

Teilchengrößenmessung mittels zeitaufgelöster Streulichtanalyse – numerische Resultate für den Rückstreubereich

H. Bech, A. Leder

Universität Rostock, Fakultät für Maschinenbau und Schiffstechnik,
Institut für Maritime Systeme und Strömungstechnik,
Albert-Einstein-Str. 2, 18051 Rostock

Abstract

Bei Detektion im Rückstreubereich trifft maßgeblich Streulicht der Reflexion und der Brechung 2. Ordnung auf den Empfänger. Auf Grund unterschiedlich langer optischer Wege des Streulichtes beider Ordnungen ergibt sich eine messbare Zeitdifferenz, aus der bei Detektion unter gleichem Winkel die Größe transparenter Teilchen bestimmt werden kann.

In der numerischen Simulation werden als einfallendes Feld Femtosekunden-Laserpulse angesetzt und mittels Fourier-Transformation in den Frequenzbereich überführt. Mit jeder spektralen Komponente des Laserpulses erfolgt eine Mie-Streurechnung, in deren Ergebnis entweder das Gesamtstreulicht oder das Streulicht ausgewählter Streulichtordnungen erhalten werden kann. Die Separation einzelner Streulichtordnungen erfolgt mit Hilfe einer Dekomposition mittels Debye-Reihen. Über die Superposition der Teilergebnisse und die Rücktransformation in den Zeitbereich kann der Zeitablauf der Streulichtgenerierung analysiert werden. Im Detail wird der zeitliche Ablauf der pulsinduzierten Streulichtgenerierung für die Reflexion und die Brechung 2. Ordnung als Funktion des Detektionswinkels dargestellt. Bei bekannter Zeitdifferenz zwischen dem Erscheinen des Reflexionssignals und des Streulichtsignals der Brechung 2. Ordnungen kann die Teilchengröße ermittelt werden, wenn die zugehörige Weglängendifferenz des Streulichtes bekannt ist. Die optischen Weglängen werden als Funktion des Detektionswinkels mit Hilfe der geometrischen Optik berechnet.

Sowohl im zeitlichen Ablauf des pulsinduzierten Gesamtstreulichtes als auch im zeitlichen Ablauf separierter Streulichtordnungen treten Reflexe auf, die von Oberflächenwellen induziert werden. Unter bestimmten Bedingungen kann es dabei zu einer zeitlichen Überlagerung des Streulichtes von Oberflächenwellen mit dem Streulicht der Brechung 2. Ordnung kommen.

Einleitung

Wenn als einfallendes Feld für einen elastischen Streuprozess an einem sphärischen dielektrischen Teilchen ein sehr kurzer Laserpuls verwendet wird, treffen die unter einem bestimmten Winkel detektierten Signale der einzelnen Streulichtordnungen (Reflexion, Brechung 1. Ordnung, Brechung 2. Ordnung usw.) als zeitliche Abfolge an einem Empfänger ein. Da zwischen den optischen Wegdifferenzen des Streulichtes und den auftretenden Zeitdifferenzen über die Teilchengröße, den relativen Brechungsindex und die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum ein eindeutiger analytischer Zusammenhang besteht, kann bei bekanntem Brechungsindex die Teilchengröße aus den gemessenen Zeitdifferenzen bestimmt werden. Im Gegensatz zur PDA-Technik muss für die Empfängerstellung eine Position gefunden werden, bei der die Signale von aufeinander folgenden Streulichtordnungen mit annähernd gleicher Intensität zu messen sind. Abb.1 zeigt für ein ausgewähltes Teilchen (Brechungsindex $m=1.333$, Teilchendurchmesser $d_p=100 \mu\text{m}$) die

Verteilung der Streulichtintensität der Reflexion sowie der Brechung 1. und 2. Ordnung als Funktion des Detektionswinkels J . Die Separation der einzelnen Streulichtordnungen erfolgt mittels eines in die Mie-Theorie eingeführten Debye-Reihenansatzes.

