

SIMULTANE BESTIMMUNG VON TEILCHENGRÖSSE UND BRECHUNGSINDEX MITTELS ZEITAUFGELÖSTER STREULICHT-ANALYSE

SIMULTANEOUS DETERMINATION OF PARTICLE SIZE AND REFRACTIVE INDEX BY TIME RESOLVED ANALYZING OF SCATTERED LIGHT

Heinrich Bech, Alfred Leder

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

Zeitaufgelöste Mie-Streuung, Debye-Reihen, Streulichtordnungen, Brechungsindex, Geometrische Optik
Time resolved Mie scattering, Debye-series, Orders of scattered light, Refractive index, Geometric optics

Zusammenfassung

Die pulsinduzierte Streulichterzeugung an einem Einzelteilchen führt bei zeitaufgelöster Auswertung zu einer Abfolge von Streulichtsignalen einzelner Streulichtordnungen. Bei einer Detektion unter einem Streuwinkel $\theta=90^\circ$ dominieren Reflexion, Brechung 1. Ordnung und Brechung 3. Ordnung. Der zeitliche Abstand zwischen diesen Signalen ist sowohl ein Maß für die Teilchengröße als auch für den Brechungsindex des Teilchenmaterials. Bei Kenntnis des Brechungsindex kann bereits aus der Zeitdifferenz zwischen dem Reflexionssignal und dem Signal der Brechung 1. Ordnung die Teilchengröße bestimmt werden. Aus dem Verhältnis der Zeitdifferenzen Reflexion – Brechung 1. Ordnung und Reflexion – Brechung 3. Ordnung wird die Teilchengröße eliminiert und der Brechungsindex kann ohne Kenntnis der Teilchengröße bestimmt werden. Die numerischen Resultate der zeitaufgelösten Mie-Streuung werden durch eine Analyse der Strahlengänge der Brechung 3. Ordnung mit Hilfe von Modellen der geometrischen Optik verifiziert.

Einleitung

Die elastische Streuung eines ultrakurzen Laserpulses an einem sphärischen transparenten Teilchen (Mie-Streuung [1], [2], [3]) erzeugt auf der fs-Zeitskala eine Abfolge von Streulichtsignalen, die in zeitlicher Reihenfolge die Wechselwirkung des einfallenden fs-Laserpulses mit dem Teilchen darstellt. Alle in der Mie-Lösung enthaltenen Streulichtordnungen (Reflexion, Brechung 1. und höherer Ordnungen, Beugung und Oberflächenwellen) können in Abhängigkeit von gewählten Streuwinkel zu unterschiedlichen Zeiten, die den spezifischen Wegen des Lichtes durch das Teilchen entsprechen, bei ausreichender Intensität detektiert werden.

Wenn der Streuwinkel so gewählt wird, dass wenigstens zwei dominierende Streulichtordnungen detektiert werden, kann aus der Zeitdifferenz zwischen den beiden Streulichtsignalen die Teilchengröße bestimmt werden. Im Vorwärtsstrebereich wird dazu die Zeitdifferenz zwischen der Reflexion und der Brechung 1. Ordnung ausgewertet (Abb. 1a). Bei Detektion im Rückstrebereich ist die Teilchengröße aus der Zeitdifferenz zwischen dem Reflexionssignal und dem Signal der Brechung 2. Ordnung bei Berücksichtigung der Besonderheiten des Regenbogens zu berechnen (Abb. 1b) [4]. Neben der Kenntnis, um welche Streulichtordnungen es sich bei den detektierten Signalen handelt, wird hierbei vorausgesetzt, dass der Brechungsindex des Teilchens bekannt ist. Wenn jedoch eine Detektorposition gewählt

