

## NUMERISCHE UNTERSUCHUNGEN ZUR TEILCHENGRÖßEN- UND TEILCHENABSTANDSBESTIMMUNG MITTELS ZEITAUFGELÖSTER STREULICHTANALYSE

### NUMERICAL STUDY ON PARTICLE SIZING AND PARTICLE DISTANCE BY TIME-RESOLVED ANALYSE OF SCATTERED LIGHT

Heinrich Bech, Alfred Leder

Universität Rostock, Fakultät für Maschinenbau und Schiffstechnik, Lehrstuhl Strömungsmechanik,  
Albert-Einstein-Str. 2, 18059 Rostock

Mie-Streuung, fs-Laserpuls, Geometrische Optik, Streulichtordnungen, Oberflächenwellen  
Mie scattering, fs-laser pulse, Geometric optics, Order of scattered light, Surface waves

#### Zusammenfassung

Es werden Ergebnisse der zeitaufgelösten Streulichtanalyse für Einzelteilchen und optisch gekoppelte Zweiteilchenanordnungen vorgestellt. Für die numerischen Untersuchungen an Einzelteilchen wurde der Algorithmus der klassischen Mietheorie verwendet. Die Berechnungen für die Zweiteilchenanordnung erfolgten mit einer für Mehrteilchenstreuung verallgemeinerten Mietheorie. Bei pulsenduzierter Streulichtgenerierung und Abbildung der Streulichtentwicklung auf eine Femtosekundenskala ist es möglich, sowohl Teilchengrößen als auch Teilchenabstände zu bestimmen.

#### Einleitung

Der Einsatz von fs-Pulslasern als Lichtquelle zur Streulichtgenerierung an kleinen Teilchen eröffnet durch die Auswertung von Laufzeitunterschieden des detektierten Streulichtes neue Möglichkeiten der Teilchencharakterisierung. Wenn ein Laserpuls im Femtosekundenbereich auf ein transparentes Teilchen in der Größenordnung einiger Mikrometer auftrifft, lassen sich die Streulichtsignale der einzelnen Streulichtordnungen bereits zeitlich unterscheiden und als Pulsfolge detektieren. Da ein Reflexionssignal im gesamten Streuwinkelbereich ( $0^\circ \leq \vartheta \leq 180^\circ$ ) messbar ist (Albrecht et al 2003), kann für eine Teilchengrößenbestimmung im Vorwärtsstreubereich die Zeitdifferenz zwischen dem Erscheinen des Reflexionssignals und dem dominierenden Signal der Brechung 1. Ordnung ausgenutzt werden (Abb. 1).

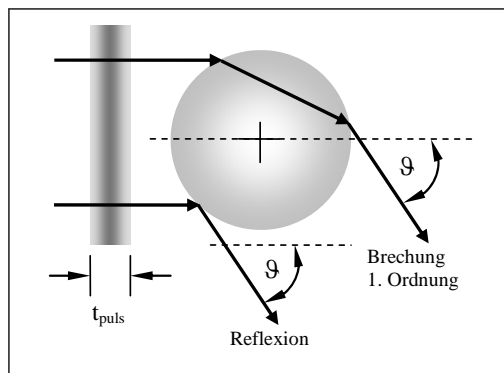


Abb. 1: Detektion im Vorwärtsstreubereich

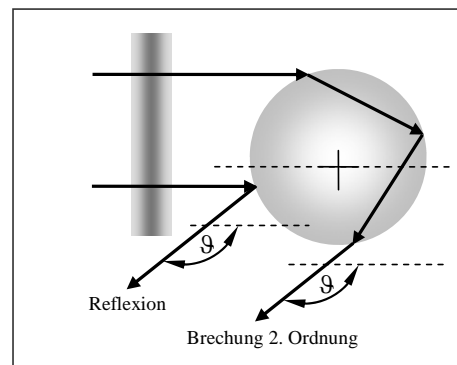


Abb. 2: Detektion im Rückstreubereich

Bei einer Detektion im Rückstreubereich bietet sich die Zeitdifferenz zwischen dem Erscheinen des reflektierten Streulichtes und dem Streulicht der Brechung 2. Ordnung für eine Auswertung an (Abb. 2).

Im Falle einer Mehrteilchenanordnung kann neben einer Teilchengrößenbestimmung bei Berücksichtigung der optischen Kopplung zwischen den Teilchen auch der lichte Abstand zwischen zwei Teilchen ermittelt werden (Abb. 3).

