

文章编号: 0253-2239(2010)03-0876-05

随机取向烟尘团簇粒子激光散射特性研究

类成新 刘汉法 张化福

(山东理工大学理学院, 山东 淄博 255049)

摘要 利用蒙特卡罗方法根据团簇-团簇凝聚(CCA)模型对由球形原始粒子凝聚而成的烟尘团簇粒子进行了模拟,用离散偶极子近似(DDA)方法研究了烟尘团簇粒子随机取向时的激光散射特性,并与等效球形粒子的激光散射特性进行了比较。结果表明,等效球形粒子的激光散射特性与随机取向烟尘团簇粒子的激光散射特性存在着明显差别,不能用等效球形粒子来代替随机取向的团簇粒子;随机取向的烟尘团簇粒子的激光散射特性受基本粒子数量和粒径的影响比较大。该结果将为进一步研究随机取向团簇粒子的形成机理、形态特性以及激光在其中的传输特性提供了一种理论方法。

关键词 物理光学;烟尘团簇凝聚粒子;离散偶极子近似方法;激光散射特性

中图分类号 O436 文献标识码 A doi: 10.3788/AOS20103003.0876

Research on Laser Scattering Property by Randomly Oriented Soot Clustered Agglomerates

Lei Chengxin Liu Hanfa Zhang Huafu

(School of Science, Shandong University of Technology, Zibo, Shandong 255049, China)

Abstract Cluster-cluster aggregation (CCA) model based on Monte-Carlo method is used to simulate the structure of the fractal-like soot clustered agglomerates consisting of spherical primary particles, and numerical calculations are carried out on laser scattering by randomly oriented soot clustered agglomerates based on the discrete dipole approximation (DDA) method. Comparison of the laser scattering properties between equivalent spherical particles and randomly oriented soot clustered agglomerates shows that the differences between them are obvious. The scattering properties on randomly oriented soot clustered agglomerates are determined by the radius and number of primitive particles besides the refractive index. This research will provide an effective theoretical approach for the research of formation mechanism, structural characteristics of randomly oriented soot clustered agglomerates and propagation property of laser in them.

Key words physical optics; soot clustered agglomerates; discrete dipole approximation (DDA) method; laser scattering property

1 引 言

大气气溶胶中的烟尘团簇粒子是燃料不充分燃烧或者燃烧生成的气体状污染物和粉尘混合体组成的凝聚粒子,是烟和各种悬浮粒子的总称,主要含有烟、碳黑、灰分以及悬浮物质等成分。形成烟尘的基本粒子粒度非常小,烟尘中的碳粒子的典型半径大小在10~100 nm之间,且粒子非常密集,与可见光相比可看作是近似度很好的群聚球形微粒所组成的

簇^[1,2]。在形成过程中,由于基本粒子之间存在相互作用而产生随机的碰撞,因此形成的烟尘团簇粒子具有十分复杂的随机分形结构^[3]。

大气气溶胶粒子的激光散射一直是随机介质中激光传播、大气辐射和大气探测等领域的一个非常重要的研究内容,团簇粒子的散射特性是近年来研究的一个重要方向。随着军事的高科技化、人们对于环境保护的越来越重视、生物医学的发展以及通

收稿日期: 2009-04-13; 收到修改稿日期: 2009-04-29

基金项目: 国家自然科学基金(60371020)资助课题。

作者简介: 类成新(1976—),男,硕士,讲师,主要从事目标激光散射特性研究。E-mail: xdpostgraduate@163.com

讯、遥感、雷达目标识别技术的发展,团簇粒子散射特性的研究不断地被推向新的阶段。对随机分布的团簇粒子的研究可以掌握烟尘团簇粒子的散射特性,进而研究其形成机理以及形态特性,达到人为地利用其有利方面,控制、监测其不利方面的目的。同时对于团簇粒子的研究还可以进一步推动大气光学的进展和对尘埃粒子散射特性的研究^[4],这对于人们加深对星际空间的认识也起到巨大的促进作用。

