动态光散射一体化光纤探头的优化设计方法

刘伟肖瑜王雅静马立修申晋

山东理工大学电气与电子工程学院,山东淄博,255049

摘要 光纤探头将发射光纤、接收光纤及自聚焦(GRIN)透镜集成为一体,可替代传统动态光散射装置的光路系统, 能有效提高空间相干性,但目前尚缺乏光纤探头结构参数的最优设计方法。依据动态光散射光路系统空间相干性 的要求,分析了光纤探头的结构参数,给出了优化设计的方法,确定了光纤探头两透镜间距和夹角的最佳取值范 围。实验结果表明:光纤探头两透镜夹角为19°,间距为1.5 mm时,可满足光路系统空间相干性的要求,接收信号的 信噪比最高,相关函数的截距达到0.83,使用最优拟合累积分析法反演的颗粒平均直径相对误差小于2%。 关键词 光学设计;散射;光纤探头;空间相干性;散射角;单模光纤;自聚焦透镜 中图分类号 0433.4 **文献标识码** A doi: 10.3788/A0S201535.0829002

Optimal Design Method of Integrated Fiber Optic Probe for Dynamic Light Scattering

Liu Wei Xiao Yu Wang Yajing Ma Lixiu Shen Jin

School of Electrical and Electronic Engineering, Shandong University of Technology, Zibo, Shandong 255049, China

Abstract Fiber optic probe is made up of two single mode fibers, one for launch and the other for detection, mounted on one gradient index (GRIN) micro lens. It can replace the optical path of the conventional dynamic light scattering set-up and accord with spatial coherence condition. However, there is a lack of the optimal design method of structural parameters of optical fiber probe. Based on spatial coherence condition of the dynamic light scattering system, we analyze the structural parameters of the optical fiber probe, describe the method of optimal design and determine the best value range of the distance and angle between two lens of optical fiber probe. Experimental data shows that the optical fiber probe, whose angle between two lens is 19° and space is 1.5 mm, can meet the requirement of the spatial coherence. In such a case, the signal-to-noise ratio of the received signal is highest and intercept of the correlation function is 0.83. The relative error of the average particle diameter, which is obtained by the optimal fitting Cumulants method, is less than 2%.

Key words optical design; scattering; fiber optic probe; spatial coherence; scattering angle; single mode fiber; gradient index lens

OCIS Codes 290.5850; 290.5870; 300.6330

1 引 言

动态光散射技术具有测量速度快、重复性好、对样品无损伤等优点,广泛应用于物理、化学、医学和生物 学等各个领域,成为亚微米及纳米颗粒测量的标准手段¹¹。传统动态光散射装置的光路,由透镜、针孔等一 系列放置在样品池外部的光学器件组成,测量装置体积较大,通常难以得到理想的光学空间相干性,且由于 散射光在空气中传输,易受灰尘、外界光线以及振动的干扰,致使测量信号的信噪比降低。

为了改进传统动态光散射装置的光路, Ross等²¹将光纤式多普勒风速计(FODA)改为单角度动态光散射装置, 用以测量悬浮液中的颗粒粒度。该装置采用一根多模光纤将激光传输至样品池, 同时利用该光纤接

收稿日期: 2015-02-15; 收到修改稿日期: 2015-03-15

基金项目:山东省自然科学基金(ZR2012FL22, ZR2012EEM028, ZR2014FL027)

作者简介:刘 伟(1971—),男,博士,副教授,主要从事动态光散射纳米颗粒测量技术方面的研究。

E-mail: weikey@sdut.edu.cn

收散射光,并使用带孔的分光镜,将入射光与散射光分开。Auweter等¹³在此基础上,用耦合器取代了带孔的 分光镜,简化了系统的设计,该系统可以直接将光纤插入到样品池中,可在恶劣环境下进行测量。由于入射 光和散射光信号使用同一光路传输,需增加分光器件,使系统变得复杂,并且多模光纤存在模式色散,故不 能保证光电倍增管接收到的是来自于同一个相干面积内的散射光,因此大大降低了系统的空间相干性。

