

# 分形凝聚粒子的光散射特性研究

王红霞<sup>1</sup> 马 进<sup>1</sup> 宋仔标<sup>2</sup> 刘代志<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>第二炮兵工程学院基础部, 陕西 西安 710025)  
(<sup>2</sup>第二炮兵工程学院 602 室, 陕西 西安 710025)

**摘要** 粒子的形状和凝聚对光散射特性有着很大的影响。基于分形生长的受限扩散(DLA)模型,模拟了凝聚粒子的三维空间分形结构,并采用回转半径法计算了凝聚粒子的分形维数。利用离散偶极子近似(DDA)方法研究了纳米石墨凝聚粒子的光散射特性,对于原始粒子数不同的凝聚粒子及分形结构不同的凝聚粒子,数值计算了散射强度和偏振度随散射角的分布规律。结果表明凝聚粒子的散射特性与包含的粒子数目、入射波长和分形维数有关,与等体积球的散射特性也存在很大的差异。

**关键词** 物理光学;光散射;离散偶极子近似;分形凝聚粒子;纳米石墨

中图分类号 O436 文献标识码 A doi: 10.3788/AOS201131.0329001

## Light Scattering Properties of Fractal Aggregates

Wang Hongxia<sup>1</sup> Ma Jin<sup>1</sup> Song Zibiao<sup>2</sup> Liu Daizhi<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>Department of Basal Courses, Second Artillery Engineering Institute, Xi'an, Shaanxi, 710025, China)  
(<sup>2</sup>Department of 602, Second Artillery Engineering Institute, Xi'an, Shaanxi, 710025, China)

**Abstract** The shape and aggregation of particle have a strong influence on the light scattering property. The diffusion-limited aggregation model (DLA) of fractal growth is used to simulate the possible structures of aggregates, and the fractal dimension of aggregates is calculated with the method of gyration radius. The light scattering property of nano-graphite aggregates is studied on the basis of discrete dipole approximation (DDA) method. For aggregates with different numbers of primary particles and with different fractal structures, numerical results of the scattering intensity and the degree of linear polarization to different incident wavelengths are illustrated. The results show that the light scattering properties of nano-graphite aggregates are related to incident wavelength, particle numbers and fractal dimension, and are different from those of the equal volume sphere.

**Key words** physical optics; light scattering; discrete dipole approximation (DDA); fractal aggregates; nano-graphite

**OCIS codes** 290.4210; 290.5850; 260.0260

## 1 引 言

在自然界中,存在着许多由微小粒子组成的形状不规则的凝聚粒子,如大气中的气溶胶粒子、星际尘埃粒子和烟幕粒子等,在环境监测、大气遥感、烟幕消光机理、通信、目标探测以及对星际空间的认识等方面研究这些凝聚粒子对光波的散射特性具有非常重要的意义。因而,凝聚粒子的散射特性是近年来研究的一个重要方向。

目前,对单个小粒子光散射特性的研究已经比较系统,有成熟的 Rayleigh 和 Mie 散射理论。而对

于凝聚粒子,由于其复杂多变的结构,其散射特性不能按简单的单个粒子来分析。国内外对于按照一定规律排列、结构固定的凝聚粒子的光散射性能进行过较多研究<sup>[1,2]</sup>,但对任意复杂结构的凝聚粒子的散射特性研究开展得较少<sup>[3]</sup>。实际凝聚粒子的结构具有一定的随机性,不能用某种定态进行描述,应对任意复杂形态进行研究。分形理论的逐步成熟为研究凝聚粒子的复杂结构提供了理论依据,根据分形生长理论模型可以对粒子凝聚过程和形成的复杂结构用计算机进行仿真模拟,虽然与真实过程和结构

