

基于激光悬浮的单颗微米粒子/纳米团簇的散射强度分布测量*

黄雪峰¹⁾ 陈鑫¹⁾ 李嘉欣²⁾ 张敏琦¹⁾ 李盛姬^{2)†}

1) (杭州电子科技大学物理系, 杭州 310018)

2) (杭州电子科技大学材料与工程学院, 杭州 310018)

(2023年4月1日收到; 2023年6月6日收到修改稿)

为了探索微/纳米粒子的散射特性, 提出采用贝塞尔光束悬浮和散射测量耦合的方法搭建悬浮散射测试系统装置, 对单颗微米粒子/纳米团簇的散射强度分布进行精确测量. 首先利用两束反向传输的贝塞尔光束对多种类型和尺寸的粒子/团簇进行悬浮, 判定粒子的悬浮稳定性; 然后对悬浮粒子以 9.2° 的角分辨率在平面 2π 角度内的散射强度分布进行测量. 模拟计算了激光作用下粒子的受力以及不同参数粒子的散射强度分布, 并与实验结果进行对比, 深入地分析了环境因素对散射测试系统不确定度的干扰程度, 详细讨论了悬浮不稳定性对散射测量结果的影响. 研究表明, 反向传输的贝塞尔光束可对金属镁、铝和石墨等粒子/团簇进行稳定悬浮, 其相对不稳定性小于0.15, 悬浮过程中光泳力起主导作用; 单颗微米粒子/纳米团簇的散射强度分布符合Mie粒子散射特征, 折射率虚部大的粒子具有更强的前向散射特性, 粒子尺寸参数越大, 则前向散射作用越强. 单颗微粒散射强度分布的精确测量证实了悬浮散射测试系统的通用性和可靠性, 为深入认识物质散射特性提供了一种新的研究手段.

关键词: 激光悬浮, Mie 散射, 单颗微粒, 纳米团簇

PACS: 42.62.-b, 42.25.Fx

DOI: 10.7498/aps.72.20230499

1 引言

散射是一种光与物质相互作用的重要现象, 利用光散射法可对颗粒物浓度、粒子物理化学属性进行测量, 并已广泛应用于大气环境、污染物排放^[1,2]、水质评估、分散稳定性、生物组织活性及特性^[3-5]等方面的研究. 传统散射测量多面向多粒子系统, 而今结合光镊技术可实现对单颗粒子散射特性的研究. Collins等^[6]测量了微米级聚苯乙烯小球和红细胞的弹性光散射特性, 发现捕获的聚苯乙烯小球的稳定性比红细胞更好, 但捕获红细胞的光散射强度比聚苯乙烯小球的弱.

除在液相介质中捕获微/纳米粒子进行散射测量外, 在气相介质中悬浮粒子并进行散射测量有助于深入对光线传输、激光探测、燃烧辐射以及大气环境等的认识. 测量气相介质中悬浮微/纳米粒子的散射特性, 首先需要稳定悬浮微/纳米粒子. Ashkin^[7]首次报道了空气中液滴的光学控制, 通过平衡辐射压力和重力, 悬浮了空气中尺寸小于 $1\ \mu\text{m}$ 的甘油液滴, 结合拉曼光谱来表征单个气溶胶或者生物气溶胶颗粒特性. Omori等^[8]使用激光捕捉空气中的颗粒进行了详细观测. Michael等^[9]研究了空气中液滴的光诱导操作, 并通过控制光场来改变液滴轨迹.

Huisken和Stelzer^[10]采用高斯光束对空气中

* 国家自然科学基金(批准号: 52027809, 51976050)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: shengjili@hdu.edu.cn

一定吸光性粒子进行悬浮, 结果表明高强度汇聚的高斯光束虽然可以容易地悬浮金属氧化物, 但在横向上的稳定性并不理想. 而后, Meresman 等^[11]利用无衍射的零阶贝塞尔光束, 成功地捕获和操控空气中微米及亚微米级的气溶胶粒子, 并实现了垂直空间 2.8 mm 范围内的传输. Pan 等^[12]利用锥透镜生成了两束反向传输空心光束获得了稳定的三维势阱, 对空气中碳纳米管团簇进行了稳定捕获. Gong 等^[13]研究了不同参数的入射激光形式对粒子悬浮的影响, 结果表明在入射光功率不变的情况下, 空心光束对粒子悬浮的效率较高且粒子稳定性更好. 在激光悬浮的基础上, 许多研究人员对悬浮粒子进行激光诱导产生荧光或拉曼信号以检测微粒的化学性质^[12,14]. 黄雪峰等^[15]利用光镊技术研究了介观尺度下固体燃料微粒的燃烧现象, 实现对活性炭微粒的捕捉、悬浮、定位, 再通过激光点燃, 获得其着火及扩散燃烧特性.

综上所述, 对于在气相介质中悬浮粒子的散射强度分布测量研究相对较少. 为了精确测量粒子的散射强度分布, 需要满足两个条件: 1) 粒子稳定悬浮; 2) 以高的角分辨率对同一平面内周向散射进行精确测量. 当入射光方向恒定, 悬浮粒子发生较大波动或散射接收在不同平面时, 则实际散射接收角相较于理论散射角产生偏差, 进而反演计算粒子物性参数(粒径、介电特性等)时带来较大的误差. 因此, 本文提出采用激光悬浮方法, 对稳定悬浮的单颗微米粒子或纳米团簇的散射强度分布测量进行研究, 主要包括: 研究两束反向传输的贝塞尔激光束悬浮单颗微米金属粒子/纳米金属或石墨团簇

的稳定性, 利用同一悬浮系统实现强反射性和强吸收性介电特性的粒子/团簇的稳定悬浮; 设计并搭建了耦合悬浮系统和粒子散射的测量装置, 对平面 2π 方向上的散射光强分布进行测量, 对散射测量的不确定度进行了深入讨论; 结合 Mie 散射理论, 分析和讨论不同种类、不同尺度、不同球形度粒子的散射特性差异, 为激光悬浮粒子散射特性的研究提供参考.

2 实验系统装置及方法

2.1 实验系统装置

激光悬浮微米粒子/纳米团簇和散射强度分布测量的实验装置示意图如图 1(a) 所示, 包括激光悬浮部分和散射测量部分. 悬浮用半导体激光器(长春新产业光电技术有限公司, 波长 532 nm, 模式 TEM₀₀, 功率 2 W) 出射的激光首先经过反射调整后进入锥透镜, 将高斯光束转变为贝塞尔光束; 然后通过半波片、偏振棱镜、全反镜产生两束反向传输的贝塞尔光束, 并保持对称; 最后通过平凸透镜和长焦物镜将光束高倍压缩, 生成微米尺度的瓶颈光阱, 用于捕捉和悬浮微米粒子/纳米团簇. 高速摄像机(美国 Vision Research 公司, VEO E310L) 以 10000 f/s 的帧率拍摄悬浮粒子/团簇的运动行为. 散射测量用氩氦激光器(美国 Thorlabs 公司, 波长 632.8 nm, 模式 TEM₀₀, 偏振比为 500:1, 功率 10 mW) 出射的激光经过准直后作用于待测量粒子/团簇, 散射光通过透镜光纤接收后进入光电倍增管进行光电转换, 然后对电信号进行采集、平滑、滤波等处理.