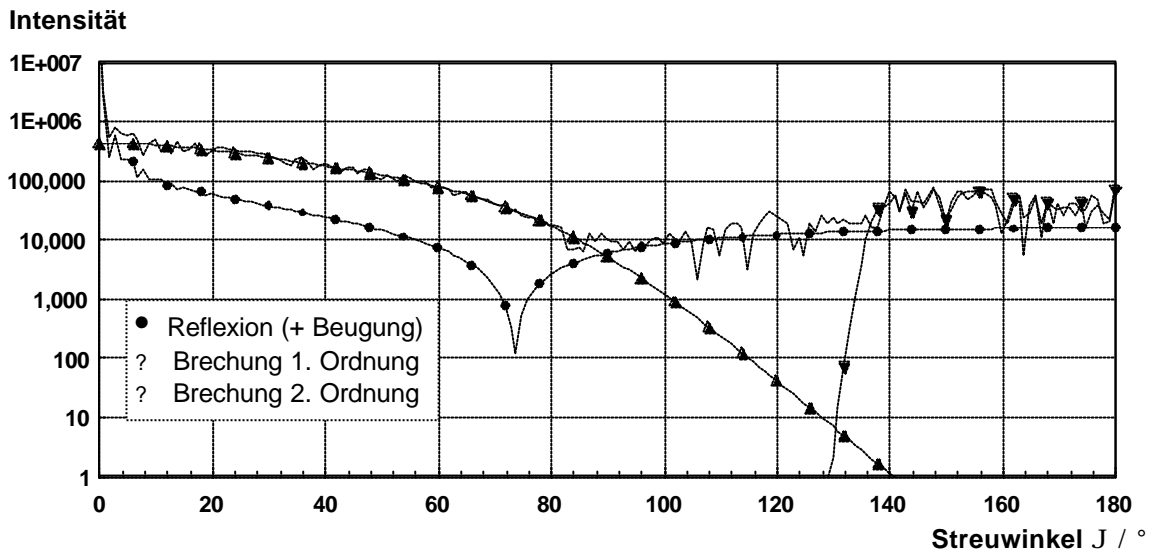


Abb. 1: Intensitätsverteilung einzelner Streulichtordnungen als Funktion des Streuwinkels (ohne Symbol: Mie-Lösung für das Gesamtstreulicht)

Aus Abb.1 ist ersichtlich, dass sich hinsichtlich der Detektierbarkeit der Zeitdifferenz zwischen der Reflexion und der Brechung 1. Ordnung auf Grund vergleichbarer Intensitäten eine Empfängerstellung bei $J=90^\circ$ anbietet, während für eine Detektion im Rückstreubereich (Ermittlung der Zeitdifferenz zwischen Reflexion und Brechung 2. Ordnung) Empfängerstellungen bei $140^\circ=J=180^\circ$ als günstig erscheinen.

Für die numerische Simulation der zeitaufgelösten Streulichtgenerierung wird die bekannte Fourier-Lorenz-Mie-Theorie (FLMT) dahin gehend erweitert, dass als einfallendes Feld das in den Frequenzbereich transformierte und in Abhängigkeit von Genauigkeitsanforderungen diskretisierte Spektrum eines fs-Laserpulses verwendet wird. Mit jeder Linie des Spektrums wird eine gesonderte Mie-Rechnung durchgeführt und die Teilergebnisse über eine Superpositionierung zum Gesamtstreulicht bzw. zum Anteil einer ausgewählten Streulichtordnung aufsummiert. Um die zeitliche Entwicklung der pulsinduzierten Lichtstreuung zu erhalten, muss noch die Rücktransformation in den Zeitbereich erfolgen.

In [1] sind numerische Resultate für die Teilchengrößenbestimmung durch Auswertung der Zeitdifferenz zwischen dem Erscheinen des Reflexionssignals und dem Streulichtsignal der Brechung 1. Ordnung dargestellt. Da für praktische Messaufgaben jedoch eine Detektion im Rückstreubereich von größerem Interesse ist, sollen nunmehr die Untersuchungen auf den Fall der Brechung 2. Ordnung ausgedehnt werden.