Brown¹⁴利用单模保偏光纤设计了一套散射角为90°的经典动态光散射系统。单模保偏光纤的使用降低 了模式噪声,但是在该装置中保留了光阑,需要对光路进行准直,因此系统较为复杂。Dhadwal等¹⁵¹设计了一 种背散射光纤探头,分别利用两根不带透镜的单模光纤进行光的传输和接收,并将两根光纤封装在同一个 金属套管中形成一体化的光纤探头。随后 Dhadwal等¹⁶⁻⁸¹对无透镜光纤探头开展了进一步探索,但由于光纤 探头末端未安装透镜,致使此类探头的空间相干性差,输出信号的信噪比较低。

为克服这些缺陷,Dhadwal等^[9]设计了一台光纤式光谱仪,将一根单模光纤和一个0.25节距自聚焦 (GRIN)透镜耦合在一起,提高了信号的信噪比。Maurer-Spurej^[10]利用带透镜的单模光纤,设计了便携式的装 置测量血小板的粒度分布,再次验证了透镜对提高空间相干性的作用。但该系统发射和接收光纤为独立设 计,并没有形成一体化的光纤探头。Ansari等^[11-12]设计了带透镜的光纤探头,探头包括两根单模光纤和两个 透镜,系统的相干面积得到很好的控制,从而提高了系统的空间相干性。但由于探头内两个透镜是平行放 置的,透镜间没有夹角,透镜表面的反射光会引起接收信号波动,降低了测量结果的精度。

近年来,国内学者也开展了光纤式动态光散射测量装置的研究^[13-14],但未见对一体化光纤探头的研究报 道。本文针对一体化带透镜的光纤探头,依据满足空间相干性的判据,在分析光纤探头结构参数的基础上, 给出探头结构参数的最优设计方法。

2 空间相干性判据

当入射光照射到颗粒后发生光的散射,散射区的每一个颗粒均可视为一个扩展光源。所有的颗粒产生的散射光进行叠加形成了散射光场。由于颗粒不停地做无规则布朗运动,因此空间任意点的散射光场将会随机地发生涨落,光电倍增管(PMT)通过探测这些涨落信号,来获取颗粒的粒径信息。当光电倍增管接收面积较大,接收到多个干涉极大时,此时接收的散射光为非相干光,散射光信号中包含了大量的噪声,光电倍增管的输出信号信噪比低,则光子相关器输出的相关函数品质下降,从而得不到可信的测量结果^[15]。相干面积对光源所张的立体角称为空间相干立体角 Ω_{coh} ,在此立体角内,任意截面上两点的光场是相干的,当限制进入光电探测器的散射光恰在 Ω_{coh} 的范围内时,光电探测器输出信号的信噪比最佳。 Ω_{coh} 可以分为y-z平面相干角($\Delta \varphi$)_{coh}, k_{c} 为散射矢量,如图1所示。



图 1 空间相 1 立冲用

Fig.1 Coherence solid angle of space

通常散射体由两个交叉的圆柱体构成,为立体椭圆体,接近于平行六面体。考虑散射区域两个极值点引起的相对相位,可推导出 y-z平面相干角为¹⁹:

$$\left(\Delta\theta\right)_{\rm coh} = \frac{\lambda\,\sin^2(\theta)}{2[D_{\rm A} + D_{\rm I}\cos(\theta)]}\,,\tag{1}$$

式中λ为入射光的波长。使用单模光纤接收散射光,光纤端部接有0.25节距的GRIN透镜,其结构如图2所

示,则可得到透镜的有效孔径,即光束直径DA为

$$D_{A} = \frac{2(NA)_{f}}{N_{0}\sqrt{A}},$$
(2)

式中(NA)_r为光纤的数值孔径, N_0 为透镜的轴向折射率, \sqrt{A} 为透镜的折射率梯度常数。接收光束的发散角 $(\Delta \theta)_r \beta^{[16]}$:

$$(\Delta\theta)_{\rm f} = (D_{\rm f}/2)N_0\sqrt{A} , \qquad (3)$$

式中 D_t 为单模光纤的纤径。为了限制进入光电探测器的散射光恰在 Ω_{coh} 的范围内,提高测量系统的空间相干性,接收光束的发散角必须小于y-z平面相干角,即($\Delta \theta$)_{coh},这就是满足空间相干性的判据。