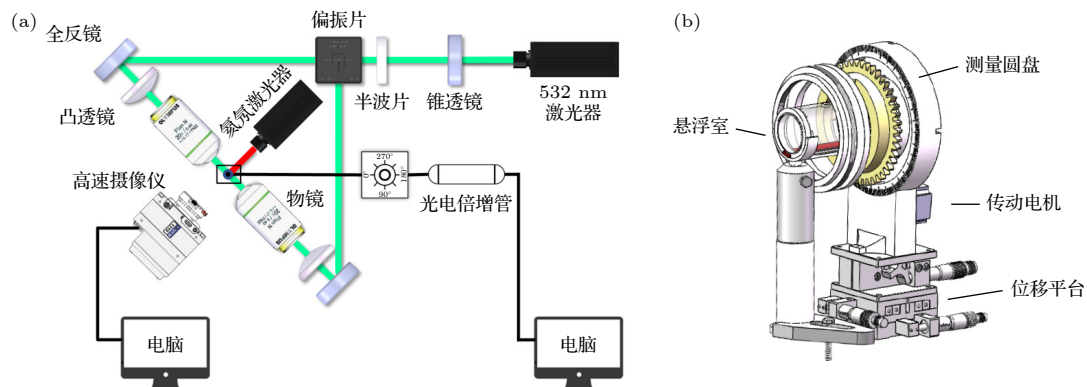


图 1 激光悬浮的微粒粒子/纳米团簇散射光强分布测量实验装置示意图 (a) 光学结构; (b) 机械结构

Fig. 1. Schematic of experimental setup for measuring scattered light intensity distribution of laser levitated microparticles/nanoclusters: (a) The optical structure; (b) the mechanical structure.

为了测量粒子/团簇对入射光束产生的空间光强分布,设计了如图 1(b) 所示的散射自动测量机构,包括悬浮室、位移平台、传动电机和测量圆盘等. 悬浮室用于给粉和密封,减弱空气流动对悬浮粒子/团簇稳定性的影响;位移平台用于调节接收光纤的位置,使其与入射的氦氖激光处于同一平面;传动电机及配合机构用于转动接收光纤,使得接收光纤在同一平面内转动 2π 角度,散射角分辨率达到 $9.2''$,完成包括前向散射和后向散射光强分布的测量;测量圆盘用于标定接收光纤与入射光的夹角,确定散射光接收角度.

2.2 数据处理方法

2.2.1 悬浮稳定性的数据处理方法

悬浮状态下,由于光源不稳定以及环境等因素的干扰,粒子并不是完全稳定在某一固定位置.为了表征悬浮粒子的波动特性,采用相对不稳定度的概念来进行定义.即:选定粒子某一初始位置,然后确定粒子质心偏移初始位置的距离,在一段时间内,质心偏移的最大距离与粒子等效粒径的比值称为粒子悬浮的相对不稳定度 (relative instability, RI).

RI 的数据处理流程如图 2 所示.由于贝塞尔光束对粒子在光束传播方向上约束较弱,因此首先采用高速相机在垂直于光轴的方向获取粒子波动的视频,然后转换为图片格式,再进行裁剪、二值化、轮廓提取、图形填充等图像处理,计算粒子的面积以及周长对应的像素点、运动质心坐标,通过标定可计算出粒子的等效粒径以及质心运动位移.

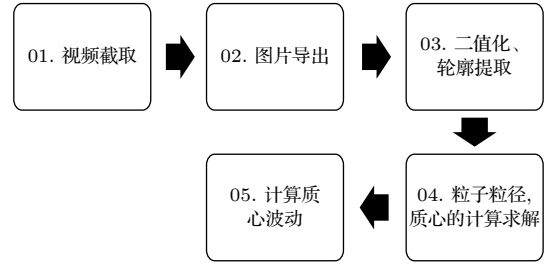


图 2 相对不稳定度的数据处理流程图

Fig. 2. Flow chart of relative instability data processing.

粒子的等效粒径 D_p 为

$$D_p = \frac{4S_p}{L_p}, \quad (1)$$

式中, S_p 和 L_p 分别代表粒子的面积和周长. 悬浮粒子的相对不稳定度 RI 可表达为

$$RI = \frac{L_{\max}}{D_p}, \quad (2)$$

式中, L_{\max} 代表质心运动最远的距离. 相对不稳定度 RI 的数值越大,表明粒子波动越剧烈,数值越小则粒子的悬浮稳定性越好.

2.2.2 散射强度分布信号处理

经光电倍增管和采集系统获得的信号为不同散射角度对应的信号电压幅值,由于系统受到干扰而存在较大的背景噪声,因此需要采用信号处理方法进行降噪,然后通过极坐标的方式呈现不同方向上的散射强度分布情况,如图 3 所示.图 3(a) 为实验中采集到的一组信号,设定的测量时间为 14 s,采样频率为 10 kHz,结果显示信号存在着很多毛刺,某些位置还存在突出的尖刺现象.图 3(b) 为经

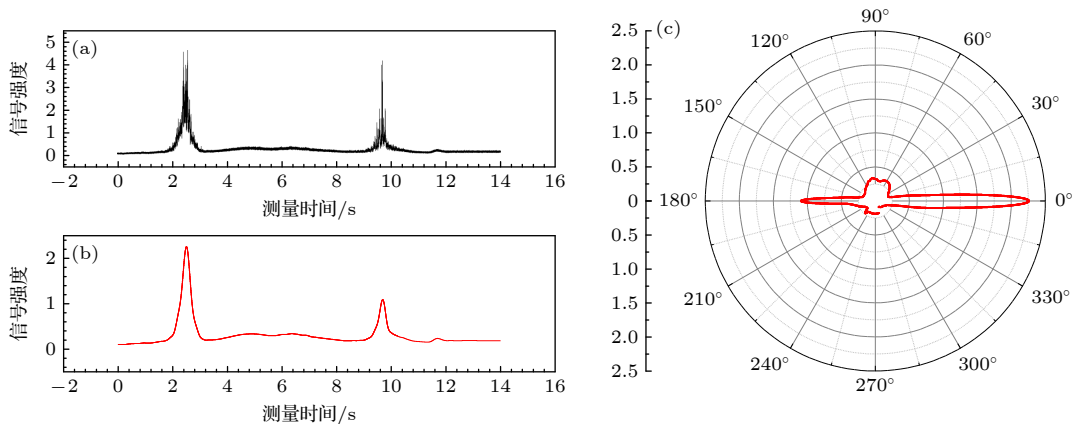


图 3 (a) 散射强度的原始信号; (b) 滤波后的信号; (c) 散射强度分布的矢极图

Fig. 3. (a) Raw signals of scattering intensity; (b) filtered signals; (c) contour of scattering intensity distribution in polar coordinates.

过快速傅里叶变换、低通和带通滤波、平滑等数据处理后的信号. 为了更直观地观察角度与散射强度分布之间的关系, 可将直角坐标系下的信号转换成极坐标图. 首先提取光纤探头从 0 转动到 π 所经历的时间, 即信号中两个峰值间的时间间隔, 将 π 除以时间间隔获得电机的转速, 再将直角坐标系下的横坐标乘以转速, 完成时间与角度的变换. 纵坐标的电压信号强度保持不变, 采用极坐标的方式绘制散射强度分布的矢极图, 如图 3(c) 所示.

3 测量结果

3.1 粒子悬浮稳定性

为了评估激光悬浮系统工作的可靠性, 采用球形度高的微米级金属镁粒子进行测试. 图 4(a) 为随机选择的镁粒子的扫描电镜照片, 可见其表面光滑、球形度高. 通过对随机选择的 15 张悬浮镁粒子的图像进行处理, 计算出镁粒子的圆形度. 其圆形度均值为 0.92, 标准差为 0.03, 表明悬浮的镁粒子在实验过程中能保持较好的球形度. 尽管激光作用于镁粒子上的轨道角动量可能使其产生旋转, 但通过观察发现镁粒子在形态上没有较大变化, 也未发生旋转.

图 4(b) 为镁粒子的悬浮波动情况示意图, 图中的数据均为图片像素下所得到的相对值, 蓝色圆点为选定的镁粒子质心的初始位置, 灰色圆代表镁粒子的相对大小; 黄色为某一时刻镁粒子质心的运动位置; 红色圆点为镁粒子的最远波动位置; 红色圆圈表示了粒子质心的运动范围. 质心的最大位移为 6.38, 相对粒径为 44.2, 因此其相对不稳定性 RI 约为 0.14. 图 4(c) 为镁粒子悬浮稳定性的重复测量结果, 共测试了 20 次, 在前向散射方向上的

信号幅值最小为 1.35, 最大为 1.60, 均值为 1.50, 标准差为 0.07. Grehan 和 Gouesbet^[16] 展示的实验装置没有给出具体的不稳定性数据, 但指出对于存在旋转的不规则微粒则难以获得散射信号.