一直用来解决团簇粒子的散射问题的方法有瑞利-迪拜-甘斯近似方法^[5]、扩展边界条件法(亦称 T 矩阵法)、矩量法(MOM)等。以上这些方法对所研究的团簇粒子的形状有一定的限制,而离散偶极子近似(DDA)方法也是研究粒子散射特性的重要的理论方法之一,此方法可以解决任意形状的团簇粒子的散射问题。本文利用离散偶极子近似方法研究了由蒙特卡罗方法模拟的随机取向的烟尘团簇粒子激光散射特性,并与等效球形粒子的激光散射特性进行了比较;给出了随机取向的烟尘团簇粒子激光散射特性与组成团簇粒子的基本粒子粒径及数目的关系,为进一步研究烟尘团簇粒子中电磁波的传输特性提供了有效的计算方法。

2 基本理论

2.1 离散偶极子近似方法

离散偶极子近似方法由 Purcell 和 Pennypacker^[6]于 1973 年提出,经过 Draine 等^[7,8]的进一步改进,逐步发展成一种成熟的算法,并广泛应用于分析星际灰尘和大气气溶胶的激光散射特性。其基本思想是:将连续散射物体近似为有限个可极化的点阵,每个点通过对局域电场(入射场以及其他点的辐射场)的响应获得偶极矩,散射体上所有点在远场的辐射总和构成散射场。若将散射体离散为 N 个点,每个点的极化率为 α_j ,坐标为 \mathbf{r}_j ($j = 1, 2, \dots, N$),所处的电场为 \mathbf{E}_j ,则该点的偶极矩 \mathbf{P}_j 为

$$\mathbf{P}_j = \alpha_j \cdot \mathbf{E}_j = \alpha_j \cdot (\mathbf{E}_j^{\text{inc}} - \sum_{k \neq j} \mathbf{A}_{jk} \mathbf{P}_k), \quad (1)$$

式中 \mathbf{E}_j 是入射场 $\mathbf{E}_j^{\text{inc}}$ 与其他 $N-1$ 个偶极子的散射场的总和,系数 \mathbf{A}_{jk} 为一个 3×3 矩阵:

$$\mathbf{A}_{jk} = \frac{\exp(ikr_{jk})}{r_{jk}} \times \left[k^2 (\mathbf{r}_{jk} \mathbf{r}_{jk} - \mathbf{I}) + \frac{ikr_{jk} - 1}{r_{jk}^2} (3\mathbf{r}_{jk} \mathbf{r}_{jk} - \mathbf{I}) \right], \quad (2)$$

式中 $k = 2\pi/\lambda$, λ 为入射波长; $r_{jk} = |\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_k|$; $\mathbf{r}_{jk} =$

$(\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_k)/r_{jk}$; \mathbf{I} 为 3×3 单位矩阵。

若定义 $\mathbf{A}_{jj} = \alpha_j^{-1}$, 则偶极矩 \mathbf{P}_j 满足 $3N$ 个复线性方程组:

$$\sum_{k=1}^N \mathbf{A}_{jk} \cdot \mathbf{P}_k = \mathbf{E}_j^{\text{inc}}. \quad (3)$$

由(3)式可解出 \mathbf{P}_k , 解出 \mathbf{P}_k 后就可以求得团簇粒子的一切散射特征量。

2.2 计算模型

烟尘团簇粒子是基于 Meakin 和 Rollb 等^[9]提出得 Cluster-cluster aggregation(CCA)模型的基础上利用蒙特-卡罗方法进行模拟的,具体的模拟过程参见文献^[10]。烟尘团簇粒子具有分形结构,其结构满足下式^[9]:

$$N = k_f \left(\frac{R_g}{d_p} \right)^{D_f}, \quad (4)$$

式中 N 为凝聚粒子包含原始微粒的数量, k_f 为分形系数(取值为 5, 8), d_p 为原始微粒直径, 上标 D_f 为凝聚粒子的分形维数(取值为 1.8), R_g 为凝聚粒子的平均回转半径。