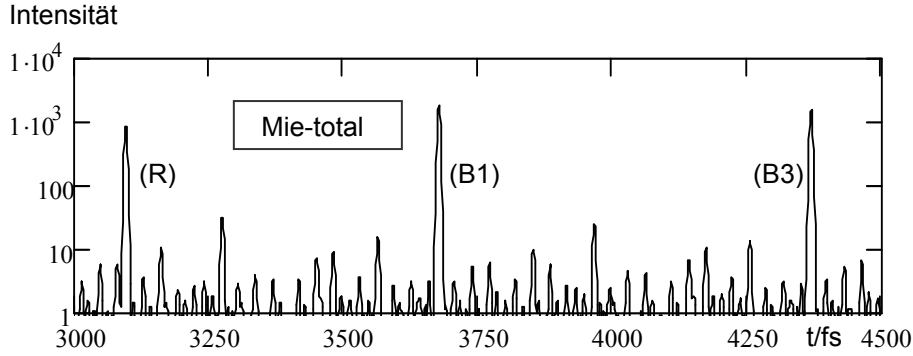


Abb. 3: Zeitaufgelöstes Ergebnis für das Gesamtstreulicht (Mie-total) nach Abb. 2 für $\theta=90^\circ$, R: Reflexion, B1: Brechung 1. Ordnung, B3: Brechung 3. Ordnung, ($d=100\mu\text{m}$, $m=1.466$, $\lambda=825\text{nm}$)

Im Falle einer messtechnischen Realisierung steht für die gewünschte Teilchencharakterisierung (Teilchendurchmesser und Brechungsindex) ein Resultat nach Abb. 3 zur Verfügung (zwei Zeitintervalle und der Detektionswinkel θ), verbunden mit dem Wissen, von welchen Streulichtordnungen die detektierten Signale verursacht wurden. Durch die Nachbildung der betreffenden Strahlengänge mittels geometrischer Modelle können die zugehörigen optischen Weglängen bestimmt werden.

Brechung 3. Ordnung im Rahmen der geometrischen Optik

Bei der Brechung 3. Ordnung erfährt der einfallende Strahl die Gesamtdrehung $\theta'=6\tau_i-2\tau_i$ (Abb. 4). Der Streuwinkel der Brechung 3. Ordnung θ_{B3} ergibt sich als Ergänzung zu $\theta=2\pi$, $\theta_{B3}=2\pi-(6\tau_i-2\tau_i)$.

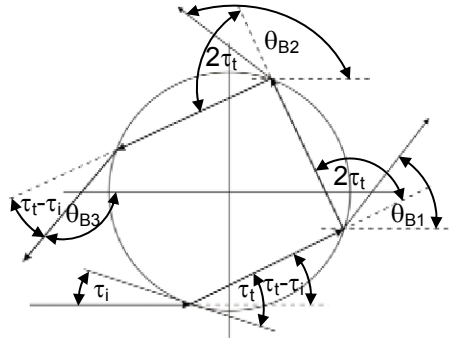


Abb. 4: Strahlengang der Brechung 3. Ordnung, ($m=1.33$, $\theta_{B3}=129.89^\circ$)

Wegen $\theta_{B1}=2(\tau_i-\tau_i)$ und $\theta_{B2}=2(2\tau_i-\tau_i)$ folgt mit $\tau_i := \text{acos} \left(\frac{\sin\left(\frac{\theta_{B1}}{2}\right)}{\sqrt{1+m^2-2m\cos\left(\frac{\theta_{B1}}{2}\right)}} \right)$ (1)

für den Streuwinkel θ_{B3} der Brechung 3. Ordnung als Funktion des Streuwinkels θ_{B1} der Brechung 1. Ordnung [7]

$$\theta_{B3} := 2\pi - \theta_{B1} - 4 \cdot \text{acos} \left(\frac{\sin\left(\frac{\theta_{B1}}{2}\right)}{\sqrt{1+m^2-2m\cos\left(\frac{\theta_{B1}}{2}\right)}} \right) \quad (2)$$

Der Verlauf von θ_{B3} als Funktion von θ_{B1} ist in Abb. 5 für verschiedene Werte des Brechungsindex m dargestellt. Dabei ist zu beachten, dass sich Lösungen für θ_{B3} nur im Bereich

$$\Delta l_1 := d \cdot \left(\sin\left(\frac{\theta_{B1}}{2}\right) + \sqrt{1 + m^2 - 2 \cdot m \cdot \cos\left(\frac{\theta_{B1}}{2}\right)} \right) \quad (4)$$

$$\Delta l_2 := \Delta l_1 + d \cdot \left(\sin\left(\frac{\theta_{B2}}{2}\right) - \sin\left(\frac{\theta_{B1}}{2}\right) + m \cdot \sin\left(\frac{\theta_{B2} - \theta_{B1}}{2}\right) \right) \quad (5)$$

Dabei ist der Zusammenhang zwischen θ_{B2} und θ_{B1} durch Gl. (6) gegeben.