Strahlenwege der Brechung 2. Ordnung

Zur Berechnung der optischen Wegdifferenz zwischen der Brechung 2. Ordnung und der Reflexion wird von den in [1] dargestellten Verhältnissen für die Brechung 1. Ordnung ausgegangen. In Abb. 2 sind die Strahlenwege der Reflexion und der Brechung 1. und 2. Ordnung dargestellt. Für den Gangunterschied Δl_{R-B1} zwischen Reflexion und der Brechung 1. Ordnung ergibt sich der Ausdruck nach Gl. (1).

$$\Delta l_{R-B1} = d_p \cdot \left(\sin \frac{J_{B1}}{2} + \sqrt{1 + m^2 - 2 \cdot m \cdot \cos \frac{J_{B1}}{2}} \right) \quad (1)$$

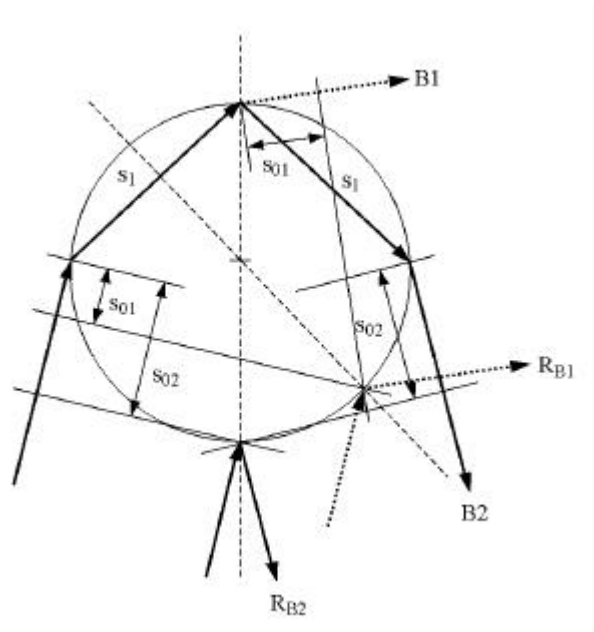


Abb. 2: Vergleich der optischen Weglängendifferenzen zwischen Brechung 1. Ordnung und Reflexion sowie zwischen Brechung 2. Ordnung und Reflexion

Bei vorgegebenem Detektionswinkel der Brechung 1. Ordnung J_{B1} kann der Detektionswinkel der Brechung 2. Ordnung J_{B2} nach Gl. (2) berechnet werden:

$$J_{B2} = J_{B1} + 2 \cdot a \cos \left(\frac{\sin \frac{J_{B1}}{2}}{\sqrt{1 + m^2 - 2 \cdot m \cdot \cos \frac{J_{B1}}{2}}} \right) \quad (2)$$

Aus dem Graphen dieser Funktion geht hervor, dass der Zusammenhang zwischen den beiden Detektionswinkeln J_{B1} und J_{B2} nicht eindeutig ist (Abb. 2).

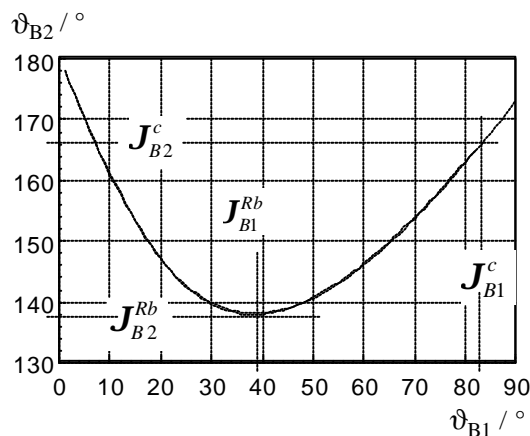


Abb. 3: Detektionswinkel J_{B2} als Funktion des Detektionswinkels J_{B1}

Jeweils zwei verschiedene Streuwinkel J_{B11} und J_{B12} führen zum gleichen Streuwinkel J_{B2} , was nichts anderes heißt, als dass zwei optische Wege möglich sind, um das Streulicht der 2. Brechungsordnung unter gleichem Winkel zu detektieren. $Min(J_{B2})$ repräsentiert den Regenbogenwinkel J_{B2}^{Rb} für die Brechung 2. Ordnung (vgl. [2]).

$$J_{B2}^{Rb} = 4 \cdot a \sin\left(\frac{\sin J_{iB2}^{Rb}}{m}\right) - p - 2 \cdot J_{iB2}^{Rb} \quad (3)$$

mit J_{iB2}^{Rb} als dem Einfallswinkel für den Regenbogenwinkel J_{B2}^{Rb} der Brechung 2. Ordnung.

$$J_{iB2}^{Rb} = a \cos\left(\sqrt{\frac{m^2 - 1}{3}}\right) \quad (4)$$

J_{B1}^c stellt nach der geometrischen Optik einen Grenzwinkel für den Lichtweg der Brechung 1. Ordnung dar, wodurch der Detektionsbereich der Brechung 1. Ordnung auf die Werte $0^\circ = J = J_c$ eingeschränkt wird (Abb. 4).