在大气气溶胶激光散射问题的实际应用中,不关心固定取向的粒子,关心的是随机取向的粒子。本文针对随机取向的烟尘团簇粒子。对于随机取向的烟尘团簇粒子的散射特征量可以用下式计算^[7]:

$$\langle Q \rangle = \frac{1}{8\pi^2} \int_0^{2\pi} \int_{-1}^1 \int_0^{2\pi} Q(\beta, \theta, \phi) d\beta d(\cos \theta) d\phi, \quad (5)$$

式中 $\langle Q \rangle$ 为烟尘团簇粒子某散射特征量的统计平均值; $Q(\beta, \theta, \phi)$ 为系统坐标中特定取向时烟尘团簇粒子散射特征量值。理论上,方位角的取值应取尽所有的值,即 $\beta \in [0, 2\pi)$, $\theta \in [0, \pi)$, $\phi \in [0, 2\pi)$, 但是,由于受到计算资源的限制,只要所取的方位角的个数能够满足要求即可。Xing 等^[11]研究表明,方位角的选取在 $n_\beta, n_\theta, n_\phi$ 分别为 10, 7, 7 时,即 490 个方位角足以满足计算要求。本文中计算均采用此方案。

3 数值结果与分析

图 1 给出了给定入射波长(266 nm, 对应的复折射率为 $m = 1.07 + 0.688i$, 烟尘团簇粒子的复折射率为入射波长的函数^[12])情况下,不同大小和数目组成的团簇粒子的散射强度与等效粒径的球形粒子的散射强度的对比,其中 I_1 表示平行散射强度, I_2 表示垂直散射强度。由图 1 可知,等效球形粒子与随机取向烟尘团簇粒子的角散射强度存在着差别,并且随着组成团簇粒子的基本粒子的粒径和数

目的增大,两者的差别越来越大;等效球形粒子角散射强度随散射角的振荡与随机取向烟尘团簇粒子角散射强度随散射角的振荡存在着明显的不同步,其中以两者的平行散射强度的角分布表现得更为突出;随机取向烟尘团簇粒子的散射强度整体上要大于其等效球形粒子的散射强度,这是由于团簇粒子

中基本粒子之间存在着相互作用。另外,对团簇粒子散射相函数与等效球形粒子的相函数也进行了比较,结果表明,两者的散射相函数也存在同样的差别。因此,不能用等效球形粒子替代随机取向烟尘团簇粒子。