图 4 的结果表明, 基于反向传输的贝塞尔光束形成了三维势阱, 在纵向和横向上的约束都较强, 可以高稳定性地悬浮镁粒子, 而且其波动对散射测量结果的影响很小. 具体的波动位移对散射结果影响的分析和讨论见 4.2 节.

3.2 单颗微米粒子的散射结果

悬浮镁粒子后, 开启电机转动接收光纤, 对入射到粒子上的散射光进行圆周扫描, 其测量结果见图 5. 图 5(a) 为高速摄像机下观察到激光悬浮的单颗镁粒子, 由于散射光会比真实粒径大很多, 经过标定, 该镁粒子散射光的等效尺寸为 $273.4 \mu\text{m}$. 图 5(b) 为经过变换后的镁粒子散射强度分布矢极图, 其角分辨率为 $9.2''$, 散射扫描接收角度为 2π . 可以看出, 其散射强度分布符合 Mie 粒子的散射规律^[17], 在前向和后向散射上信号较强, 分别为 1.84 和 0.50, 前向与后向散射峰值的比值为 3.68. 相较于 Grehan 和 Gouesbet^[16] 与 Grehan^[18] 给出的角分辨率为 $18'$ 在 13° — 39° 范围内的散射信号, 以及 Misconi 等^[19] 展示的以最高角分辨率 0.5° 在 16° — 167° 范围内的散射信号, 具有更高的扫描分辨率和完整的 Mie 粒子散射信号, 可为 Mie 散射理论计算提供验证的实验数据.

在相同的悬浮和散射测量系统参数条件下, 更换另一组粒径略小的镁粒子样品进行测试. 图 5(c) 为高速摄像机拍摄到的悬浮粒子, 散射光等效尺寸为 $218.4 \mu\text{m}$, 小于第一组. 图 5(d) 的散射强度分布矢极图表明, 相较于第一组, 有相似的散射强度

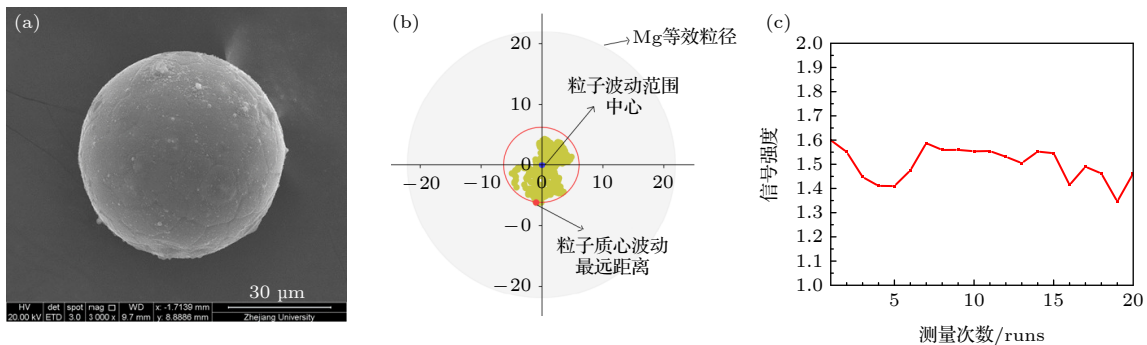


图 4 (a) 镁粒子的扫描电镜图; (b) 悬浮镁粒子的波动性; (c) 20 次重复测量的信号

Fig. 4. (a) SEM picture of Mg microparticle; (b) fluctuation of levitated Mg microparticle; (c) signals of 20 repetitive measurements.

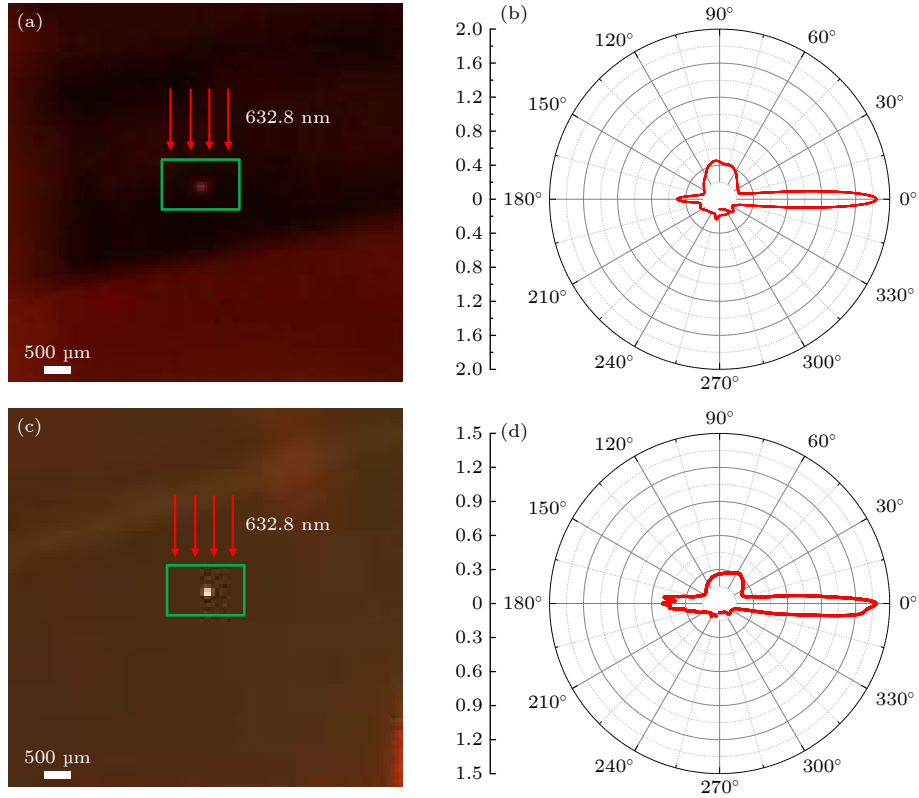


图 5 (a) 第一组镁粒子的悬浮图; (b) 第一组镁粒子的散射强度分布矢极图; (c) 第二组镁粒子的悬浮图; (d) 第二组镁粒子的散射强度分布矢极图

Fig. 5. (a) A picture of the first levitated Mg microparticle; (b) contour of scattering intensity distribution of the first levitated Mg microparticle in polar coordinates; (c) the picture of the second levitated Mg microparticle; (d) contour of scattering intensity distribution of the second levitated Mg microparticle in polar coordinates.

分布趋势, 前向散射信号最强. 粒径的降低导致前向散射降低, 后向散射增强, 在后向散射 $\pm 5^\circ$ 范围内均有较强的散射信号, 前向与后向散射强度之比为 2.88.

3.3 纳米粒子团簇的散射结果

图 5 中微米级镁粒子 (Mie 粒子) 表面光滑, 具有较高的球形度, 能够进行单颗粒悬浮, 且保持长时间稳定悬浮, 获得了可靠的散射强度分布信号. 而对于纳米粒子 (Rayleigh 粒子) 的散射, 其强度分布与 Mie 粒子存在巨大的差异. 由于在空气中难以分离出单颗纳米粒子, 因此, 采用纳米粒子团簇进行散射实验研究. 图 6(a) 为激光悬浮的纳米铝 (中值粒径 100 nm) 粒子团簇, 由于静电作用呈弯曲的条形状, 长度方向与悬浮激光光轴相同, 因此团簇的球形度极小. 长轴长度为 $602.2 \mu\text{m}$, 短轴长度为 $200.7 \mu\text{m}$, 等效粒径为 $223.3 \mu\text{m}$. 当沿着短轴方向入射激光, 其散射后的光强分布如图 6(b) 所示. 由图 6 可知, 纳米铝粒子团簇的散射强度分

布并没有呈现 Rayleigh 粒子的散射特征, 而是与 Mie 粒子的散射特征相似, 前向散射强度最大, 前后向散射强度比为 3.29.