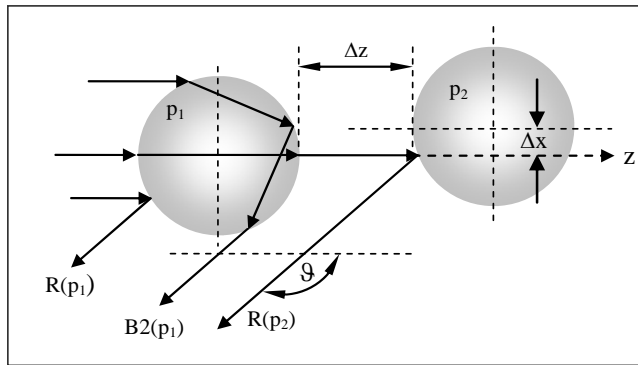


Abb. 3:  
 Detektion im Rückstreubereich bei gleichzeitiger Ermittlung des Teilchenabstandes,  
 R(p1): Reflexion an Teilchen p1  
 B(p1): Brechung 2. Ordnung an p1  
 R(p2): Reflexion an Teilchen p2

Die numerische Behandlung dieser Aufgabenstellung setzt eine für Mehrteilchenstreuung erweiterte Mie Theorie voraus, die die optischen Wechselwirkungen zwischen den einzelnen Teilchen vollständig erfasst, Xu 1995.

Zur Rekonstruktion der Teilchengröße und des Teilchenabstandes aus den Streulichtmustern ist die Kenntnis des Lichtweges durch die Teilchen erforderlich. Hierzu dienen Modelle, die mittels der geometrischen Optik entwickelt wurden. Die Besonderheiten der Lichtstreuung im Regenbogenbereich sowie das Auftreten von Oberflächenwellen müssen dabei berücksichtigt werden.

### Numerische Simulation des fs-Pulses

Für die vorliegenden Resultate wurde als einfallendes Feld ein gaußförmiger fs-Puls durch die Überlagerung ebener Wellen unterschiedlicher Frequenz und Amplitude generiert. Um den numerischen Aufwand zu begrenzen, muss ein Kompromiss zwischen Pulsbreite und Teilchengröße eingegangen werden. Kleinere Teilchen erfordern einen Einfallspuls mit kleinerer Halbwertsbreite  $\tau_p$ , wodurch sich jedoch die Anzahl der erforderlichen Streurechnungen entsprechend dem verbreiterten Wellenlängenspektrum des Pulses erhöht. Die Wahl fiel auf einen Puls mit einer Halbwertsbreite  $\tau_p=15\text{fs}$  und einem Spektrum von  $n_{\text{max}}=160$  unterschiedlichen Wellenlängen  $\lambda_j$ , für die jeweils eine separate Streurechnung ausgeführt werden muss.

Gl. (1) beschreibt den zeitlichen Verlauf des fs-Pulses, Diels 1996. Ein harmonischer Anteil wird in diesem Fall nicht berücksichtigt.

$$E_{t_i} := \exp \left[ -a \cdot \left( \frac{t_i}{\sigma_t} \right)^2 \right] \quad \text{mit} \quad \sigma_t := \frac{\tau_p}{2 \cdot \sqrt{\ln(2)}} \quad (1)$$

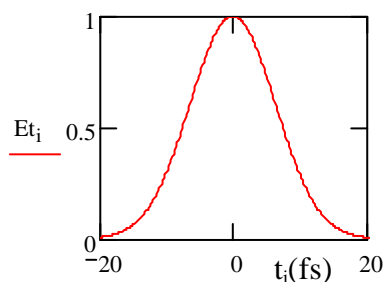


Abb. 4:  
 Zeitlicher Verlauf des fs-Pulses  
 (a=1,  $\tau_p=15\text{fs}$ )

Die Transformation in den Frequenzbereich erfolgt mit Gl. (2),

$$E\omega_j := \sum_{i=0}^{ni} \left[ E t_i \cdot \exp\left[i(\omega_j - \omega_0) \cdot t_i\right] \right] \cdot \Delta\Delta t \cdot \sigma_\omega \cdot \sqrt{\frac{a}{\pi}} \quad \text{mit} \quad \sigma_\omega := \frac{1}{\sigma_t} \quad (2)$$

woraus sich mit  $\lambda_j := \frac{c_0}{\omega_j} \cdot 2 \cdot \pi$

das für die Streurechnungen erforderliche Wellenlängenspektrum ergibt.

Abb. 5 und Abb. 6 zeigen den Verlauf des Frequenz- und Wellenlängenspektrums.