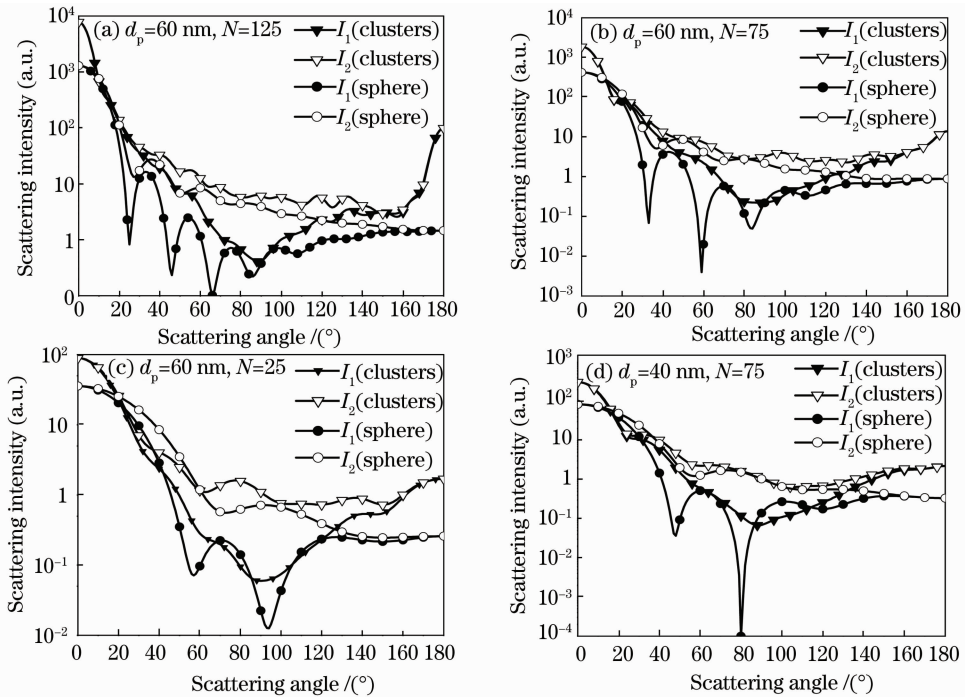


图1 随机取向烟尘团簇粒子与等效球形粒子的角散射强度对比

Fig. 1 Angular scattering intensity by randomly oriented soot clustered agglomerates and equivalent spherical particles

图2为不同入射波长(入射波长为1000 nm时,烟尘团簇粒子的复折射率为 $m = 1.8 + 0.5i$)情况下,烟尘团簇粒子的散射强度随基本粒子粒径及数目变化的角分布曲线。

由图2可知,对于不同波长,烟尘团簇粒子的前向($\theta = 0^\circ$)散射均比后向($\theta = 180^\circ$)散射强。随着入射波长的增大,烟尘团簇粒子的散射强度整体减小并且减小的幅度比较大,其平行散射强度角分布曲线在极小值处变得比较尖锐,这主要是由于团簇粒子尺寸参数变小造成的。波长较大时,烟尘团簇粒子的散射强度总体随散射角变化曲线比较平滑,没有出现如图2(a),(c),(e)所示的振荡现象,只有当粒径为60 nm,粒子数目为75时,烟尘团簇粒子的垂直散射强度角分布曲线才出现振荡现象。对于给定的人射波长,随着 N 及 d_p 的增大,烟尘团簇粒子的散射强度角分布均整体增大,当 N 增大到一定值时,烟尘团簇粒子的散射强度随基本粒子数目增大但增大的幅度变小,入射波长越大,此现象越明显。

入射波长较小时,随着 N 及 d_p 的增大烟尘团簇粒子的散射强度角分布出现振荡现象,并且 N 及 d_p 越大振荡现象越明显。这是烟尘团簇粒子结构不均匀性以及电多极子和磁多极子共同作用的结果。图2表明,随机取向的烟尘团簇粒子的平行散射强度在 $\theta = 90^\circ$ 处达到极小值且趋于对称,而垂直散射强度的角分布没有此现象。

不同入射波长、基本粒子数目及粒径下的散射相函数(没有归一化),如图3所示。从图3可以更明显地看出上述一些角散射特征,如对于不同波长,烟尘团簇粒子的前向散射总比后向散射强,并且基本粒子数目越大或者粒径越大,此现象越明显。随着入射波长的变大,散射相函数明显减小并且减小的幅度比较大;烟尘团簇粒子的散射相函数随散射角变化曲线开始变得比较平滑,只有当粒径以及粒子数目比较大时,其角分布曲线才出现振荡现象。对于特定的人射波长,随着基本粒子数目以及粒径的增大,烟尘团簇粒子的散射相函数的数值整体均