对纳米级金属铝粒子团簇进行散射测量后, 又选取了纳米级非金属碳基粒子 (35 nm 石墨薄片) 团簇进行悬浮散射强度分布测量. 悬浮的纳米石墨团簇及其散射强度分布如图 6(c) 和图 6(d) 所示. 类似地, 反向传输贝塞尔光束能够对强吸收性石墨粒子团簇进行悬浮, 团簇呈椭球状, 通过标定可知, 长轴长度为 $453.7 \mu\text{m}$, 短轴长度为 $240.7 \mu\text{m}$, 等效粒径为 $301.3 \mu\text{m}$. 与金属镁和铝的散射特征相比, 尽管石墨的前向散射最强, 但后向散射非常微弱, 前后向散射强度比约为 8.9.

4 分析与讨论

4.1 悬浮粒子受力分析

当贝塞尔光束作用于空气中的粒子时, 粒子主要受力为光辐射压力 F_a 、光泳力 F_p 、重力 G 、浮力

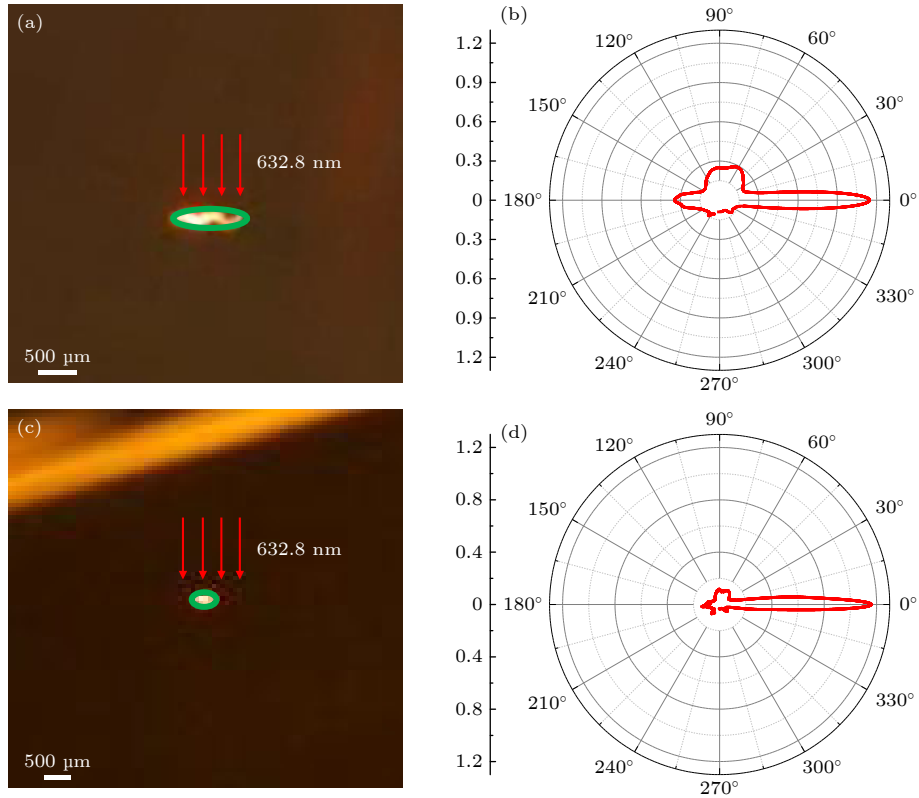


图 6 (a) 纳米铝团簇的悬浮图; (b) 纳米铝团簇的散射强度分布矢极图; (c) 纳米石墨团簇的悬浮图; (d) 纳米石墨团簇的散射强度分布矢极图

Fig. 6. (a) The picture of levitated Al nanocluster; (b) contour of scattering intensity distribution of levitated Al nanocluster in polar coordinates; (c) the picture of levitated graphite nanocluster; (d) contour of scattering intensity distribution of levitated graphite nanocluster in polar coordinates.

F_b 和曳力 F_d , 如图 7 所示. 光辐射压力可表示为 $F_a = \frac{P_a}{c}$, 粒子吸收的激光功率 $P_a = \frac{4\pi PR^3 k}{3w^2 \lambda}$, 其中 P 为激光功率, R 为粒子的半径, w 为束腰半径, λ 为波长, k 为消光系数, 即折射率 $m = n + ik$ 的虚部. 根据贝塞尔光束的光强分布测量结果可知, 中心部分的光强分布较为均匀, 因此为了简化计算, 将作用于粒子上的贝塞尔光束中心部分看成是

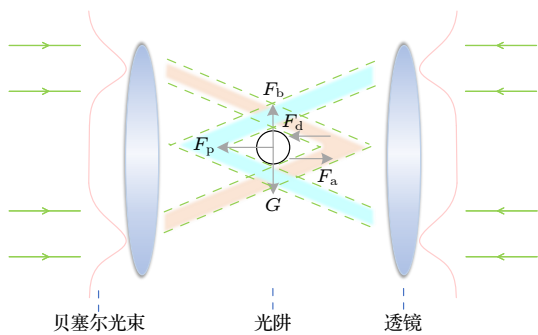


图 7 激光作用于空气中粒子的受力示意图

Fig. 7. Schematic of the force exerted by laser on micro-particles in the air.

均匀的平面波, 通过光镊工具箱^[20]方式模拟计算粒子受到的辐射压力 $F_a = Q_z n_g P/c$, 其中 Q_z 为光束传播方向上最大捕获效率, n_g 为气体介质的折射率, c 为光速.

光泳力是指由于粒子存在不均匀性, 激光作用于粒子表面时导致微粒表面被不均匀加热, 周围气体分子布朗运动加剧, 与粒子表面发生碰撞产生一个与动量变化方向相反的作用力. 因此, 光泳力的方向为粒子热表面指向冷表面. 空气分子的平均自由程 $l = 0.069 \mu\text{m}$, 微米级的粒子与空气分子的 Kn 数 $= l/R \ll 1$, 属于滑移流^[21], 光泳力可表达为

$$F_p = -\frac{4\pi c_s \eta^2 I_\lambda R J_1}{\rho_g k_s T_0} \times [(1 + 3c_m Kn) \times (1 + 2c_t Kn + 2k_g/k_s)]^{-1}, \quad (3)$$

其中 η 为空气黏度; I_λ 为激光强度; m 为粒子折射率; ρ_g 为空气的密度; k_g 与 k_s 分别为空气与粒子的热导率; c_m 为动量交换系数, c_s 为热滑移系数, c_t 表示温度阶跃条件的一阶系数, 根据动力学理论得出的系数值分别为 1.14, 1.17 和 2.18^[22]. 式中

表 1 金属镁、铝和石墨粒子受激光作用时的光泳力和辐射压力

Table 1. Photophoretic force and radiation pressure of Mg, Al, and graphite microparticles exerted by the laser beam.

类型	密度 $\rho_g/(10^3 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3})$	折射率 ^[24-26] m	热导率 $k_s/(\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1})$	光泳力 $F_p/(10^{-12} \text{ N})$	辐射压力 $F_a/(10^{-14} \text{ N})$	重力 $G/(10^{-12} \text{ N})$
Mg	1.74	0.766 + 4.783i	156	7.02	6.86	1.12
Al	2.70	0.728 + 5.66i	237	4.62	7.75	1.73
C	2.30	1.588 + 0.8174i	151	7.25	5.53	1.47

$J_1(\alpha, m) = 3n\kappa x \int_0^1 \int_{-1}^1 B(t, \mu) t^3 \mu d\mu dt$ 为光泳力公式中的不对称因子, 粒子的尺寸参数为 $\alpha = 2\pi R/\lambda$. J_1 的大小与方向仅决定于捕获微粒的半径与激光波长, 当吸收较弱或中等时, $J_1 = -8\pi kR/(3\lambda)$; 当微粒为高吸收性颗粒时, 可简化为黑体的不对称因子 $J_1 = -0.5$ ^[23].

假设入射激光波长为 532 nm、功率为 100 mW、光束直径为 20 μm , 环境空气温度为 298 K, 则粒径为 5 μm 的金属镁、铝和石墨受激光作用时的光泳力、辐射压力、重力的计算结果见表 1. 由于粒子粒径相同, 波动速度相当, 所以在空气中各粒子的浮力和曳力相同. 浮力为 $0.84 \times 10^{-16} \text{ N}$, 通过图像分析可知, 粒子的平均波动速度约 156.8 $\mu\text{m/s}$, 因此曳力为 $1.08 \times 10^{-12} \text{ N}$. 通过比较发现, 金属镁、铝和石墨所受力根据量级排序为光泳力、重力、曳力、辐射压力和浮力. 由此可见, 在空气介质中, 激光作用于金属和石墨粒子上的光泳力起主导作用, 曳力较大, 辐射压力较小, 浮力可以忽略不计, 光泳力通过平衡重力使得粒子稳定地悬浮.