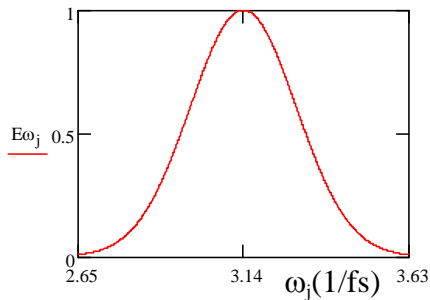


Abb. 5: Frequenzspektrum des fs-Pulses nach Abb.4, ( $\lambda_0=600 \text{ nm}$ ,  $\Delta\Delta t=3 \cdot 10^{-16} \text{ sec}$ )

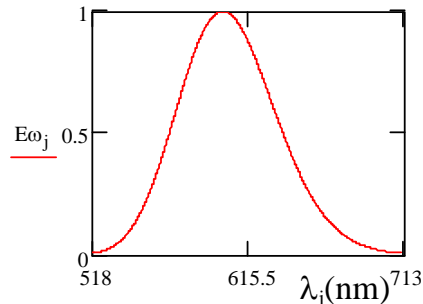


Abb. 6: Wellenlängenspektrum des fs-Pulses nach Abb.4, ( $\lambda_0=600 \text{ nm}$ )

Das Zeitfenster T für die Rücktransformation des Streulichtes in den Zeitbereich wird durch die Periodizität der Fouriertransformation festgelegt. Das Frequenzspektrum nach Abb. 5 muss so fein abgetastet werden, dass sich im interessierenden Zeitbereich keine Überlappungen ergeben. Bei Teilchen in der Größenordnung von  $dp=100\mu\text{m}$  liegt die Transferzeit des Lichtes für Brechung 2. Ordnung bei 1ps.

Mit  $T=2\pi/\Delta\Delta\omega$  und  $\Delta\Delta\omega=6.22 \cdot 10^{12}$  liefert die Rücktransformation in den Zeitbereich nach Gl. (3) das gewünschte Resultat (Abb. 7).

$$E t_{R_i} := \sum_{j=0}^{nj2} \left( E\omega_j \cdot \exp\left[-i \cdot \omega_j \cdot t_{R_i}\right] \right) \cdot \Delta\Delta\omega \cdot \sigma_t \cdot \sqrt{\frac{a}{4 \cdot \pi}} \quad (3)$$

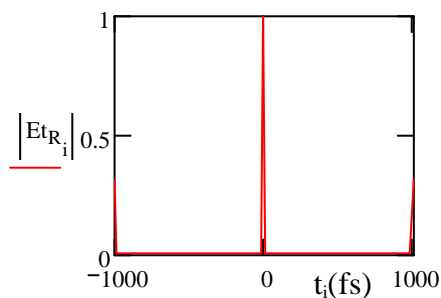


Abb. 7:  
Zeitfenster für die Streulichtauswertung,  
 $T=1000\text{fs}$

## Teilchengrößenbestimmung

Nachfolgend werden ausschließlich numerische Resultate für die Teilchengrößenbestimmung dargestellt, die sich als Pulsmuster auf der Femtosekunden-Zeitskala abbilden. Beispiele für die räumliche Ausbreitung einzelner pulsenduzierter Streulichtordnungen sind in Bech, Leder 2004 enthalten. Da für die messtechnische Praxis vorwiegend eine Detektoran-

ordnung im Rückstreubereich bevorzugt wird, wird von einer Streulichtgenerierung nach Abb. 2 ausgegangen und die Zeitdifferenz zwischen dem Reflexionspuls und dem Puls der Brechung 2. Ordnung ausgewertet. In Abb. 8 ist die totale pulsinduzierte Streulichtantwort eines  $15\mu\text{m}$  großen Wassertropfchens ( $m=1.33$ ) unter einem Streuwinkel  $\vartheta=150^\circ$  auf der Zeitskala dargestellt. Als markante Pulse heben sich die Reflexion bei ca. 450fs und die Brechung 2. Ordnung bei ca. 570fs hervor. Die Pulse bei 800fs werden durch höhere Brechungsordnungen verursacht.

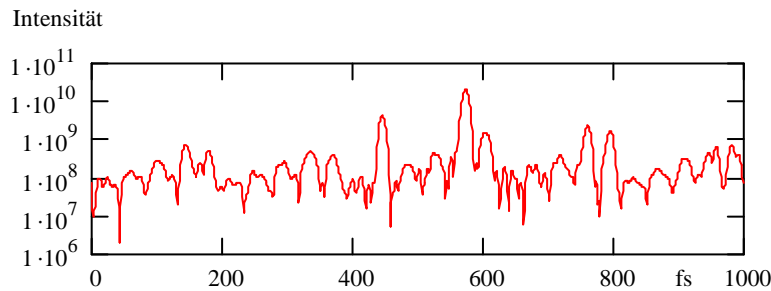


Abb. 8:  
Zeitliche Abfolge des totalen Streulichtes eines  $15\mu\text{m}$ -Wassertropfchens ( $m=1.33$ ,  $\vartheta=150^\circ$ )

Eine Dekomposition des Gesamtstreulichtes mittels eines Reihenansatzes nach Debye erlaubt die getrennte Berechnung einzelner Streulichtordnungen, wodurch die Interpretation des totalen Streulichtmusters wesentlich erleichtert wird, Hovenac, Lock1992. Abb. 9 und Abb. 10 zeigen jeweils auf getrennten Zeitachsen den Reflexionspuls und den Puls der Brechung 2. Ordnung.