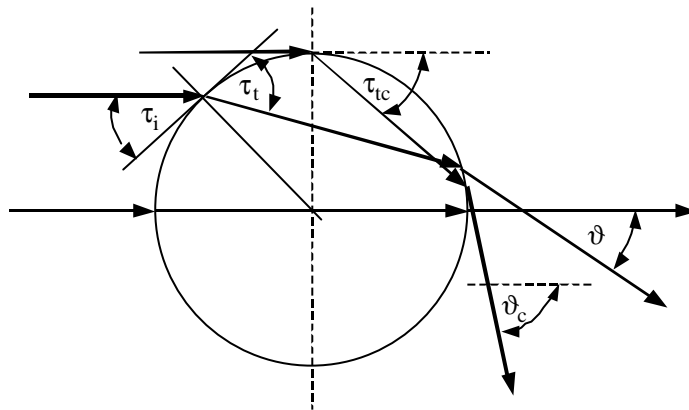


Abb. 4: Grenzwinkel für Brechung 1. Ordnung

Der bei streifendem Einfall entstehende Grenzwinkel t_{tc} hängt allein vom Brechungsindex m ab:

$$t_{tc} = a \cos \frac{1}{m}. \quad (5)$$

Wegen $J = 2 \cdot t_t$ ergibt sich der Grenzwinkel J_c der Brechung 1. Ordnung zu

$$J_c = 2 \cdot a \cos \frac{1}{m}, \quad (m=1.333: J_c=82.79^\circ). \quad (6)$$

Nach Abb. 2 ergibt sich die gesuchte Weglängendifferenz zwischen dem Signal der Brechung 2. Ordnung und dem zugehörigen Reflexionssignal zu

$$\Delta l_{R-B2} = 2 \cdot s_{02} + 2 \cdot s_1. \quad (7)$$

Unter Verwendung von Gl. (1) folgt damit als Weglängendifferenz zwischen der Reflexion und der Brechung 2. Ordnung der Ausdruck

$$\Delta l_{R-B2} = d_p \cdot \left(\sqrt{1 + m^2 - 2 \cdot m \cdot \cos \frac{J_{B1}}{2} + \sin \frac{J_{B2}}{2} + m \cdot \sin \frac{J_{B2} - J_{B1}}{2}} \right) \quad (8)$$

Beispiel:

$$d_p=100\mu\text{m}, m=1.333, J_{B2}=152^\circ$$

$$\text{Gl. (2): } J_{B11}=68^\circ, J_{B12}=15.85^\circ$$

$$\text{Gl. (8): } \Delta l_{R-B21}=261.5\mu\text{m}, \Delta l_{R-B22}=257.61\mu\text{m}$$

Diese Vorgehensweise verdeutlicht, dass es bezüglich der Brechung 2. Ordnung einen langen und einen kurzen Strahlenweg durch das Teilchen gibt. Nur bei Detektion unter dem Regenbogenwinkel J_{B2}^{Rb} fallen beide Strahlenwege aufeinander. Weiterhin muss für den langen Strahlenweg ein Grenzwinkel J_{B2}^c beachtet werden, der mit dem Grenzwinkel J_{B1}^c der Brechung 1. Ordnung korrespondiert:

$$J_{B2}^c = 2 \cdot J_{B1}^c. \quad (9)$$

Somit ist eine Detektion von Streulicht des langen Strahlenweges nur im Winkelbereich $J_{B2}^{Rb} = J_{B2} = J_{B2}^c$ möglich. Das Streulicht des kurzen Strahlenweges kann dagegen im gesamten Winkelbereich $J_{B2}^{Rb} = J_{B2} = 180^\circ$ detektiert werden.

Für ein ausgewähltes Beispiel ($m=1.333$, $J_{B2}=155^\circ$) sind in Abb. 5 die zu den beiden unterschiedlichen Weglängen gehörenden Strahlengänge eingezeichnet. Zusätzlich enthält Abb. 5 auch den Strahlengang, der zur Detektion unter dem Regenbogenwinkel führt. Weiterhin ist ersichtlich, wie sich mit Veränderung des Detektionswinkels J_{B2} auch die Lage des Reflexionspunktes verschiebt.