收稿日期: 2010-09-06; 收到修改稿日期: 2010-09-26

基金项目: 国家自然科学基金(60908044)资助课题。

作者简介: 王红霞(1962—)女,博士,教授,主要从事光电信息处理方面的研究。E-mail: redlightw@163.com

相比,这些模型只能看作是一些简化的、极端的情况,远非完善,但与定态结构相比,更接近真实情况。

凝聚粒子与电磁波的相互作用比较复杂,一般没有解析解,只能用数值解的方法求解麦克斯韦方程。对于小粒子而言,离散偶极子近似(DDA)<sup>[4~7]</sup>是一种较好的数值处理方法,相对于 T 矩阵<sup>[8,9]</sup>和时域有限差分法(FDTD)<sup>[10]</sup>,DDA 迭代法效率高,程序处理简单,运算速度快。近年来 DDA 被发展成为一种原则上可对任意形状的小粒子进行散射计算的新方法,在研究光与纳米粒子的相互作用方面<sup>[11]</sup>,已经显示出了较大的优越性。鉴于纳米石墨是星际尘埃<sup>[12]</sup>和一些化学烟幕的主要成分,本文利用 DDA 方法,对基于分形生长的受限扩散(DLA)模型模拟得到的纳米石墨凝聚粒子的散射问题进行了数值计算,为进一步研究光在复杂形态粒子中的散射和传输特性提供了一定的基础。

## 2 离散偶极子近似方法

DDA 的基本思想是将整个粒子的电磁相互作用特性用一群位于空间网格上的电偶极子来等效,空间网格的间隔要比电磁波波长小得多。设一任意粒子处于自由空间中,粒子的相对介电常数为  $\epsilon_r(\mathbf{r})$ ,磁导率为  $\mu_0$ 。将该粒子分成  $N$  个空间单元,每个空间单元均视为电偶极子处理,假定第  $j$  个电偶极子的位置矢量为  $\mathbf{r}_j$ ,极化率为  $\alpha_j$ ,感生的电偶极矩为  $\mathbf{P}_j$ ,则电偶极矩可表示为

$$\mathbf{P}_j = \alpha_j \mathbf{E}_j(\mathbf{r}), \quad (1)$$

式中  $\mathbf{E}_j(\mathbf{r})$  是作用在  $\mathbf{r}_j$  处偶极子上的总局域电场,包括入射电场及其它偶极子在该处所形成的偶极电场,可表示为

$$\mathbf{E}_j = \mathbf{E}_{\text{inc},j} - \sum_{k \neq j} \mathbf{A}_{jk} \mathbf{P}_k, \quad (2)$$

式中  $\mathbf{E}_{\text{inc},j}$  是入射波在  $\mathbf{r}_j$  处的电场;  $-\mathbf{A}_{jk} \mathbf{P}_k$  是  $\mathbf{r}_k$  处的偶极子在  $\mathbf{r}_j$  处产生的电场,由偶极子散射理论,可以用下式表示为

$$\mathbf{A}_{jk} \mathbf{P}_k = \frac{\exp(ikr_{jk})}{r_{jk}^3} \left\{ k^2 \mathbf{r}_{jk} \times (\mathbf{r}_{jk} \times \mathbf{P}_k) + \frac{(1 - jkr_{jk})}{r_{jk}^2} \cdot [\mathbf{r}_{jk}^2 \mathbf{P}_k - 3\mathbf{r}_{jk}(\mathbf{r}_{jk} \cdot \mathbf{P}_k)] \right\} \quad (j \neq k) \quad (3)$$

式中  $\mathbf{r}_{jk} = \mathbf{r}_j - \mathbf{r}_k$ 。为了方便分析,当  $j = k$  时,可令  $\mathbf{A}_{jj} = \alpha_j^{-1}$ ,这样可得电偶极矩满足的方程

$$\sum_{k=1}^N \mathbf{A}_{jk} \mathbf{P}_k = \mathbf{E}_{\text{inc},j} \quad (j = 1, \dots, N), \quad (4)$$