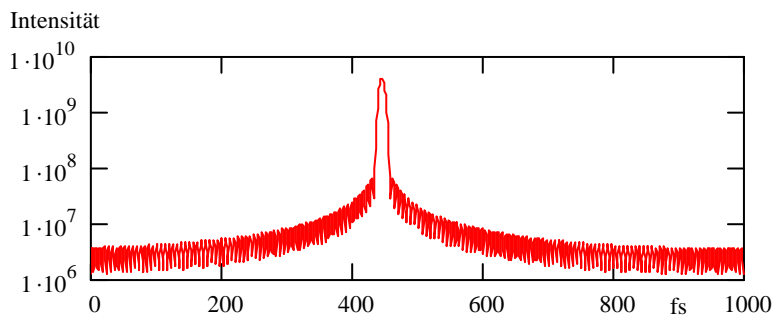


Abb. 9:  
Reflexionspuls bei  $t=447\text{fs}$

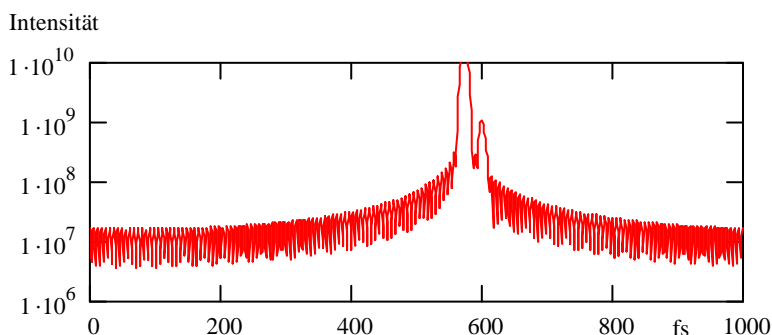


Abb. 10:  
Puls der Brechung 2. Ordnung bei  $t=575\text{fs}$

Zwischen beiden Reflexen stellt sich eine Zeitdifferenz  $\Delta t=128\text{fs}$  ein. Der Nebenpeak in Abb. 10 wird durch Besonderheiten der Lichtführung durch das Teilchen bei Brechung 2. Ordnung (Regenbogenbereich, Oberflächenwellen) verursacht, siehe Bech, Leder 2006-1.

Mit Gl. (4) kann für beliebige Streuwinkel  $\vartheta_{B2}$  der Brechung 2. Ordnung aus der Zeitdifferenz  $\Delta t$  der Teilchendurchmesser  $d_p$  ermittelt werden ( $\theta \vartheta$ ). Dazu müssen jedoch die zugehörigen Streuwinkel der Brechung 1. Ordnung  $\vartheta_{B1}$  bekannt sein. Diese lassen sich mittels Gl. (5) numerisch bestimmen.

$$dp := \frac{\Delta t \cdot 0.3}{\sqrt{1 + m^2 - 2 \cdot m \cdot \cos\left(\frac{\theta_{B1}}{2}\right) + \sin\left(\frac{\theta_{B2}}{2}\right) + m \cdot \sin\left(\frac{\theta_{B2} - \theta_{B1}}{2}\right)}} \quad (4)$$

$$\theta_{B2} := \theta_{B1} + 2 \cdot \arccos\left(\frac{\sin\left(\frac{\theta_{B1}}{2}\right)}{\sqrt{1 + m^2 - 2 \cdot m \cdot \cos\left(\frac{\theta_{B1}}{2}\right)}}\right) \quad (5)$$

Für  $\vartheta_{B2}=150^\circ$  ergeben sich nach Gl. (5) die beiden Lösungen  $\vartheta_{B1(1)}=17.10^\circ$  und  $\vartheta_{B1(2)}=65.86^\circ$ , so dass sich mit Gl. (4) eine Teilchengröße zu  $dp(1)=15.01\mu\text{m}$  und  $dp(2)=14.83\mu\text{m}$  ergibt. Die Streulichtberechnung wurde mit einer Teilchengröße  $dp=15\mu\text{m}$  ausgeführt.