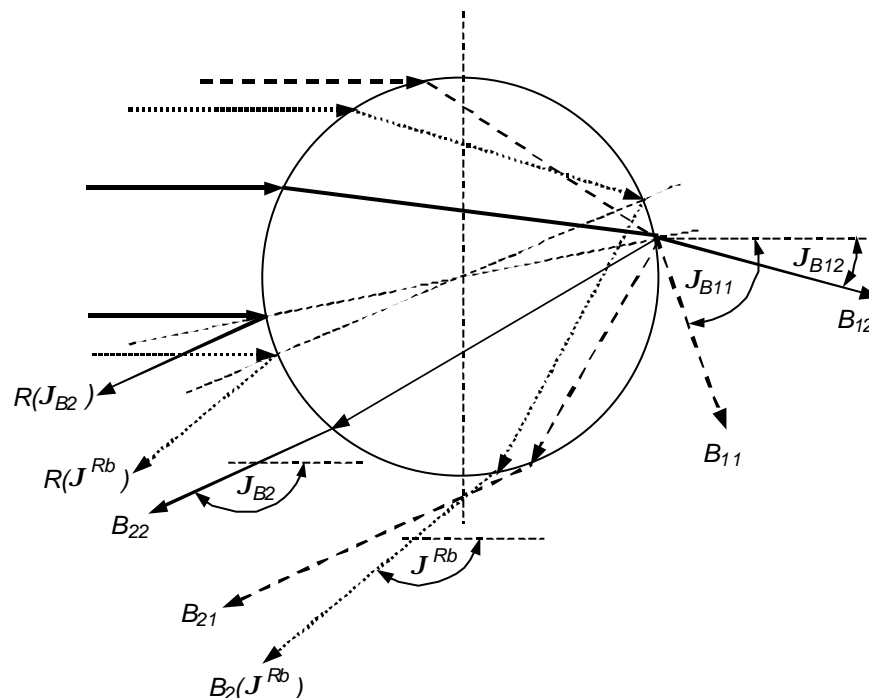


Abb. 5: Detektion im Rückstreubereich: Zwei Strahlen mit unterschiedlichen Weglängen (B_{22} durchgezogen, B_{21} gestrichelt) werden unter gleichem Winkel J_{B2} detektiert. Der punktiert eingezeichnete Strahl B_{2}^{Rb} tritt im Regenbogenwinkel J_{B2}^{Rb} aus dem Teilchen aus.

Die beiden unterschiedlichen Weglängendifferenzen Dl_{R-B2} der Strahlen B_{21} und B_{22} nach Abb. 5 sind in Abb. 6 als Funktion des Detektionswinkels J_{B2} für eine Teilchengröße $d_p=100\mu\text{m}$ dargestellt. Es ist ersichtlich, dass es bei gleichem Detektionswinkel zwei Weglängendifferenzen gibt, die jeweils aus dem kurzen und dem langen Lichtweg der Brechung 2. Ordnung resultieren. Bei Detektion unter dem Regenbogenwinkel fallen beide Weglängendifferenzen zusammen. Auffällig ist weiterhin die annähernd lineare Winkelabhängigkeit derjenigen Weglängendifferenz, die aus dem langen Strahlenweg resultiert.

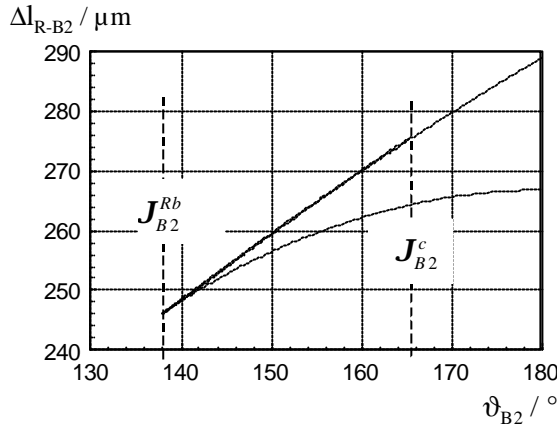


Abb. 6. Weglängendifferenzen Δl_{R-B2} als Funktion des Detektionswinkels J_{B2}

Für den Spezialfall $J_{B2}=180^\circ$ wird $J_{B1}=0^\circ$ und somit wird aus Gl. (8)

$$\Delta l_{R-B2} = d_p \cdot \left(\sqrt{1+m^2} - 2 \cdot m + 1 + m \right), \quad (10)$$

woraus das erwartete Ergebnis $\Delta l_{R-B2} = 2 \cdot m \cdot d_p$ folgt.