由(4)式求得偶极矩矢量后,即可进行粒子的散射特性分析。

用 DDA 方法进行计算时,应该使波在两个偶极子间的相移小于 1,即  $|m|kd \leq 1$ 。其中  $m$  为粒子的复折射率,  $d$  是立方体边长,也是粒子离散所用的间距。对于一个等效半径为  $a_{\text{eff}}$  的粒子,如果将粒子离散为  $n$  个偶极子阵列,则有

$$n \geq \frac{4\pi}{3} |m|^3 (ka_{\text{eff}})^3. \quad (5)$$

(5)式是 DDA 方法中离散偶极子数  $n$  所满足的条件,对于一定的  $m$  和  $ka_{\text{eff}}$ ,偶极子数目  $n$  越大,计算结果越准确。

## 3 凝聚粒子分形结构模拟

分形生长的 DLA 模型是一种单体凝聚模型,由 Witten 和 Sander 于 1981 年提出,早期用来研究悬浮在溶液或大气中的金属粉、煤灰和烟尘等微粒的无规则扩散凝聚过程。利用 DLA 模型,对纳米石墨凝聚粒子的生长过程模拟如下:选取一个  $L \times L \times L$  的方形晶格,正中心放置一个种子粒子,为生长中心。在半径为  $R_0$  的球面上随机释放一个粒子,令其依随机步长及随机方位游走。如果粒子运动到半径为  $R_{\text{max}} (R_{\text{max}} > R_0)$  的球体边界处,则令其停止运动并消失,重新释放粒子;如果粒子的随机运动是进入种子的最近邻并被种子粘附,则认为是凝聚集团的一部分,对其计数,并保存坐标;重复上述过程,并不断调整释放半径  $R_0$ ,直到凝聚粒子数目达到规定的数目要求为止,最后在中央形成一个凝聚粒子。图 1 是用 MATLAB 编程,分别由 30、50、80 和 100 个球形粒子模拟形成的凝聚粒子分形结构。

DLA 模型得到的凝聚粒子分形维数,可根据回旋半径法计算。原始粒子数  $N$  与凝聚粒子的回旋半径  $R_g$  和分形维数  $D_f$  存在如下关系式:

$$N \sim R_g^{D_f}, \quad (6)$$

回旋半径的计算式为

$$R_g^2 = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N r_i^2, \quad (7)$$

式中  $r_i$  是第  $i$  个原始粒子中心到凝聚粒子中心的距离。通过数值模拟可给出相应的  $\ln N \sim \ln R_g$  关系曲线,用最小二乘法拟合一条直线,求出斜率,即可得分形维  $D_f$  的值。经计算在三维空间中,DLA 模拟的凝聚粒子的分形维数分布在 2.0~3.0 范围,取值 2.5 附近较多。

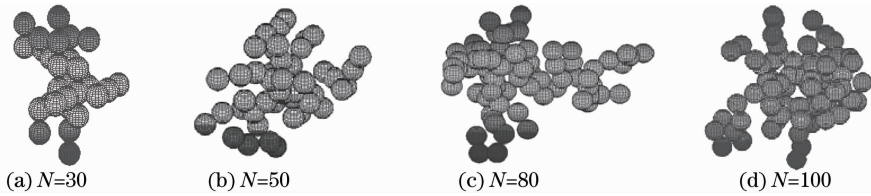


图1 基于DLA模型生成的含有不同原始粒子数目的凝聚粒子分形结构

Fig. 1 Structure of nano-graphite aggregates obtained from DLA model

## 4 数值计算结果

石墨具有各向异性,电场矢量平行于 $c$ 轴的介电常数 $\epsilon_{//}$ 和垂直于 $c$ 轴的介电常数 $\epsilon_{\perp}$ 具有不同的值,由于纳米石墨粒子随机取向,可以认为三分之一粒子的介电常数为 $\epsilon_{//}$ ,三分之二的粒子具有 $\epsilon_{\perp}$ 的介电常数,故下面的散射计算中,纳米石墨粒子的介电常数按照 $\epsilon = \epsilon_{//}/3 + 2\epsilon_{\perp}/3$ 取值<sup>[12]</sup>。 $\epsilon$ 与波长有关,对于波长 $\lambda = 0.5, 1, 4 \mu\text{m}$ 的入射波,纳米石墨的介电常数取值分别为 $\epsilon = 5.0522 + 6.0854i$ ,  $5.9130 + 8.3028i$ ,  $9.3304 + 21.8357i$ 。显然,纳米石墨粒子的介电常数实部和虚部都随着波长的变长而增大。