Wegen des in Gl. (4) enthaltenen konstanten Faktors

$$k := \frac{0.3}{\sqrt{1 + m^2 - 2 \cdot m \cdot \cos\left(\frac{\theta_{B1}}{2}\right) + \sin\left(\frac{\theta_{B2}}{2}\right) + m \cdot \sin\left(\frac{\theta_{B2} - \theta_{B1}}{2}\right)}} \quad (6)$$

kann ein Kennfeld erstellt werden, das die Abhängigkeit der Teilchengröße von der ermittelten Zeitdifferenz  $\Delta t$  darstellt, wobei der Detektionswinkel  $\vartheta$  als Parameter fungiert. Für den „langen“ Lichtweg, d.h. für Detektionswinkel  $\vartheta_c \geq \vartheta \geq \vartheta_{Rb}$  zeigt Abb. 11 dieses Kennfeld, ( $\vartheta_c$ : kritischer Winkel der Brechung 2. Ordnung,  $\vartheta_{Rb}$ : Regenbogenwinkel).

Für Detektionswinkel ( $180^\circ \geq \vartheta \geq \vartheta_c$  werden Oberflächenwellen detektiert, die einem anderen Zeitverhalten unterliegen, Bech, Leder 2006-2.

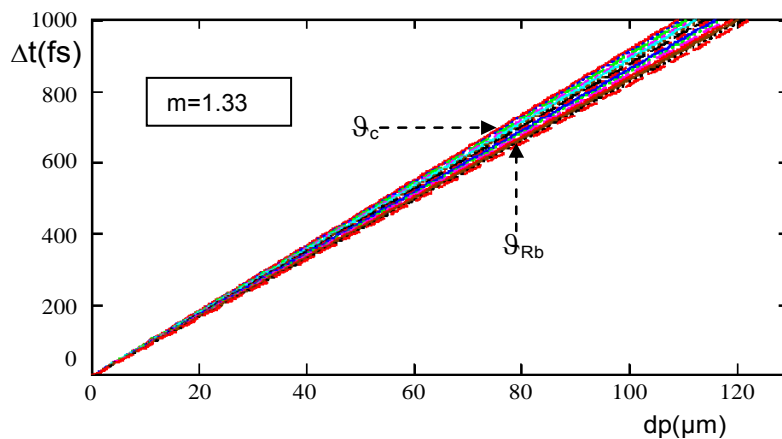


Abb. 11:  
Kennfeld zur Bestimmung der  
Teilchengröße  $dp$   
aus der Zeitdifferenz  $\Delta t$

Aus Abb. 11 geht hervor, dass die Wahl des Detektionswinkels bezüglich der Teilchengrößenbestimmung sehr unkritisch ist. Im Bereich  $\vartheta_c \geq \vartheta \geq \vartheta_{Rb}$  übersteigt der relative Fehler der Teilchengrößenbestimmung  $f(dp)=[dp(\vartheta_{Rb})-dp(\vartheta_c)]/dp(\vartheta_c)$  nicht den Wert von 12%. In gleicher Weise kann diese Abhängigkeit für den „kurzen“ Lichtweg durch das Teilchen im Winkelbereich  $180^\circ \geq \vartheta \geq \vartheta_{Rb}$  dargestellt werden. Dafür stellt sich ein relativer Fehler unter 10% ein.

Die von Gl. (4) und Gl. (5) abgeleiteten Resultate basieren ausschließlich auf der geometrischen Optik. Es muss beachtet werden, dass sich bei sehr kleinen Teilchen die charakteristischen Pulse in der Pulsfolge des Gesamtstrellichtes in ihrer Intensität immer weniger un-

terscheiden. Dann ist eine Zuordnung zu den Streulichtordnungen schwierig, obwohl sich mittels der Debye-Zerlegung die Pulse der betreffenden Streulichtordnungen noch zeitlich sehr gut einordnen lassen, (Abb. 12...Abb. 14). Eine Teilchengrößenbestimmung könnte dann aber ohne Kenntnis der konkreten Streuordnung aus der Frequenz des Pulsmusters abgeleitet werden.