图 2 一体化光纤探头的结构 Fig.2 Structure of the integrated fiber optic probe

3 光纤探头最优设计方法

光纤探头包括两根单模光纤,一根为发射光纤,一根为接收光纤,光纤端部均接有 0.25 节距的 GRIN 透镜,透镜和光纤封装在圆柱形金属外壳内,其结构如图 2 所示。GRIN 透镜顶部中心点到光纤探头中心线的 垂直距离为 h,透镜倾斜角为α,透镜的有效孔径为 D_A,发散角为(Δθ)₆。

若单模光纤的内径 $D_{\rm f}$ =3.5 μm,数值孔径(NA)_f =0.12,使用 SLW2型 GRIN 透镜,当激光波长为 632.8 nm 时,透镜的轴向折射率 N₀ =1.6073,梯度常数 \sqrt{A} =0.304 mm⁻¹,则透镜的有效孔径为:

$$D_{\rm A} = \frac{2(NA)_{\rm r}}{N_0\sqrt{A}} = \frac{2 \times 0.12}{1.6073 \times 0.304} = 0.49 \,\,{\rm mm} \,\,. \tag{4}$$

发散角为:

$$(\Delta\theta)_{\rm f} = (D_{\rm f}/2)N_0\sqrt{A} = \frac{3.5 \times 10^{-6}}{2} \times 1.6073 \times 0.304 \times 10^3 = 0.855 \,\,{\rm mrad} = 0.049^\circ \,. \tag{5}$$

依据 (1)式, y=z平面相干角($\Delta\theta$)_{coh}随散射角 θ 变化的曲线如图 3 所示。由于发射、接收光纤和透镜的参数 完全一样,因此发射光束直径 D_1 与接收光束直径 D_A 相等,同样为 0.49 mm,由图 3 可知,当 $D_1=D_A=0.49$ mm时, ($\Delta\theta$)_{coh}曲线单调上升。

假设被测颗粒溶解在水中,当激光在水溶液中传播时,波长变为 $\lambda_2 = \lambda/n_2 = 632.8/1.33 = 475.8$ nm,其中 n_2 为水的折射率。当散射角 $\theta = 142^{\circ}$ 时,y = z平面相干角为:

$$(\Delta\theta)_{\rm coh} = \frac{\lambda_2 \sin^2\theta}{2(D_{\rm A} + D_1 \cos\theta)} = \frac{475.8 \times 10^{-9} \times \sin^2 142^{\circ}}{2 \times 0.49 \times 10^{-3} \times (1 + \cos 142^{\circ})} = 0.868 \,\,\mathrm{mrad} = 0.050^{\circ} \,. \tag{6}$$

由此可知,散射角 θ 在142°~180°范围内,可以满足空间相干性的条件($\Delta\theta$)<($\Delta\theta$)<($\Delta\theta$)
。由图2可知,散射角与透镜倾角的关系为, θ =180°-2 α ,因此所允许 α 角的变化范围为0°~19°。



图 3 平面相干角随散射角变化的曲线

Fig.3 Scattering angle-dependent planar coherence angle curves

透镜顶部到散射体最近边缘的距离为Z,散射体的长度为 ΔZ ,如图2所示。根据光纤探头的结构,可以 推导出Z和 ΔZ 的计算式如下:

$$Z = \left(h - \frac{D_{A}}{2\cos\alpha}\right) \cdot \frac{1}{\tan[\alpha + (\Delta\theta)_{f}]}$$

$$\Delta Z = \left(h + \frac{D_{A}}{2\cos\alpha}\right) \cdot \frac{1}{\tan[\alpha - (\Delta\theta)_{f}]} - Z$$
(7)

Z和ΔZ随h和α变化的曲线如图4所示。当透镜的倾角α不变,透镜离中心的位置h越大时,Z越大,意味着散射体离探头越远,由于透镜的发散角小于1 mrad,使得光束的直径变化很小,因此仅h变化时,散射体的 长度ΔZ基本保持不变。当α变大,散射角θ变小时,Z和ΔZ都相应的变小。