4.2 粒子波动对散射测量的影响分析

根据 4.1 节中的受力分析可知, 由于激光功率的不稳定、气流扰动、温度变化等环境干扰的影响, 悬浮粒子的受力将会发生变化, 在光阱区域发生波动. 当粒子波动较远时, 光纤探头接收到的角度会偏离预设值, 将会给散射角度的测量带来微小偏差, 如图 8 所示. 假设 x 表示粒子质心移动的位移,

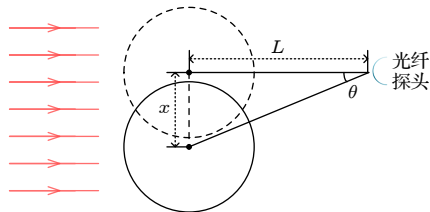


图 8 粒子波动对散射测量影响的示意图

Fig. 8. Schematic of the influence of microparticle fluctuation on scattering test.

L 为光纤探头与粒子初始质心间的距离, 此时光纤探头与粒子质心之间存在夹角 θ . 对于图 4(b) 中悬浮粒子的不稳定情形, 光纤探头测量的最大偏移角为 1.22° , 因此, 悬浮粒子的微小波动对散射强度测量的影响较小.

4.3 散射测量信噪比和不确定度分析

悬浮粒子光散射信号的测量会受到系统因素和环境因素的干扰, 主要包括环境光、悬浮激光、悬浮室壁面反射光等, 如图 9 所示. 图 9(a) 为激光器关闭时的环境光信号, 约在 10.8 s 时达到峰值, 最大值为 0.044, 均值为 0.012, 出现峰值的原因为环境中的照明光线照射到悬浮室的玻璃壁面上, 反射进入接收光纤. 经多次测量, 曲线最大值仍稳定在 0.04 左右, 出现峰值的时刻也在 10—11 s 之间, 其余时间信号强度均在 0.02 以下. 与测量的粒子前向散射强度相比, 环境光信号峰值占比为 1.95%, 表明环境光对散射测量的影响很小.

图 9(b) 为是否插入滤光片的悬浮激光引起的散射信号对比, 其中黑色曲线为未加入滤光片时测得的信号强度分布, 在接近 6 s 时, 曲线开始出现第一个较高的峰, 峰值为 0.28. 高峰出现的原因是悬浮室上方开有一个用于实验时吹拂粒子的小孔, 光纤探头正向经过小孔时会检测到光信号. 在约 10.2 s 处出现第二个峰, 峰值仅为 0.073. 红色曲线为加入滤除绿光的滤光片后测得的信号强度分布, 初始的第一个高峰已经不存在, 第二个峰仍存在但峰值仅为 0.023. 加入滤光片后悬浮激光信号的最大峰值占比为 1.02%, 因此, 滤光片能有效削弱悬浮激光对散射测量的影响.

图 9(c) 表明了粒子悬浮前后悬浮激光散射信号对比. 黑色曲线代表粒子悬浮稳定后测得的信号强度, 此时在 0.6 s 处曲线存在一个低峰, 峰值为 0.019, 在 10.2 s 处出现了高峰, 峰值为 0.029, 其余时间的信号平缓无较大变化. 红色曲线代表没有粒子悬浮时的悬浮激光散射信号, 整体上仍存在两个

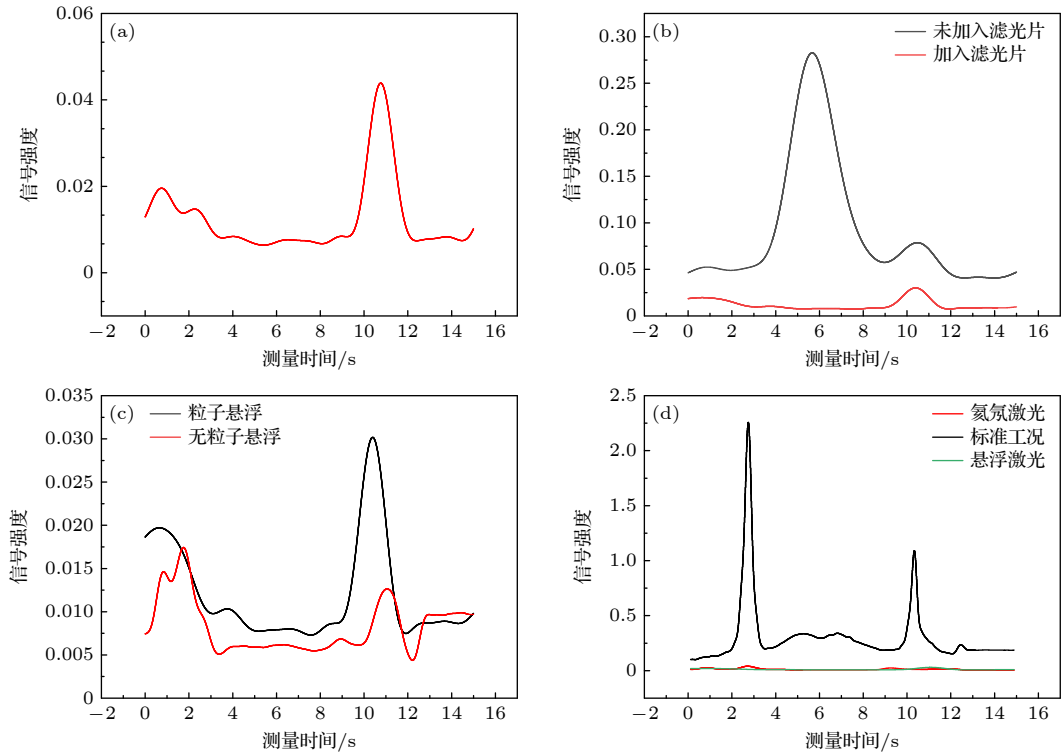


图 9 (a) 环境光信号; (b) 加入滤光片前后悬浮激光散射信号; (c) 粒子悬浮前后悬浮激光散射信号; (d) 标准工况下散射信号与其他信号

Fig. 9. (a) Signal from background light; (b) laser scattering signals adding filters or not; (c) laser scattering signals of levitated microparticle or not; (d) scattering signals and other signals under standard operating conditions.

峰值, 在 0.8 s 处出现一个较低的峰, 并存在轻微的振荡现象, 接近 2 s 时出现第一个高峰, 峰值为 0.017, 之后在 11 s 处出现低峰, 此时的峰值为 0.012. 当粒子悬浮时, 悬浮激光的信号峰值占比为 1.28%; 当没有粒子悬浮时, 悬浮激光照射到悬浮室上产生反射、折射, 其峰值信号占比为 0.75%.

图 9(d) 为多种散射信号的对比图. 黑色曲线表示标准工况下的散射信号, 在 2.5 s 时信号曲线出现第一个高峰, 峰值为 2.26, 在 9.7 s 时信号曲线出现第二个峰, 峰值为 1.09. 绿色曲线为悬浮激光在粒子上的散射信号, 整条曲线的最大值为 0.029, 红色曲线代表氦氖激光在悬浮室壁面上的反射、折射引起的信号, 曲线的最大值为 0.04, 其峰值信号占比分别为 1.28% 和 1.77%. 3.1 节中的 20 次重复性测试结果表明, 悬浮散射测量系统的可靠性高.