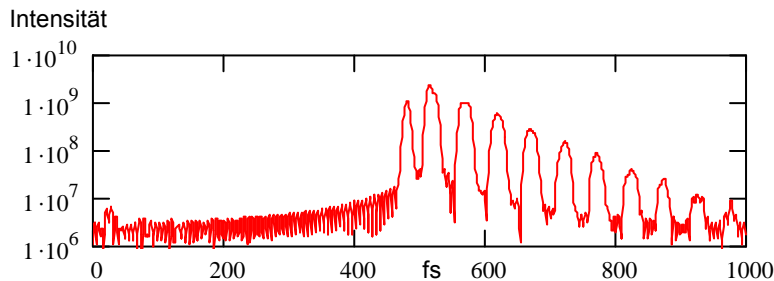


Abb. 12:  
Totale Streulichtantwort  
eines 4µm-Wassertröpfchens,  
 $\vartheta=150^\circ$

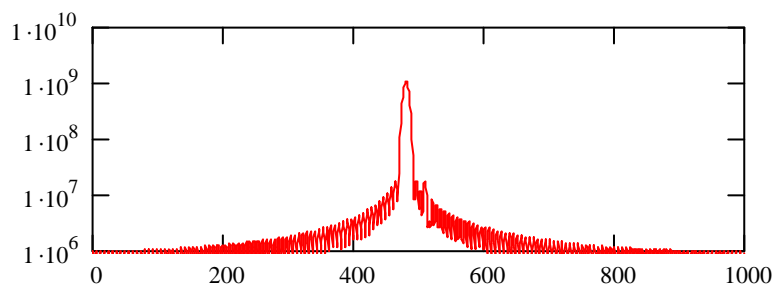


Abb. 13:  
Reflexionspuls  
eines 4µm-Wassertröpfchens,  
 $\vartheta=150^\circ$

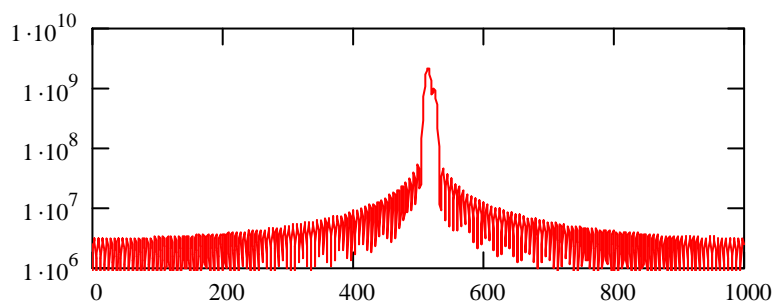


Abb. 14:  
Puls der Brechung 2. Ordnung  
eines 4µm-Wassertröpfchens,  
 $\vartheta=150^\circ$

## Ergebnisse für eine Zweiteilchenanordnung

Es wurde untersucht, ob sich aus dem Streulichtmuster einer Zweiteilchenanordnung nach Abb. 3 neben dem Durchmesser des Primärteilchens  $p_1$  auch der Abstand beider Teilchen ermitteln lässt. Die Streulichtberechnung setzt in diesem Fall voraus, dass alle optischen Wechselwirkungen zwischen den Teilchen berücksichtigt werden. Diese Forderung wird von der für Mehrteilchenstreuung verallgemeinerten Miethorie (Xu 1995) erfüllt. Vorangegangene Untersuchungen (Bech, Leder 2006-2) verwendeten für diese Aufgabenstellung die Hintereinanderschaltung von zwei Einteilchenmodellen, wobei die optische Kopplung durch die Brechung 1. Ordnung berücksichtigt wurde. Das Gesamtstreulicht wurde durch vektorielle Addition der Teilfelder erzeugt. Die Rücktransformation des totalen Streufeldes in den Zeitbereich zeigte, dass der Abstand zwischen den Teilchen aus dem Streulichtmuster der Gesamtanordnung bestimmt werden kann.

Die nachfolgenden Resultate wurden ausschließlich durch Anwendung der verallgemeinerten Miethorie erzielt. Der vorhandene Algorithmus gestattet nur die Eingabe von Wellenlängen gleichbleibender Amplitude, so dass das Gesamtstreulicht nachträglich mit einer gaußförmigen Einhüllenden gewichtet wurde. Im Ergebnis der für Teilchenaggregate gültigen Miethorie werden die Wirkungen des Streulichtes in ihrer physikalischen Gesamtheit auf die

Zeitachse abgebildet. Zur Vereinfachung der Interpretation des Streulichtmusters wurde bei späteren Untersuchungen der Imaginärteil des Brechungsindex des Sekundärteilchens  $p_2$  stark erhöht ( $m_2=1.33+i4$ ), so dass von  $p_2$  nur Reflexion zu erwarten ist. Zur Kontrolle zeigt Abb. 15 das Streulichtmuster eines elektrisch leitenden Einzelteilchens. Der Puls bei 463fs wird ausschließlich durch Reflexion verursacht. Dieses Resultat ist vergleichbar mit dem Ergebnis der klassischen Mietheorie bei Anwendung der Debye-Zerlegung für den Fall der Reflexion (Abb. 13). Jedoch kann die Debye-Zerlegung die Reflexion immer nur gemeinsam mit dem Beugungsanteil darstellen.

