation and power density on the parameter  $Dq^2$

从多普勒频移(即峰值频率  $f = 3.18 \text{ kHz}$ )可得到  $q \cdot v = 2 \times 10^4 \text{ s}^{-1}$  的信息,进而根据  $q$  和  $v$  之间的夹角及  $q$  的大小得到纳米流体的定向运动速度。从功率谱线型的分布宽度可以得到  $Dq^2$  值,从而得到纳米颗粒的粒径参数。

此外,对于  $Q = 0$  的情况,可以是定向运动速度  $v$  与  $q$  垂直且光束束腰非常大,也可以是颗粒不做

增大到原来的 2 倍和 3 倍,根据(5)式和(11)式可知,  $q \cdot v$  值的变化与速度的变化情况一致,而  $Q$  则分别增大到原来的 4 倍和 9 倍。

$Dq^2$  的不同导致自相关函数的衰减速率变化,在  $Q = 10^6 \text{ s}^{-2}$  且  $Dq^2$  较小(小于  $10^2 \text{ s}^{-1}$ )时,自相关函数曲线的衰减速率取决于  $Q$  值,  $Dq^2$  的变化对自相关函数的影响并不明显;随着  $Dq^2$  的进一步增大,它在自相关函数中的作用增强,  $Dq^2$  与衰减速率的对应关系逐渐明显。在功率谱曲线上  $Dq^2$  的不同对应了洛伦兹线型的高度变化。由于颗粒定向运动不变,故频率偏离和高斯线型不发生任何变化。但随着洛伦兹线型的变化,其 Voigt 线型(即洛伦兹线型与高斯线型的卷积)发生明显变化。随着  $Dq^2$  的增大,Voigt 线型逐渐向洛伦兹线型过渡。

定向运动(仅有布朗运动),此时只可获得颗粒的粒度信息。对于  $Dq^2 = 0$  的情况,颗粒的扩散系数很小,适合于微米级(特别是数十微米)以上颗粒的定向运动速度测试。

## 4 结 论

在纳米流体自混频信号的自相关函数基础上,

推导得到了其功率谱函数表达式,并通过数值计算研究了各种典型情况下激光自混频信号功率谱的频谱特征。结果表明,当纳米流体定向运动方向与入射光传播方向垂直时,自混频信号的自相关函数单调衰减,自混频信号功率谱分布在低频区域;当纳米流体定向运动方向与入射光传播方向不垂直(倾斜)时,自混频信号的自相关函数振荡衰减,自混频信号功率谱产生多普勒频移,其大小与流体定向运动速度在光束传播方向上的分量成正比。自混频信号自相关函数的衰减速率取决于颗粒布朗运动和颗粒定向运动速度的横向分量,前者是相关时间的指数函数,后者是相关时间平方的指数函数。与之相对应,纳米流体的激光自混频信号功率谱是洛伦兹线型和高斯线型的卷积,即 Voigt 线型。洛伦兹线型宽度反映了颗粒布朗运动的特征,可从中获取颗粒的粒度信息;高斯线型的宽度反映了颗粒横向穿过光束截面的渡越时间,从中可获取定向运动速度信息。

纳米流体的激光自混频信号功率谱中包含了纳米流体定向运动和颗粒粒径的信息,通过选择合适的测量参数,可测量到不同的信息。例如,增大光束宽度可有效降低高斯线型宽度,这对测量纳米颗粒的粒径是有利的;使流体定向运动方向与光束传播方向成一夹角,通过多普勒频移可测量得到流速。本文结果为纳米流体激光自混频信号的实验研究提供了理论基础。

### 参 考 文 献

- 1 C. Zakian, M. Dickinson. Self-mixing interferometry with a laser diode: experimental considerations for sensing applications [J]. *J. Opt. A: Pure Appl. Opt.*, 2006, **8**(6): 555~568
- 2 C. Zakian, M. Dickinson, T. King. Dynamic light scattering by using self-mixing interferometry with a laser diode [J]. *Appl.*

- Opt.*, 2006, **45**(10): 2240~2245
- 3 C. Zakian, M. Dickinson, T. King. Particle-sizing and flow measurement using self-mixing interferometry with a laser diode [J]. *J. Opt. A: Pure Appl. Opt.*, 2005, **7**(6): S445~S452
- 4 S. Sudo, Y. Miyasaka, K. Otsuka. Quick and easy measurement of particle size of Brownian particles and plankton in water using a self-mixing laser [J]. *Opt. Express*, 2006, **14**(3): 1044~1054
- 5 Huarui Wang, Jianqi Shen. Size measurement of nano-particles using self-mixing effect [J]. *Chin. Opt. Lett.*, 2008, **6**(11): 871~874
- 6 Wang Huarui, Shen Jianqi, Yu Haitao *et al.*. Inversion problem in submicron and nanometer particle sizing using laser self-mixing interferometry [J]. *Acta Optica Sinica*, 2008, **28**(12): 2335~2343  
王华睿, 沈建琪, 于海涛等. 激光自混合干涉法亚微米及纳米颗粒测量中的反问题[J]. *光学学报*, 2008, **28**(12): 2335~2343
- 7 Xia Hui, Li Fushi, Chen Zhiquan *et al.*. Diffusion properties of Brownian particles in dense suspensions by low coherence dynamic light scattering [J]. *Acta Optica Sinica*, 2010, **30**(10): 3059~3063  
夏辉, 李富石, 陈智全等. 低相干动态光散射研究浓悬浮液中布朗运动粒子的扩散特性[J]. *光学学报*, 2010, **30**(10): 3059~3063
- 8 Xia Hui, Huang Shengxiang, Li Hongjian. Measuring the quality of milk using low coherence dynamic light scattering [J]. *Chinese J. Lasers*, 2008, **35**(1): 102~105  
夏辉, 黄生祥, 李宏建. 应用低相干动态光散射检测乳制品品质[J]. *中国激光*, 2008, **35**(1): 102~105
- 9 H. Wang, J. Shen, B. Wang *et al.*. Laser diode feedback interferometry in flowing Brownian motion system; a novel theory [J]. *Appl. Phys. B*, 2010, **101**(1-2): 173~183
- 10 Xiang Anping, Zhu Shide, Ren Ji. The Voigt line shape and its accurate and fast algorithm [J]. *J. Infrared Millim. Waves*, 1995, **14**(2): 125~131  
向安平, 朱世德, 任基. Voigt 线型及其精确快速算法[J]. *红外与毫米波学报*, 1995, **14**(2): 125~131
- 11 M. R. Zaghoul. On the calculation of the Voigt line profile; a single proper integral with a damped sine integrand [J]. *Mon. Not. R. Astron. Soc.*, 2007, **375**(3): 1043~1048
- 12 S. P. Limandri, R. D. Bonetto, H. O. Di Rocco *et al.*. Fast and accurate expression for the Voigt function. Application to the determination of uranium M linewidths [J]. *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 2008, **63**(9): 962~967