增大,并且角分布曲线出现振荡现象且越来越剧烈。另外,烟尘团簇粒子的散射相函数随着 N 增大而增

大的幅度逐渐减小,入射波长越大,此现象越明显。

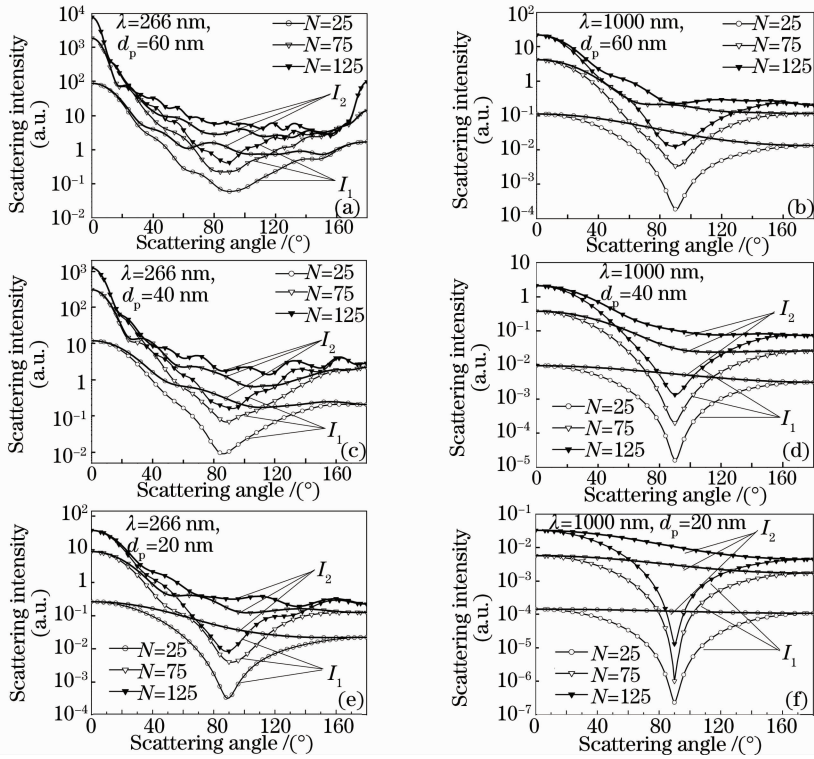


图 2 不同波长下,散射强度随 d_p 与 N 变化角分布图

Fig. 2 Scattering intensity versus diameter and number of primary particles at different wavelengths

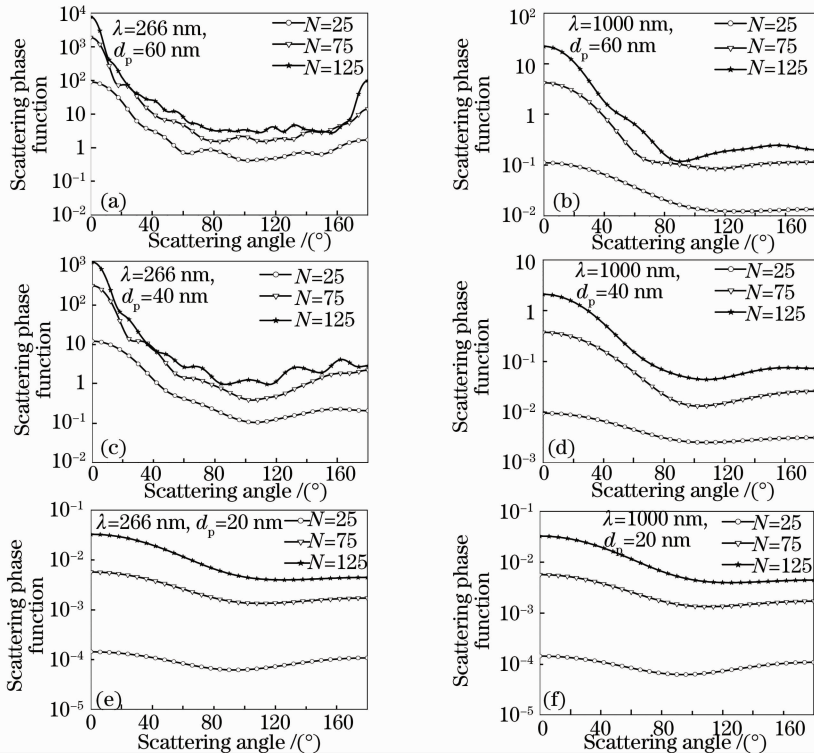


图 3 不同入射波长下,散射相函数随 d_p 与 N 变化角分布图

Fig. 3 Scattering phase function versus diameter and number of primary particles with different wavelengths