Für den Spezialfall der Detektion unter dem Regenbogenwinkel J_{B2}^{Rb} kann nachgewiesen werden, dass die Weglängendifferenz zwischen dem Reflexionssignal und dem Signal der Brechung 2. Ordnung ein Minimum annimmt und damit der optisch kürzeste Lichtweg durch das Teilchen realisiert wird [3]. Folglich ist der Regenbogenwinkel der Brechung 2. Ordnung der Detektionswinkel, unter dem das Licht das Teilchen im Rückstreubereich unter der Bedingung verlässt, dass die Zeitdifferenz zwischen dem Reflexionssignal und dem Signal der Brechung 2. Ordnung ein Minimum ist.

Neben der Weglängendifferenz nach Gl. (8) muss für eine Teilchengrößenbestimmung noch die zugehörige Zeitdifferenz Δt_{R-B2} berechnet werden. Diese Rechnungen werden mit Hilfe einer erweiterten Mie-Theorie durchgeführt.

Zeitaufgelöste Streulichtanalyse der Brechung 2. Ordnung mittels Mie-Theorie

Aus Abb. 6 geht hervor, dass im Ergebnis der Mie-Rechnungen für die Brechung 2. Ordnung im Detektionsbereich $J_{B2}^{Rb}=J_{B2}=J_{B2}^c$ zwei Zeitsignale zu erwarten sind, die dem kurzen und dem langen Strahlenweg der Brechung 2. Ordnung entsprechen. Im Winkelbereich $J_{B2}^c=J_{B2}=180^\circ$ dürfte nur ein Zeitsignal auftreten. Die Ergebnisse der zeitaufgelösten Mie-Rechnungen zeigen aber deutlich, dass diese aus der geometrischen Optik abgeleiteten Annahmen das physikalische Geschehen nur unvollständig beschreiben, zumal die Streulichtwirkung der Oberflächenwellen in der Beschreibung nach der geometrischen Optik nicht enthalten ist.

Die Winkelabhängigkeit der Zeitsignale, die durch eine zeitaufgelöste Mie-Rechnung für den Fall der Brechung 2. Ordnung erhalten wird, ist in Abb. 7 für den Bereich $180^\circ=J_{B2}=160^\circ$ dargestellt ($t_p=10fs$, $d_p=200\mu m$, $m=1.555$). Der Regenbogenwinkel liegt in diesem Fall bei $J_{B2}^{Rb}=161.77^\circ$. Im Gegensatz zur geometrischen Beschreibung werden im Winkelbereich $J_{B2}^{Rb}=J_{B2}<180^\circ$ drei Streulichtsignale beobachtet, die sich durch unterschiedliches Zeitverhalten auszeichnen.

Für die Teilchengrößenbestimmung wird die Zeitdifferenz Δt_{R-B2} zwischen den Signalen der Brechung 2. Ordnung und dem Reflexionssignal (in Abb. 17 nicht dargestellt) ausgenutzt. Die sich so ergebenden Zeitverläufe sind in Abb. 18 als Funktion des Detektionswinkels J_{B2} dargestellt.