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

Aus dem Ansatz $\Delta l_3 = \Delta l_2 + (\Delta l_3 - \Delta l_2)$ folgt mit gleicher Struktur wie Gl. (5)

$$\Delta l_3 := \Delta l_2 + d \cdot \left[\sin\left(\frac{\theta_{B3}}{2}\right) - \sin\left(\frac{\theta_{B2}}{2}\right) + m \cdot \sin\left(\frac{\theta_{B2} - \theta_{B1}}{2}\right) \right] \quad (7)$$

Einsetzen von (5) in (7) führt schließlich auf

$$\Delta l_3 := d \cdot \left(\sqrt{1 + m^2 - 2 \cdot m \cdot \cos\left(\frac{\theta_{B1}}{2}\right)} + 2 \cdot m \cdot \sin\left(\frac{\theta_{B2} - \theta_{B1}}{2}\right) + \sin\left(\frac{\theta_{B3}}{2}\right) \right) \quad (8)$$

Vergleich zwischen geometrischer Optik und zeitaufgelöster Mie-Rechnung

Der Vergleich erfolgt an einem ausgewählten Beispiel für $m=1.33$ und Detektion unter dem Regenbogenwinkel der Brechung 3. Ordnung $\theta_{B3}=129.89^\circ$.

Abb. 7 zeigt die Abhängigkeit $\theta_{B3}=f(\theta_{B1})$ für $m=1.33$ (siehe auch Abb. 5).

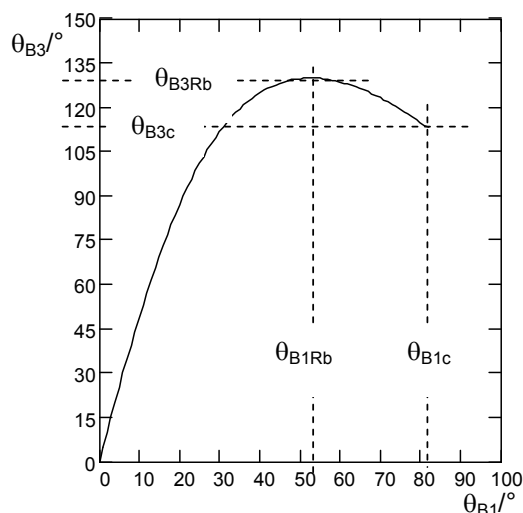


Abb. 7: Streuwinkel der Brechung 3. Ordnung θ_{B3} als Funktion des Streuwinkels der Brechung 1. Ordnung θ_{B1} , $m=1.33$, $\theta_{B1Rb}=52.62^\circ$, $\theta_{B3Rb}=129.89^\circ$, $\theta_{B1c}=82.49^\circ$, $\theta_{B3c}=112.52^\circ$

Der Regenbogenwinkel θ_{Rb} (jeder beliebigen Streulichtordnung) lässt sich nach Gl. (9) berechnen, (Brechung 3. Ordnung: $N=4$) [8].

1. Ordnung und dem Reflexionssignal verwendet (Abb. 9). Die optische Weglängendifferenz für das Signal der Brechung 1. Ordnung wird durch Gl. (4) beschrieben.

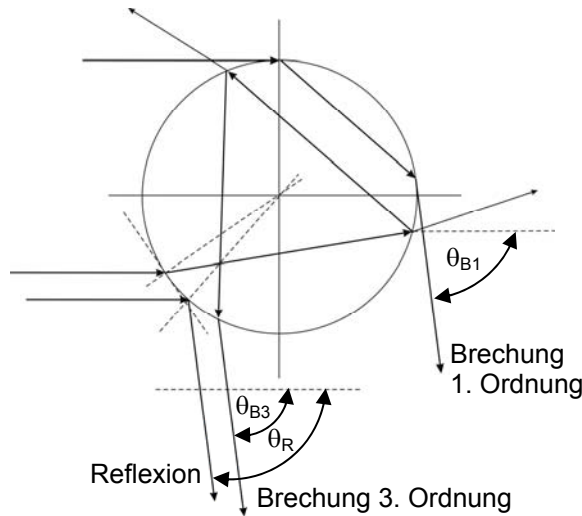


Abb. 9: Auswertesituation zur simultanen Bestimmung von Brechungsindex und Teilchengröße ($\theta_{B1}=\theta_{B3}=\theta_R=82.49^\circ$)