Intensität

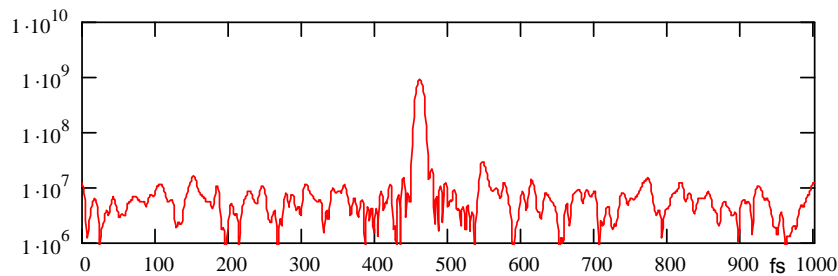


Abb. 15:  
Reflexionspuls eines  
10 $\mu$ m-Teilchens  
mit  $m=1.33+i4$ ,  $\vartheta=150^\circ$   
(Gesamtstreulicht)

Die folgenden 3 Abbildungen zeigen die Pulsmuster der Streulichtantwort einer Zweiteilchenanordnung nach Abb. 3 bei schrittweiser Erhöhung des lichten Abstandes der Teilchen. Beide Teilchen sind direkt auf der z-Achse positioniert ( $\Delta x=0$ ). Die Teilchengrößen und ihre Brechungsindizes sind gleich,  $dp_1=dp_2=20\mu\text{m}$ ,  $m_1=m_2=1.33$ .

Intensität

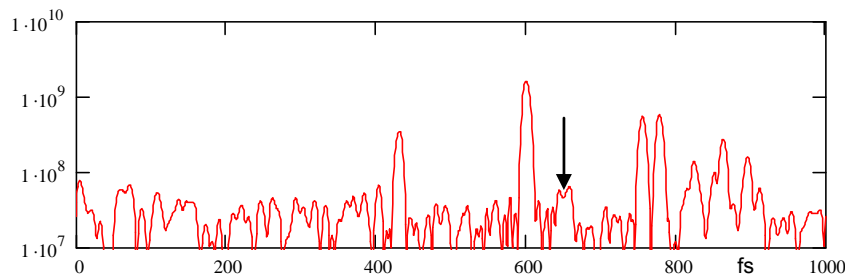


Abb. 16:  
Pulsfolge der  
Zweiteilchenanordnung  
für  $\Delta z=5\mu\text{m}$   
(lichter Abstand)

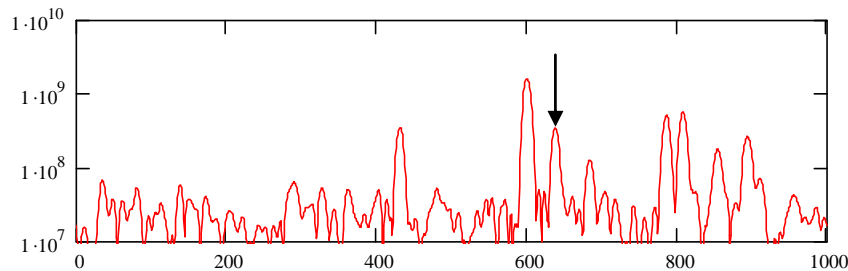


Abb. 17:  
Pulsfolge der  
Zweiteilchenanordnung  
für  $\Delta z=10\mu\text{m}$   
(lichter Abstand)

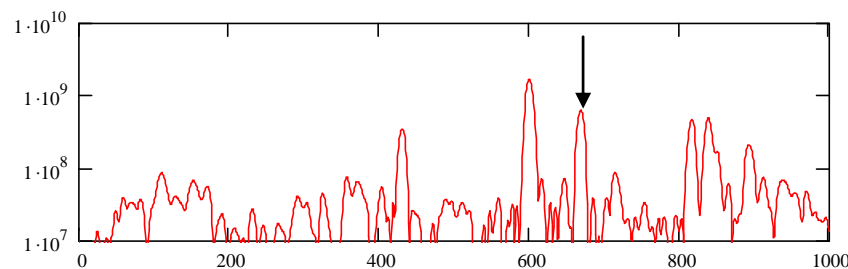


Abb. 18:  
Pulsfolge der  
Zweiteilchenanordnung  
für  $\Delta z=15\mu\text{m}$   
(lichter Abstand)