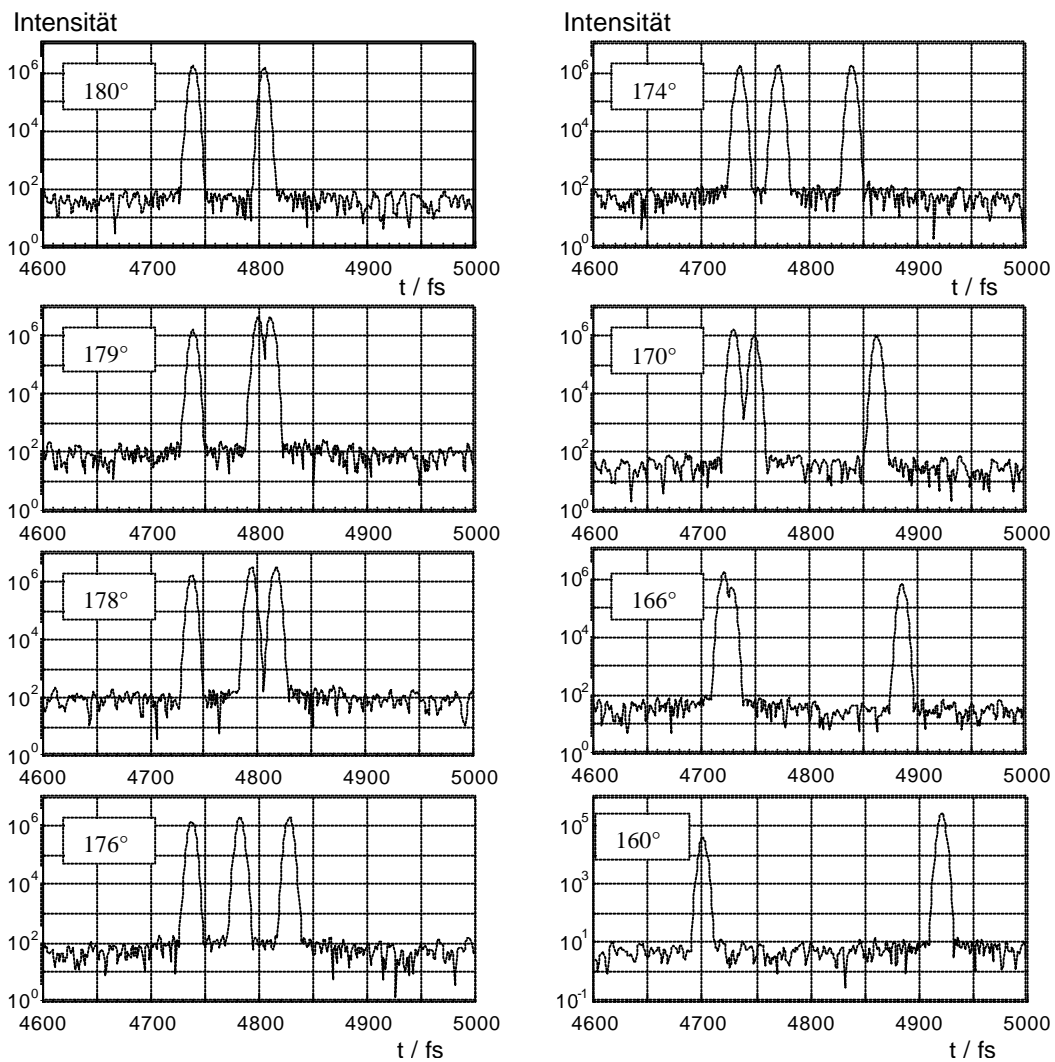


Abb.7: Zeitlicher Ablauf der Streulichtgenerierung der Brechung 2. Ordnung im Ergebnis einer Mie-Rechnung, ($t_p=10\text{fs}$, $d_p=200\mu\text{m}$, $m=1.555$)

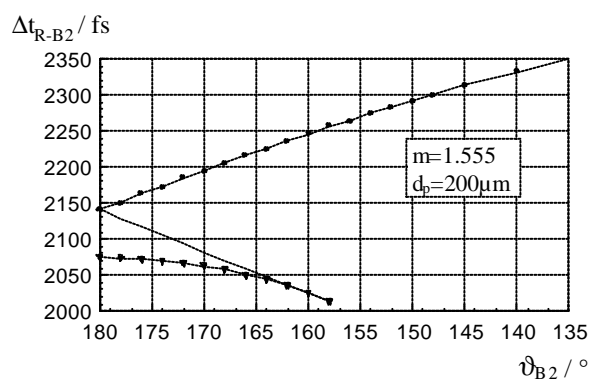


Abb. 8: Zeitverhalten der Streulichtsignale der Brechung 2. Ordnung im Ergebnis der zeit aufgelösten Mie-Rechnung, $m=1.555$ (Δt_{R-B2} : Zeitdifferenz zwischen Reflexion und Brechung 2. Ordnung)