根据图 5 和图 6 中的散射测量信号和图 9 中的背景噪声进行计算, 金属镁、铝和石墨等的散射测量信噪比如图 10 所示. 信噪比在前向散射上最强, 其值均大于 75 dB, 30°—150°间也具有较

强的信噪比. 第一组 Mg 粒子前向散射信噪比为 94.6 dB, 后向信噪比为 65.8 dB; 第二组 Mg 粒子的前向散射信噪比为 77.1 dB, 后向散射 $\pm 5^\circ$ 范围内信噪比可达 69.3 dB; 纳米铝粒子团簇的前向散射信噪比为 75.8 dB, 后向范围内为 56.6 dB; 纳米石墨团簇的前向散射信噪比为 75.1 dB, 而小角度后向散射的信噪比略低, 仅为数 dB, 主要为图 6(d) 中所示的纳米石墨团簇的后向散射十分微弱所致. 可见, 对于金属镁和铝材料, 无论是单颗粒还是团簇, 在平面 2π 方向上的散射测量信噪比均大于 20 dB, 最高可达 94.6 dB. 而对于纳米石墨团簇, 在后向散射方向上的信噪比较低.

4.4 粒子性质对散射特性的影响

根据 Mie 散射理论, 当入射光强为 I_0 , 波长为 λ 的自然光沿 z 轴的正方向平行入射到半径为 R 的各向同性球形粒子上时, 在散射角为 θ , 距离散射粒子 l 处的散射光强为

$$I = \frac{\lambda^2}{4\pi^2 l^2} I_0 (i_1 + i_2), \quad (4)$$

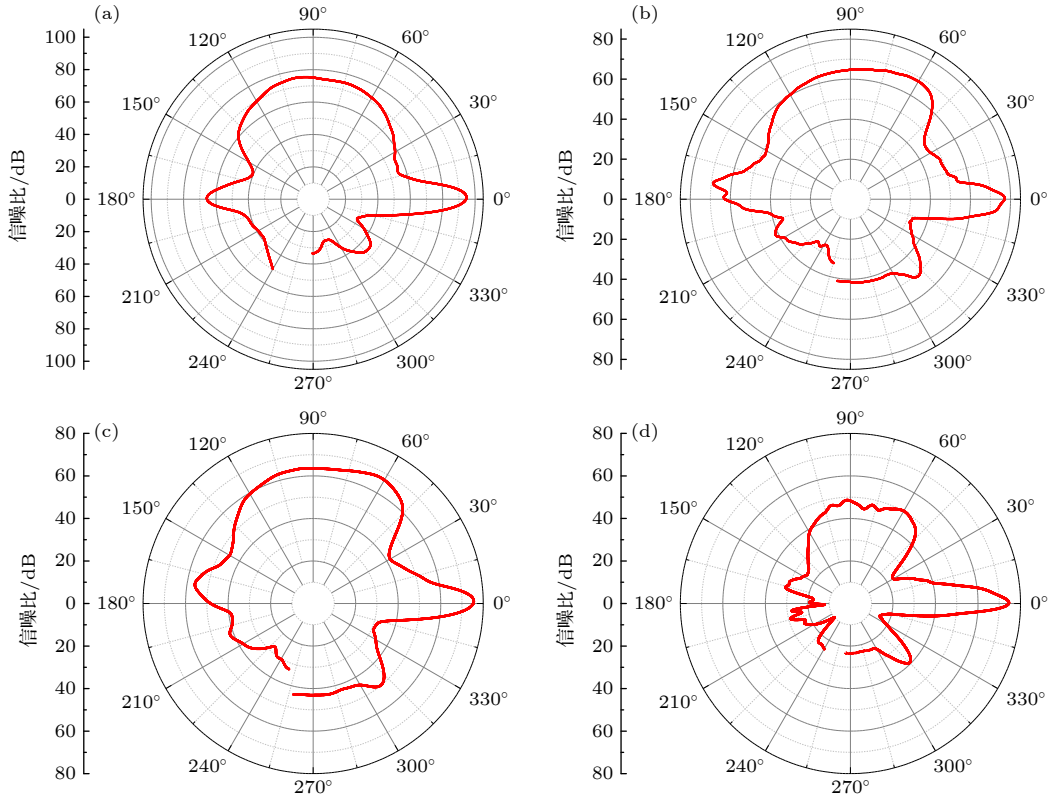


图 10 散射强度测量信噪比矢极图 (a) 第一组镁粒子; (b) 第二组镁粒子; (c) 纳米铝团簇; (d) 纳米石墨团簇

Fig. 10. Contour of signal-to-noise ratio of scattering intensity measurement in polar coordinates: (a) The first levitated Mg micro-particle; (b) the second levitated Mg microparticle; (c) levitated Al nanocluster; (d) levitated graphite nanocluster.

式中, i_1 表示散射光强度函数的垂直分量; i_2 表示散射光强度函数的平行分量. 其中, $i_1 = |S_1(m, \theta, a)|^2$, $i_2 = |S_2(m, \theta, a)|^2$. S_1 表示散射光复振幅函数的垂直分量, 平行分量由 S_2 表示. S_1, S_2 可表示为下列无穷级数:

$$\begin{cases} S_1 = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} (a_n \pi_n + b_n \tau_n), \\ S_2 = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2n+1}{n(n+1)} (a_n \tau_n + b_n \pi_n), \end{cases} \quad (5)$$

其中 a_n, b_n 称为 Mie 散射因子, 其表达式为

$$\begin{cases} a_n = \frac{\varphi_n(\alpha) \varphi'_n(m\alpha) - m \varphi'_n(\alpha) \varphi_n(m\alpha)}{\varepsilon_n(\alpha) \varphi'_n(m\alpha) - m \varepsilon'_n(\alpha) \varphi_n(m\alpha)}, \\ b_n = \frac{m \varphi_n(\alpha) \varphi'_n(m\alpha) - \varphi'_n(\alpha) \varphi_n(m\alpha)}{m \varepsilon_n(\alpha) \varphi'_n(m\alpha) - \varepsilon'_n(\alpha) \varphi_n(m\alpha)}. \end{cases} \quad (6)$$

α 为粒子尺寸参数; m 为粒子相对于周围介质的复折射率, 当粒子有吸收时, 虚部不为零.

Mie 散射理论中散射系数与消光系数的表达式分别为

$$\begin{cases} K_{\text{sca}} = \frac{2}{a^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) (|a_n|^2 + |b_n|^2), \\ K_{\text{ext}} = \frac{2}{a^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) \text{Re}(a_n + b_n). \end{cases} \quad (7)$$

图 11 为 $5 \mu\text{m}$ 粒径的水、球形金属镁、铝和石墨在 632.8 nm 入射波长作用的散射强度分布计算结果 (尺寸参数 $\alpha = 25$). 对于折射率虚部为零的水, 其前向散射最强. 金属镁和铝的折射率接近, 所以其散射强度分布相差不大, 而石墨的折射率虚部相对较小, 所以前向散射相对较低. 对于金属镁、铝和石墨而言, 随着折射率虚部的降低, 前向散射逐渐减弱, 前后向散射比降低. 对于纳米粒子, 由于静电吸附作用等而形成团簇. 纳米粒子之间空隙被空气填充, 其介电特性发生了显著变化, 散射特性因涉及粒子内部的多重散射而变得异常复杂, 在本文中不做讨论.

图 12 为不同尺寸参数 α 时的散射强度分布的模拟结果. 在折射率与入射波长均保持不变的情况下, 随着尺寸参数 α 的增加, 散射光的辐射强度增加, 曲线变得越来越尖锐, 前向散射更加显著.