Neben den beiden Pulsen der Reflexion und der Brechung 2. Ordnung von  $p_1$  bildet sich als nächstes Signal auf der Zeitachse der Puls der Reflexion vom Teilchen  $p_2$  mit zunehmendem Teilchenabstand deutlich heraus (mit Pfeil markiert). Im Fall der Abb. 16 ( $\Delta z=5\mu\text{m}$ ) ist der

lichte Abstand nicht ausreichend dafür, dass das Reflexionssignal von  $p_2$  unter einem Winkel  $\vartheta=150^\circ$  auf direktem Weg detektiert werden kann. Das Teilchen  $p_1$  liegt noch im Strahlengang der Reflexion von  $p_2$ . Mit zunehmendem Abstand vergrößert sich die Zeitdifferenz zwischen dem Signal der Brechung 2. Ordnung von  $p_1$  und dem Reflexionssignal von  $p_2$ . Zusätzlich tritt bei ca. 800fs ein Doppelpuls auf, der sich ebenfalls mit vergrößertem Teilchenabstand simultan mit dem Reflexionspuls von  $p_2$  auf der Zeitachse verschiebt. Daher resultiert die Annahme, dass dieser Doppelpuls durch Brechung 2. Ordnung an  $p_2$  verursacht wird, wodurch sich auch eine Teilchengrößenbestimmung für  $p_2$  eröffnet.

Um diese Annahme zu bestätigen, wurde für den Fall der Abb. 16 der Imaginärteil des Brechungsindex von  $p_2$  stark erhöht ( $m_2=1.33+i4$ ). Dann tritt der typische Doppelpuls bei 800fs nicht mehr auf (Abb. 19). Die Pulse nach 800fs resultieren nachweislich vom Teilchen  $p_1$ .

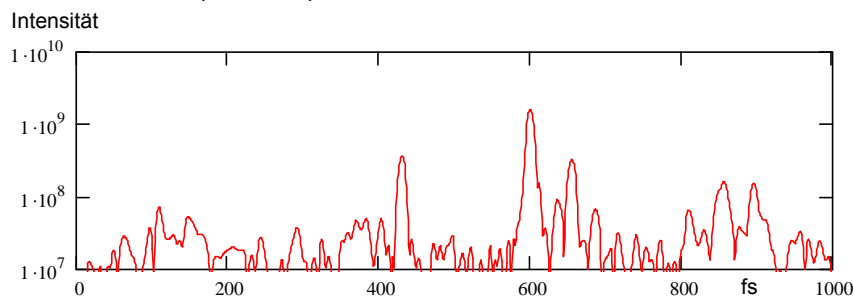


Abb. 19:  
Pulsfolge der  
Zweiteilchenanordnung  
für  $\Delta z=5\mu\text{m}$ ,  
 $m_2=1.33+i4$

Aus der Zeitdifferenz zwischen dem Reflexionssignal von  $p_1$  und dem Reflexionssignal von  $p_2$  lässt sich mit Gl. (7) der lichte Abstand  $\Delta z$  der Teilchen berechnen.

$$\Delta z = \frac{\Delta t_{R1-R2} \cdot c_0 - r \cdot \cos \beta \cdot (1 - \cos 2\beta)}{1 + \cos 2\beta} \quad \text{mit} \quad \beta = \frac{\pi - \vartheta_R}{2} \quad (7)$$

## Dankesworte

Die Autoren danken der Deutschen Forschungsgemeinschaft für die Förderung des Themas „Numerische Untersuchungen der pulsinduzierten Lichtstreuung an Mehrteilchenanordnungen mit dem Ziel der Bestimmung von Teilchengrößen und Teilchenabständen“ (LE713/24-1)

## Literatur

Albrecht H.-E., Borys M., Damaschke, N., Tropea C.: „Laser Doppler and Phase Doppler Measurement Techniques“, Springer, Berlin Heidelberg 2003

Xu Yu-Lin, 1995: „Electromagnetic scattering by an aggregate of spheres“, Applied Optics, Vol. 34, No. 21(1995), 4573-4588

Diels J.-C., 1996: „Ultrashort Laser Pulse Phenomena (Fundamentals, Techniques and Applications an a Femtosecond Time Scale), Academic Press, San Diego, 1996

Bech H., Leder A., 2004: „Particle sizing by ultrashort laser pulses – numerical simulation“. Optik 115, No. 5 (2004) 205-217

Hovenac E., Lock J.: „Assessing the contributions of surface waves and complex-rays to far-field Mie scattering by use of the Debye series“, J. Opt. Soc. Am. A. 9 (1992), 781-795

Bech H., Leder A., 2006-1: „Particle sizing by time-resolved Mie calculations – A numerical study“, Optik 117 (2006) 40-47

Bech H., Leder A., 2006-2: „Partikelcharakterisierung mittels zeitaufgelöster Streulichtanalyse“, 14. Fachtagung Lasermethoden in der Strömungsmesstechnik (GALA), Braunschweig 2006, 24/1-24/8