Abb. 8 repräsentiert zugleich das typische Zeitverhalten für den Fall der Brechung 2. Ordnung. Der untere Kurvenzug (?), der zeitlich am frühesten und im Winkelbereich $180^\circ = \mathbf{J}_{B2} = \mathbf{J}_{B2}^{Rb}$ erscheint, wird durch den kurzen Strahlenweg gebildet. Der annähernd linear verlaufende mittlere Kurvenzug entsteht aus einer Überlagerung von Oberflächenwellen und Streulicht des langen Strahlweges der Brechung 2. Ordnung (vgl. Abb. 6). Der obere Kurvenzug (•) wird ausschließlich durch Streulicht von Oberflächenwellen verursacht, die in entgegengesetzter Richtung um das Teilchen herumlaufen. Zur Teilchengrößenbestimmung können die Zeitsignale des kurzen und des langen Strahlenweges der Brechung 2. Ordnung im Winkelbereich $180^\circ = \mathbf{J}_{B2} = \mathbf{J}_{B2}^{Rb}$ genutzt werden. Unter Verwendung von Gl. (8) folgt für die Teilchengröße d_p die Bestimmungsgleichung

$$d_p = \Delta t_{R-B2} \cdot \frac{0.3}{\sqrt{1 + m^2 - 2 \cdot \cos\left(\frac{\mathbf{J}_{B1}}{2}\right) + \sin\left(\frac{\mathbf{J}_{B2}}{2}\right) + m \cdot \sin\left(\frac{\mathbf{J}_{B2} - \mathbf{J}_{B1}}{2}\right)}} \quad (11)$$

([Δt]=fs, [d_p]= μm).

In Gl. (11) stellt Δt_{B21} die im Ergebnis der Mie-Rechnungen erhaltene Zeitdifferenz zwischen dem Erscheinen des Reflexionssignals und einem Signal der Brechung 2. Ordnung dar. Der zweite Faktor enthält neben der Vakuumlichtgeschwindigkeit $c_0 = 0.3 \mu\text{m/fs}$ die mittels geometrischer Optik berechnete zugehörige Weglängendifferenz.

Das Zeitverhalten der Streulichtsignale, die durch Oberflächenwellen generiert werden, kann ebenfalls für eine Teilchengrößenbestimmung ausgewertet werden. Diesbezüglich sind in [3] die Resultate numerischer Untersuchungen ausführlich dargestellt. Experimentelle Ergebnisse zur Teilchengrößenmessung unter Anwendung von fs-Laserpulsen und Kurzzeitesstechnik sind erstmalig in [4] vorgestellt.

Zusammenfassung

Aus dem Zeitablauf der pulsinduzierten Streulichtgenerierung kann die Teilchengröße bestimmt werden, wenn die optischen Wege der signalerzeugenden Strahlen bekannt sind. Am Beispiel der Brechung 2. Ordnung wurde aufgezeigt, dass sich die Weglängendifferenzen bei Kenntnis des Brechungsindex allein als Funktion des Detektionswinkels ermitteln lassen.

Der zeitliche Ablauf der Streulichtentstehung wurde mit einer erweiterten Mie-Theorie berechnet. Dabei erscheinen neben den Signalen der ausgewählten Streulichtordnungen auch Streulichtsignale, die durch Oberflächenwellen verursacht werden.

Literatur

- [1] Bech, H., Leder A.: Numerische Untersuchungen zur Streuung von fs-Laserpulsen an sphärischen Teilchen unter dem Aspekt der Teilchengrößenmessung. In Dopheide, D., Müller, H., Strunck, V., Ruck, B., Leder, A. (Herausgeber): Lasermethoden in der Strömungsmesstechnik, 11. Fachtagung (GALA) 2003, 37.1-37.7
- [2] Albrecht H, Borys M, Damaschke N, Tropea C: Laser Doppler and Phase Doppler Measurement Techniques. Springer-Verlag Berlin Heidelberg 2003
- [3] Bech, H., Leder, A.: Particle sizing by ultrashort laser pulses – numerical simulation, Optik- International Journal for Light and Electron Optics, No.5, vol. 115, 2004
- [4] Schultz, M., Zeitaufgelöste Streuung ultrakurzer Laserpulse an Mikrokugeln, Diplomarbeit am FB Physik, Universität Rostock, 2004