Die Division der Gleichungen (8) und (4) ergibt einen konstanten Quotienten Q , der die Teilchengröße nicht mehr enthält und nur noch vom Brechungsindex m und bekannten Streuwinkeln θ_{B1} , θ_{B2} , θ_{B3} abhängt.

$$Q := \frac{\sqrt{1 + m^2 - 2 \cdot m_1 \cdot \cos\left(\frac{\theta_{B1}}{2}\right) + 2 \cdot m \cdot \sin\left(\frac{\theta_{B2} - \theta_{B1}}{2}\right) + \sin\left(\frac{\theta_{B3}}{2}\right)}{\sin\left(\frac{\theta_{B3}}{2}\right) + \sqrt{1 + m^2 - 2 \cdot m_1 \cdot \cos\left(\frac{\theta_{B3}}{2}\right)}} \quad (11)$$

θ_{B3} ist der vorgegebene Detektionswinkel. Die Abhängigkeiten der Winkel θ_{B1} und θ_{B2} von θ_{B3} sind durch Gl. (2) und Gl. (6) gegeben.

Der Algorithmus soll für den in Abb. 9 gezeigten Fall vorgestellt werden (streifender Einfall für den Strahl, der das Signal der Brechung 1. Ordnung liefern soll).

Für $m=1.33$ ergibt sich nach der geometrischen Optik bei streifendem Einfall der Grenzwinkel der Brechung 1. Ordnung $\theta_{B1c}=82.49^\circ$, ($\tau_{tc} = \arccos(1/m)$ und $\theta_{B1c}=2 \cdot \arccos(1/m)$). Das zeitaufgelöste Ergebnis der Mie-Rechnung ($d=100\mu\text{m}$, $m=1.33$, $\theta=82.49^\circ$) ist in Abb. 10 dargestellt.

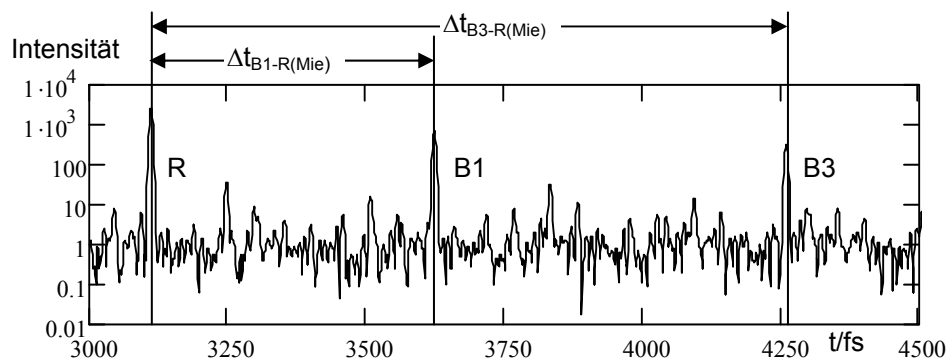


Abb. 10: Ergebnis der zeitaufgelösten Mie-Rechnung für $d=100\mu\text{m}$, $m=1.33$, $\theta=82.493^\circ$ ($t_R=3113.5\text{fs}$, $t_{B1}=3625.5\text{fs}$, $t_{B3}=4262\text{fs}$)

Mit den Zeitdifferenzen $\Delta t_{B3-R(Mie)}=1148.5\text{fs}$ und $\Delta t_{B1-R(Mie)}=512\text{fs}$ ergibt sich der Quotient Q zu $Q_{Mie}=2.243$. Die nach Gl. (11) erforderlichen Streuwinkel θ_{B1} und θ_{B2} können in Abhängigkeit