4 结 论

利用离散偶极子近似方法研究了由蒙特卡罗方法模拟的随机取向的烟尘团簇粒子的激光散射特性,并与等效球形粒子的激光散射特性进行了比较。计算结果表明,等效球形粒子的激光散射特性与随机取向烟尘团簇粒子的激光散射特性存在着比较大的差别,不能用等效球形粒子来代替随机取向的团簇粒子;随机取向的烟尘团簇粒子的激光散射特性与组成团簇粒子的基本粒子的粒径和数目的关系非常密切,对于不同的入射波长,这种差别也比较明显,主要是由于烟尘团簇粒子的折射率随波长的变化而不同,进而导致团簇粒子对入射电磁波的散射和吸收发生变化,影响其总的散射结果。通过研究,可以更深入地了解随机分布团簇粒子的形成机理以及形态特性,为进一步研究随机取向烟尘团簇粒子中电磁波的传输特性提供有效的计算方法。

致谢 特别感谢美国普林斯顿大学的 B. T. Draine 教授向本文作者提供 DDA 程序。

参 考 文 献

- 1 B. S. Haynes, H. G. Wagner. Soot formation[J]. *Prog. Energy Combust. Sci.*, 1981, **7**(4): 229~273
- 2 T. T. Charalampopoulos. Morphology and dynamics of

- agglomerated particulates in combustion systems using light scattering techniques[J]. *Prog. Energy Combust. Sci.*, 1992, **18**(11): 13~45
- 3 R. A. Dobbins, C. M. Megaridis. Morphology of flame generated soot as determined by thermophoretic sampling[J]. *Langmuir*, 1987, **3**(2): 254~259
- 4 S. Holler, J. C. Auger, B. Stout *et al.*. Observations and calculations of light scattering from clusters of spheres[J]. *Appl. Opt.*, 2000, **39**(36): 6873~6887
- 5 R. A. Dobbins, G. W. Mulholland, N. P. Bryner. Comparison of a fractal smoke optics model with light extinction measurements[J]. *Atmospheric Environment*, 1994, **28**(5): 889~897
- 6 E. M. Purcell, C. R. Pennypacker. Scattering and absorption of light by non-spherical dielectric grains[J]. *Astrophys. J.*, 1973, **186**: 705~714
- 7 B. T. Draine. The discrete-dipole approximation and its application to interstellar graphite grains[J]. *Astrophys. J.*, 1988, **333**: 848~872
- 8 B. T. Draine, P. J. Flatau. The discrete-dipole approximation for scattering calculations[J]. *J. Opt. Soc. Am. A*, 1994, **11**(4): 1491~1499
- 9 R. Jullien, R. Botet. *Aggregation and Fractal Aggregates*[M]. Singapore: World Scientific Publishing Co., 1987. 46~50
- 10 R. J. Samson, G. W. Mulholland, J. W. Gentry. Structural analysis of soot agglomerates [J]. *Langmuir*, 1987, **3**(2): 272~281
- 11 Zhangfan Xing, Martha S. Hanner. Light scattering by aggregate particles [J]. *Astron. Astrophys.*, 1997, **324**(2): 805~820
- 12 J. S. Wu, S. S. Krishnan, G. M. Faeth. Refractive indices at visible wavelength of soot emitted from buoyant turbulent diffusion flames [J]. *J. Heat Trans-T. ASME*, 1997, **119**(2): 230~237