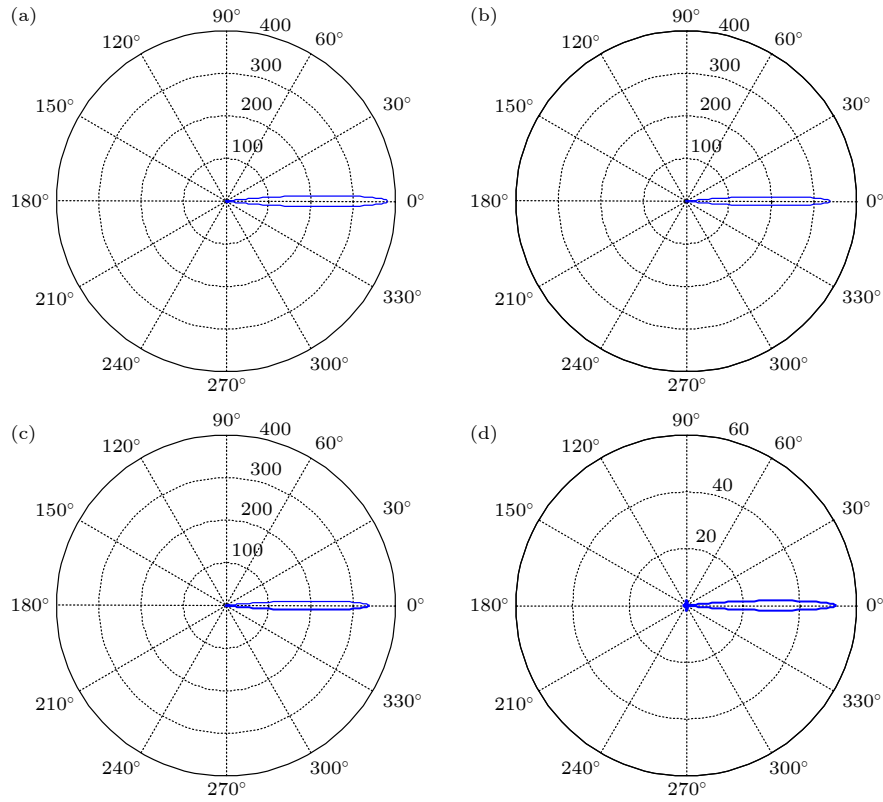


图 11 球形粒子的散射强度分布 ($\alpha = 25$) (a) 水; (b) 镁; (c) 铝; (d) 石墨

Fig. 11. Contour of scattering intensity distribution of spherical microparticles in polar coordinates: (a) Water; (b) Mg; (c) Al; (d) graphite.

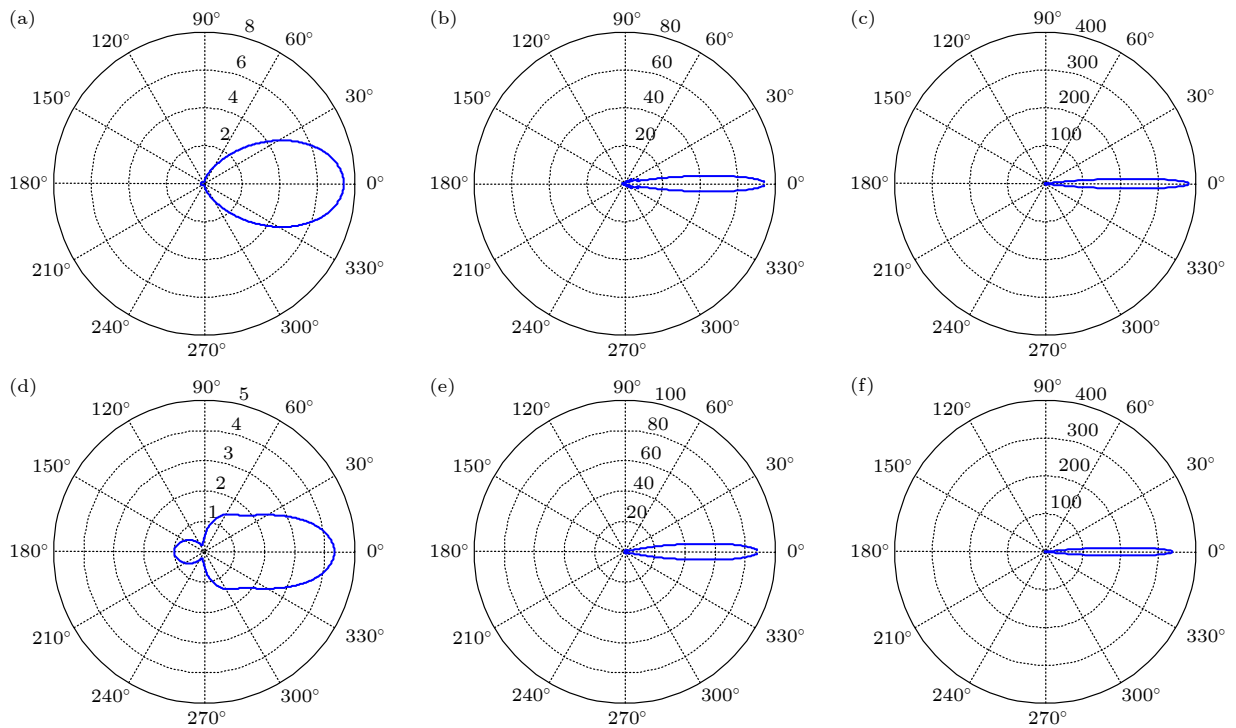


图 12 不同尺寸参数对散射强度的影响 (a) $\alpha = 2.5$ (水); (b) $\alpha = 12.5$ (水); (c) $\alpha = 25$ (水); (d) $\alpha = 2.5$ (Mg); (e) $\alpha = 12.5$ (Mg); (f) $\alpha = 25$ (Mg)

Fig. 12. Effect of different size parameters on scattering intensity: (a) $\alpha = 2.5$ (water); (b) $\alpha = 12.5$ (water); (c) $\alpha = 25$ (water); (d) $\alpha = 2.5$ (Mg); (e) $\alpha = 12.5$ (Mg); (f) $\alpha = 25$ (Mg).

这可明确解释图 5 中两种 Mg 粒子的散射结果, 散射信号集中在前向, 第一组粒子的粒径大于第二组, 因此第一组信号的整体强度分布均高于第二组. 对比分析图 12 中水和金属镁的散射发现, 在小尺寸参数 ($\alpha = 2.5$) 时, 由于镁粒子的折射率虚部较大, 而水没有虚部, 因此镁粒子的后向散射明显强于水. 但当尺寸参数提高 10 倍后, 镁粒子和水的散射强度分布差异明显变小, 吸收作用的影响被削弱.

5 结 论

本文通过利用两束反向传输贝塞尔光束构建悬浮系统, 对单颗微米粒子和纳米团簇的散射强度分布进行了测量, 并结合模拟计算结果, 对粒子受力、悬浮稳定性、悬浮不稳定性 and 环境干扰下散射测量的不确定度进行了具体分析和讨论, 获得的主要结论如下.

1) 反向传输的贝塞尔光束可对球形或非球形的金属镁、铝和石墨等粒子/团簇进行稳定悬浮, 悬浮过程中激光对粒子的光泳力起主导作用, 辐射压力和浮力等对粒子的作用较小, 光泳力通过平衡重力实现对粒子的稳定悬浮; 激光功率和环境因素造成粒子的波动, 但粒子波动的相对不稳定性小于 0.15, 对散射测量结果的影响较小.

2) 通过对悬浮散射系统的不确定度分析和 20 次的重复可靠性测试, 可以判定该系统能够以高角分辨率对单颗微米粒子/纳米团簇的散射强度分布进行精确测量. 实验和模拟计算结果均表明单颗微米镁粒子、纳米铝和石墨团簇的散射强度分布符合 Mie 粒子散射特征, 粒子折射率和尺寸参数是影响散射强度分布的关键参数. 折射率虚部大的粒子具有更强的前向散射特性, 金属镁和铝的折射率接近, 所以散射强度分布相差不大, 而石墨的折射率虚部相对较小, 所以其前向散射相对较低. 随着粒子尺寸参数的增大, 散射光强度增加, 曲线变得越来越尖锐, 前向散射作用更加显著. 当粒子尺寸参数较大时, 折射率虚部的影响变小, 吸收作用被削弱.

本文将纳米团簇与单颗粒子进行对比分析时, 将其视为非球形的均匀材质, 没有考虑团聚体内部

空气的存在而导致介电特性差异, 使得折射率变化较大而造成散射特性的不同. 因此, 在后续研究中需要进一步深入考虑, 对团聚体散射特性的研究更有意义.