Fig.4 Curves of Z and ΔZ vary with α

光纤探头的设计原则是:为避免在颗粒溶液内发生光的复散射,散射体离探头的距离Z应当小于光子的 传播平均自由程,因此应优化选择h和α的值,使得Z尽可能短。

当光纤探头直接插入溶液中进行测量,考虑满足空间相干性条件时,透镜倾角 α 的取值范围为0~19°,由 图 4 则可确定 α =19°时对应的 Z 最短。若选取 h=1.5 mm,则 Z=3.6 mm, ΔZ =1.5 mm。依据上述计算,满足空间 相干性的要求($\Delta \theta$)_f < ($\Delta \theta$)_{esh}。

4 实 验

为了验证所研制的一体化光纤探头的测量效果,进行了对比实验。实验样品采用标准聚苯乙烯乳胶颗

粒(Thermo Fisher Scientific公司 3000 系列),实验温度 21 °C。

4.1 实验装置

采用的两种动态光散射实验装置(采用针孔接收散射光和光纤探头接收散射光)分别如图 5 和图 6 所示, 在采用针孔的实验装置中,垂直偏振光经过透镜和衰减片,聚焦在样品池的中心,在与入射光成 90°的方向 上放置两个针孔 S1 和 S2,散射光通过针孔进入光电倍增管。光电倍增管将光子脉冲信号转换成电脉冲信 号,并将电脉冲信号送入光子相关器,相关器对脉冲信号做自相关运算后,将光强自相关函数送入计算机, 用累积分析法对数据进行处理,进而获取颗粒的平均粒径。光源为 632.8 nm 波长的垂直偏振固态激光器, 利用 Hamamatsu H8259-1 型光电倍增管模块接收散射光,使用 Optek OP-90S 型光子相关器计算光强自相关 函数。



图5 传统动态光散射装置结构框图

Fig.5 Structure of the conventional dynamic light scattering set-up

使用一体化光纤探头的动态光散射装置如图6所示,实验过程中,将光纤探头直接插入颗粒溶液中,激 光器发出的垂直偏振光经耦合器进入发射光纤,激光束经过GRIN透镜准直后射入散射介质,接收光纤通过 GRIN透镜接收散射光,接收光纤的另一端通过连接器连接光电倍增管,将散射光传输到光电倍增管阴极表 面。



图6 使用光纤探头的动态光散射装置框图

Fig.6 Structure of the dynamic light scattering set-up using fiber optic probe

4.2 实验步骤

通过调整针孔的大小,来调整传统动态光散射装置光电倍增管的接收面积,使其满足空间相干性的要求。实验选择了100 μm和200 μm两种针孔直径,固定S2为100 μm针孔,S1分别使用100 μm和200 μm针孔,得到样品3100 A的相关函数如图7所示。当S2为200 μm针孔时,光电倍增管的接收面积过大,得不到相关函数。由图7可以看出,分散光路的空间相干性较低,相关函数的截距最高才达到0.2。



Fig.7 Obtained autocorrelation function by pinholes

根据前述优化设计方法,确定光纤探头两透镜的夹角α=19°,间距*h*=1.5 mm,散射角θ=142°。通过实验 获得样品 3100 A 的光强自相关函数曲线如图 8(a)所示,相关函数的截距为 0.83,接近其理论最大值 1,可见此 时光电倍增管输出信号的信噪比较高。减小夹角到 17°时,相关函数曲线如图 8(b)所示,由于还满足空间相 干性的条件,因此相关函数截距接近最大截距 0.83,但此时散射体离探头的距离 Z 变长。增加夹角到 21°时, 相关函数曲线如图 8(c)所示,由于不再满足空间相干性的条件,因此相关函数截距降为 0.67。



图 8 使用光纤探头获得的自相关函数

Fig.8 Obtained autocorrelation function by the fiber optic probe

4.3 数据分析

在动态光散射实验中,需要测量的是光强时间自相关函数:

$$G^{^{(2)}}(\tau) = \left\langle I(t)I(t+\tau) \right\rangle = \lim_{T \to \infty} \frac{1}{T} \int_{0}^{T} I(t)I(t+\tau) \, \mathrm{d}t \,, \tag{8}$$