Streulicht der Brechungsordnungen auch das Streulicht von Oberflächenwellen enthalten ist [9]. So kann mit den Ergebnissen der zeitaufgelösten Mie-Rechnungen die Auswertefläche auf den gesamten Bereich $1.10 \leq m \leq 1.60$ und $75^\circ \leq \theta \leq 90^\circ$ ausgedehnt werden. Die zweidimensionale Funktion $Q_{\text{Mie}}(m, \theta)$ ist in Abb. 11 dargestellt. Sie ermöglicht bei Kenntnis des Detektionswinkels und durch Messung der Zeitdifferenzen zwischen dem Reflexionssignal und dem Brechungssignal 1. Ordnung und zwischen Reflexionssignal und Brechungssignal 3. Ordnung eine präzise Bestimmung des Brechungsindex.

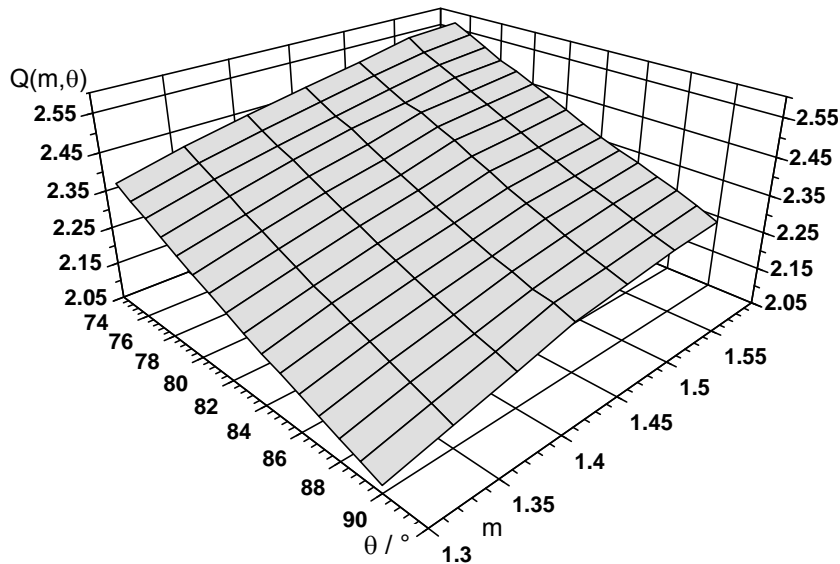


Abb. 11: Quotient $Q_{\text{Mie}}(m, \theta)$ als Funktion des Brechungsindex m und des Detektionswinkels θ , $1.1 \leq m \leq 1.6$, $75^\circ \leq \theta \leq 90^\circ$

Dankesworte

Die Autoren danken der Deutschen Forschungsgemeinschaft DFG 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

- [1] van de Hulst, H. C., 1981: "Light Scattering by small particles", Dover Publications, Inc., New York
- [2] Bohren, C. F., Huffman, DR., 1993: "Absorption and Scattering of Light by small Particles", John Wiley & Sons, New York
- [3] Diels, J. C., 1996: "Ultrashort Laser Pulse Phenomena (Fundamentals, Techniques and Applications on a Femtosecond Time Scale)", Academic Press, San Diego
- [4] Bech, H., Leder, A., 2006: "Particle sizing by time-resolved Mie calculations – A numerical study", OPTIK, 117, pp. 40-47
- [5] Hovenac, E., Lock, J., 1992: "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, pp. 781-795
- [6] Bech, H., Leder, A., 2006: "Partikelcharakterisierung mittels zeitaufgelöster Streulichtanalyse", 14. Fachtagung Lasermethoden in der Strömungsmesstechnik (GALA 2006, Braunschweig), pp. 24/1-24/8
- [7] Bech, H., Leder, A., 2004: "Particle sizing by ultrashort laser pulses – numerical simulation", OPTIK, 115, No. 5, pp. 205-217
- [8] Albrecht, H.-E., Borys, M., Damaschke, N., Tropea, C., 2003: "Laser Doppler and Phase Doppler Measurement Techniques", Springer, Berlin Heidelberg
- [9] Bech, H., Leder, A., 2009: "Simultaneous determination of particle size and refractive index by time resolved Mie-scattering", accepted for publication in OPTIK 05.05.2009