参考文献

- [1] Sioutas C, Kim S, Chang M, Terrell L L, Gong H 2000 *Atmos. Environ.* **34** 4829
- [2] Zhang H, Nie W, Liang Y, Chen J, Peng H 2021 *Opt. Laser. Eng.* **144** 106642
- [3] Minton A P 2016 *Anal. Biochem.* **501** 4
- [4] Zhang Y W, Yan Y, Nong D G, Xu C H, Li M 2016 *Acta Phys. Sin.* **65** 218702 (in Chinese) [张宇微, 颜燕, 农大官, 徐春华, 李明 2016 物理学报 **65** 218702]
- [5] Wang Q H, Zhang Y Y, Lai J C, Li Z H, He A Z 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 1203 (in Chinese) [王清华, 张颖颖, 来建成, 李振华, 贺安之 2007 物理学报 **56** 1203]
- [6] Collins M, Kauppila A, Karmenyan A, Gajewski L, Szewczyk K, Kinnunen M, Myllylä R 2010 *Laser Applications in Life Sciences* Oulu, Finland, June 9–11, 2010 p737619
- [7] Ashkin A 1970 *Phys. Rev. Lett.* **24** 156
- [8] Omori R, Kobayashi T, Suzuki A 1997 *Opt. Lett.* **22** 816
- [9] Esseling M, Rose P, Alpmann C, Denz C 2012 *Appl. Phys. Lett.* **101** 131
- [10] Huiskens J, Stelzer E H K 2002 *Opt. Lett.* **27** 1223
- [11] Meresman H, Wills J B, Summers M, McGloin D, Reid J P 2009 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **11** 11333
- [12] Pan Y L, Hill S C, Coleman M 2012 *Opt. Express* **20** 5325
- [13] Gong Z, Pan Y L, Wang C 2016 *Rev. Sci. Instrum.* **87** 156
- [14] Gong Z, Pan Y L, Videen G, Wang C 2017 *Chem. Phys. Lett.* **689** 100
- [15] Huang X F, Li S J, Zhou D H, Zhao G J, Wang G Q, Xu J R 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 178802 (in Chinese) [黄雪峰, 李盛妮, 周东辉, 赵冠军, 王关晴, 徐江荣 2014 物理学报 **63** 178802]
- [16] Grehan G, Gouesbet G 1980 *Appl. Opt.* **19** 2485
- [17] Fu C H 2017 *Acta Phys. Sin.* **66** 097301 (in Chinese) [付成花 2017 物理学报 **66** 097301]
- [18] Gouesbet G 2019 *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **225** 258
- [19] Miscconi N Y, Oliver J P, Ratcliff K F, Rusk E T, Wang W X 1990 *Appl. Opt.* **29** 2276
- [20] Nieminen T A, Loke V L Y, Stilgoe A B, Knöner G, Brańczyk A M, Heckenberg N R, Rubinsztein-Dunlop H 2007 *J. Opt. A: Pure Appl. Opt.* **9** S196
- [21] Palm K J, Murray J B, Narayan T C, Munday J N 2018 *ACS Photonics* **5** 4677
- [22] McPeak K M, Jayanti S V, Kress S J, Meyer S, Iotti S, Rossinelli A, Norris D J 2015 *ACS Photonics* **2** 326
- [23] Querry M R 1985 *Optical Constants Contractor Report CRDCCR-85034*
- [24] Mackowski D W 1989 *Int. J. Heat Mass Transfer.* **32** 843
- [25] Talbot L, Cheng R K, Schefer R W, Willis D R 1980 *J. Fluid Mech.* **101** 737
- [26] Redding B, Hill S C, Alexson D, Wang C, Pan Y L 2015 *Opt. Express* **23** 3630

Measurement of scattering intensity distribution of single microparticles/nanoclusters based on laser levitation*

Huang Xue-Feng¹⁾ Chen Chu¹⁾ Li Jia-Xin²⁾
Zhang Min-Qi¹⁾ Li Sheng-Ji^{2)†}

1) (*Department of Physics, Hangzhou Dianzi University, Hangzhou 310018, China*)

2) (*College of Materials and Environmental Engineering, Hangzhou Dianzi University, Hangzhou 310018, China*)

(Received 1 April 2023; revised manuscript received 6 June 2023)

Abstract

The scattering measurement of particulates in gaseous medium is helpful in understanding light transmission, laser detection, combustion radiation and atmospheric environment. In order to explore the scattering characteristics of micron-/nano-sized particles, this paper proposes a method of accurately measuring the scattering intensity distribution of a single micron-sized particles/nanoclusters by combining laser levitation and scattering measurement. An experimental apparatus is first built based on the counter-propagated bi-Bessel beams levitation system and scattering test system. The microparticles/nanoclusters of various matters and sizes are then levitated and their stabilities are evaluated. Finally, the scattering intensity distribution of levitated particles within 2π scattering angle is accurately measured with an angular resolution of $9.2''$. The forces acting on particles under laser irradiation and the scattering intensity distribution of different particle parameters are simulated and calculated, and compared with experimental results. The influence of noise on the uncertainty of the scattering measurement system is analyzed in depth, including background light, laser beam, and reflected light from the walls. The results show that the signal-to-noise ratio of scattering measurement for metallic magnesium and aluminum, whether single particles or clusters, are both greater than 20 dB and their maximum values are both 94.6 dB in a range of 2π angle. For graphite nanoclusters, the signal-to-noise ratio in the backscattering direction is relatively poor. The influence of levitation instability on the scattering measurement results is estimated in detail, verifying that the influence of levitation instability in the test system on the scattering measurement is ignorable. Metallic magnesium, aluminum, and graphite particles can be stably levitated by the counter-propagated bi-Bessel beams, with a relative instability of less than 0.15. During the levitation, the photophoretic force plays a dominant role. The scattering intensity distribution of a single micron-sized particles and nanoclusters both conform to the scattering characteristics of Mie particles. Microparticles with large refractive index imaginary parts have stronger forward scattering characteristics. The larger the particle size parameter, the stronger the forward scattering effect becomes. The accurate measurement of the scattering intensity distribution of a single microparticles confirms the versatility and reliability of the levitation scattering test system, providing a new research method for in-depth understanding of the scattering characteristics of substances.

Keywords: laser levitation, Mie scattering, individual microparticle, nanocluster

PACS: 42.62.-b, 42.25.Fx

DOI: 10.7498/aps.72.20230499

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 52027809, 51976050).

† Corresponding author. E-mail: shengjili@hdu.edu.cn



基于激光悬浮的单颗微米粒子/纳米团簇的散射强度分布测量

黄雪峰 陈鑫 李嘉欣 张敏琦 李盛姬

Measurement of scattering intensity distribution of single microparticles/nanoclusters based on laser levitation

Huang Xue-Feng Chen Chu Li Jia-Xin Zhang Min-Qi Li Sheng-Ji

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 174201 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20230499

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20230499>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

原子尺度材料三维结构、磁性及动态演变的透射电子显微学表征

Atomic scale characterization of three-dimensional structure, magnetic properties and dynamic evolutions of materials by transmission electron microscopy

物理学报. 2021, 70(6): 066801 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20202072>

空心圆柱形永磁体内径对单畴GdBCO超导块材磁悬浮力的影响

Effect of inner diameter of hollow cylindrical permanent magnet on levitation force of single domain GdBCO bulk superconductor

物理学报. 2018, 67(7): 077401 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20172418>

NiFe₂O₄纳米粒子掺杂对单畴YBCO超导块材性能的影响

Influence of NiFe₂O₄ nanoparticle doping on properties of single-domain YBCO bulk superconductors

物理学报. 2020, 69(23): 237402 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20201116>

不同散射介质对飞秒脉冲激光传输特性影响研究

Influence of different scattering medium on propagation characteristics to femtosecond laser pulses

物理学报. 2019, 68(19): 194207 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190430>

基于激光尾场加速的自反射式全光汤姆孙散射的参数优化

Parameter optimization of self-reflecting all-laser-driven Thomson scattering based on laser wakefield acceleration

物理学报. 2021, 70(8): 085204 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210549>

基于空谱干涉和频域分割的超快激光时空耦合特性的单次测量方法

Single-frame measurement of complete spatiotemporal field of ultrashort laser pulses using frequency domain separate spectral interferometry

物理学报. 2022, 71(3): 034203 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211665>