式中I(t)及 $I(t+\tau)$ 表示t及 $t+\tau$ 时刻的散射光强, $\langle \cdot \rangle$ 尖括号表示时间平均值, T为实验时间, τ 为延迟时间。为 便于进行数据处理, 对光强自相关函数做归一化处理, 并根据Siegent关系式, 得到归一化的电场自相关函数 $g^{(0)}(\tau)$

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\left\langle I(t)I(t+\tau) \right\rangle}{\left\langle I(t) \right\rangle^2} = \frac{G^{(2)}(\tau)}{B} = 1 + \beta \left| g^{(1)}(\tau) \right|^2 , \qquad (9)$$

式中β (0<β<1)称为相关函数的截距。依据累积分析法¹⁷⁷,将相关函数展开成泰勒级数,并对 (9) 式两边同时 取对数,在颗粒粒度分布较窄的情况下,忽略高阶项,在二次项处截断,得到

$$\ln[g^{(2)}(\tau) - 1] = \ln\beta - 2\bar{\Gamma}\tau + k_2\tau^2.$$
(10)

在获得光强自相关函数后,按照最优拟合累积分析法求得相关函数的最佳长度^[18],按此长度将相关函数 截断,然后取对数,再使用最小二乘法对数据拟合,如图9所示。以最优参数下光纤探头获得的相关函数为 例,得到拟合参数 $\overline{\Gamma}$ =1531.1 Hz, k_2 =(108.3 Hz)²,根据斯托克斯-爱因斯坦公式^[19],求出颗粒的流体力学直径 D=101 nm,计算出多分散系数 $P_1 = k_2 / \overline{\Gamma}^2 = 0.005$ 。



图9 最优长度的对数相关函数及二阶多项式拟合

Fig.9 Logarithm of autocorrelation function with optimal length and 2nd order ploy fitting

在最优参数下,使用该光纤探头测量了3000系列共5个型号的样品,使用上述数据分析方法,求得颗粒平 均粒径及多分散系数,如表1所示。对传统动态光散射装置获取的相关函数进行处理的结果,列于表2中。 表1使用光纤探头的实验结果

Table 1	Experimental	data of th	e dynamic	light scatteri	ng set-ur	using f	iber ontic	probe
Table 1	Блроннонта	uata of th	c uynamic	ngni scatteri	ng set up	, using i	iber optie	probe

No.	Nominal diameter /nm	Measured diameter /nm	Relative error /%	Polydispersity index (P_1)
3060A	60±4	61	1.67	0.005
3100A	102±3	101	0.98	0.005
3200A	203±5	200	1.48	0.011
3300A	296±6	301	1.69	0.013
3450A	453±9	452	0.22	0.070

表2 传统动态光散射装置的实验结果

Table 2 Experimental data of the conventional dynamic light scattering set-up								
No.	Nominal diameter /nm	Measured diameter /nm	Relative error /%	Polydispersity index (P_1)				
3060A	60±4	58	3.33	0.016				
3100A	102±3	95	6.86	0.133				
3200A	203±5	198	2.46	0.150				
3300A	296±6	289	2.36	0.101				
3450A	453±9	432	4.63	0.273				

由实验结果可以看出,传统动态光散射装置,系统的空间相干性差,所得信号的信噪比低,颗粒粒径测量结果的相对误差较大。使用光纤探头时,系统的空间相干性好,所得信号的信噪比较高,提高了检测数据的准确性,颗粒粒径测量结果的相对误差小于2%,优于国标的要求,因此使用一体化光纤探头的动态光散射颗粒测量装置,可以获得准确可靠的纳米颗粒粒径信息。

5 结 论

一体化光纤探头将带 GRIN 透镜的发射和接收光纤集成在一起,克服了传统动态光散射装置空间相干性较低的缺陷。依据动态光散射光路系统空间相干性的要求,分析了光纤探头的结构参数,确定了光纤探头两透镜间距和夹角的最佳取值范围,提高了检测信号的信噪比。实验结果表明:光纤探头两透镜夹角为19°,间距为1.5 mm时,满足光路系统空间相干性的要求,接收信号的信噪比最高,相关函数的截距达到0.83,使用最优拟合累积分析法反演的颗粒直径相对误差小于2%。

参 考 文 献

1 International Organization for Standardization. Particle Size Analysis-Dynamic Light Scattering. ISO-22412:2008[S]. Switzerland,

2008.

- 2 Ross D A, Dhadwal H S, Dyott R B. The determination of the mean and standard deviation of the size distribution of a colloidal suspension of submicron particles using the fiber optic Doppler anemometer, FODA[J]. Journal of Colloid and Interface Science, 1978, 64(3): 533 542.
- 3 Auweter H, Horn D. Fiber-optical quasi-elastic light scattering of concentrated dispersions[J]. Journal of Colloid and Interface Science, 1985, 105(2): 399 409.
- 4 Robert G W Brown. Dynamic light scattering using monomode optical fibers[J]. Appl Opt, 1987, 26(22): 4846-4851.
- 5 S Dhadwal H, Rafat R Ansari, Willian V Meyer. A fiber-optic probe for particle sizing in concentrated suspensions[J]. Review of Scientific Instruments, 1991, 62(12): 2963-2968.
- 6 Rafat R Ansari, Harbans S Dhadwal, H Michael Cheung, *et al.*. Microemulsion characterization by the use of a noninvasive backscatter fiber optic probe[J]. Appl Opt, 1993, 32(21): 3822-3827.
- 7 Harbans S Dhadwal. Homodyne fiber optic backscatter dynamic light scattering[J]. Opt Lett, 2007, 32(23): 3391-3393.
- 8 B B Weiner, Walther W Tscharnuter, A Banerjee. Developing fiber optic probes for noninvasive particle size measurements in concentrated suspensions using dynamic light scattering[J]. ASC Symposium Series, 1998, 693: 77-87.
- 9 S Dhadwal H, Chu B A fiber-optic light-scattering spectrometer[J]. Review of Scientific Instruments, 1989, 60(5): 845-853.
- 10 Elisabeth Maurer-Spurej, Keddie Brown, Audrey Labrie, et al.. Portable dynamic light scattering instrument and method for the measurement of blood platelet suspensions[J]. Physics in Medicine and Biology, 2006, 51(15): 3747-3758.
- 11 Rafat R Ansari, Kwang I Sch. Sizing of colloidal particles and protein molecules in a hanging fluid drop[J]. SPIE, 2629: 1995.
- 12 H S Dhadwal. Method and Apparatus for Determining the Physical Properties of Materials Using Dynamic Light Scattering Techniques: U S patent 5, 155, 549[P]. 1992-10-13.
- 13 Lou Benzhuo. Particle sizing by a DLS system based on single-mode fibers[J]. The Journal of Light Scattering, 2009, 2(3): 216-220. 娄本浊. 基于单模光纤的 DLS 粒径测量研究[J]. 光散射学报, 2009, 21(3): 216-220.
- 14 Huang Wei, E R Pike. Photon correlation spectroscopy using single-mode optical fibers[J]. Acta Physica Sinica, 2001, 50(8): 1507-1511.

黄 伟, Pike E R. 光纤在光子相关光谱中的研究[J]. 物理学报, 2001, 50(8): 1507-1511.

15 Wang Shaoqing, Lou Benzhuo, Tao Yewei, *et al.*. On the spatial coherence problem of a photon correlation spectrum measurement system in dynamic light scattering[J]. Applied Laser, 2004, 24(5): 279-281.

王少清,娄本浊,陶冶薇,等.动态光散射中光子相关谱测量系统的空间相干性问题[J].应用激光,2004,24(5):279-281.

- 16 S Suparno, K Deurloo, P Stamatelopolous, *et al.*. Light scattering with single-mode fiber collimators[J]. Appl Opt. 1994, 33(30): 7200-7205.
- 17 D E Koppel. Analysis of macromolecular polydispersity in intensity correlation spectroscopy: the method of cumulants[J]. J Chem Phys, 1972, 57(11): 4814-4820.
- 18 Liu Wei, Wang Yajing, Shen Jin. Optimal fitting cumulants method for dynamic light scattering[J]. Acta Optica Sinica, 2013, 33(12): 1229001.

刘 伟, 王雅静, 申 晋. 动态光散射最优拟合累积分析法[J]. 光学学报, 2013, 33(12): 1229001.

19 Chu, B. Laser Light Scattering: Basic Principles and Practice[M]. New York: Dover Publications, 2007.

栏目编辑:韩 峰