### 4.1 凝聚粒子方位角数对散射强度计算结果的影响

设非极化入射波在实验室坐标系中沿 $x$ 轴方向

入射,在 $XY$ 散射平面内,散射波方向用散射角 $\theta$ 表示。凝聚粒子散射特性与其空间取向有关,用方位角 $\Theta[0, 180^\circ]$ ,  $\beta[0, 360^\circ]$ 和 $\Phi[0, 360^\circ]$ 表示其取向,用 $(n_{\Theta}, n_{\beta}, n_{\Phi})$ 表示3个方位角在空间的取值数目,由于凝聚粒子在空间是随机取向的,大量粒子所反映出的散射特性应是所有方位角的统计平均结果, $n_{\Theta}, n_{\beta}, n_{\Phi}$ 取值越大越能反映随机取向粒子的散射特性,受计算机资源的限制,需要确定 $n_{\Theta}, n_{\beta}, n_{\Phi}$ 的最小取值。

以含有原始半径 $a_0 = 50 \text{ nm}$ 、粒子数 $N = 50$ 的纳米石墨凝聚粒子为例,利用DDA计算方位角数 $(n_{\Theta}, n_{\beta}, n_{\Phi})$ 不同时,散射强度随散射角的变化情况,结果如图2所示。计算用波长 $\lambda = 0.5 \mu\text{m}$ ,三维离散数为 $40 \times 40 \times 45$ ,凝聚粒子包含的偶极子数为 $n = 4873$ 个。

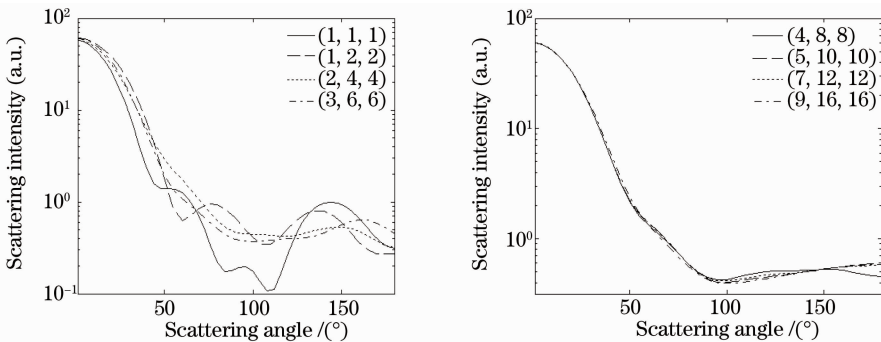


图2 方位角数不同时凝聚粒子的散射强度角分布

Fig. 2 Scattering intensity of aggregates versus scattering angles for different numbers of orientation angles

从图2所示的计算结果可以看出,方位角数目较少时,凝聚粒子的散射强度起伏变化比较明显,曲线间的差异也较大;随着方位角数增加,统计平均的结果削弱了散射强度的起伏变化,曲线间的差异也很小,方位角数为 $(5, 10, 10)$ 、 $(7, 12, 12)$ 和 $(9, 16, 16)$ 的三条曲线基本一致(差异不大于5%),故下面的计算中, $n_{\Theta}, n_{\beta}, n_{\Phi}$ 分别取值为5, 10, 10,即500个方位角。

### 4.2 含有不同原始粒子数的凝聚粒子散射特性

对于图1所示的4种含有不同原始粒子数目的

纳米石墨凝聚粒子,基于DDA计算其对不同入射波长的散射强度和偏振度随散射角的变化情况如图3所示,每个纳米石墨原始粒径取 $a_0 = 50 \text{ nm}$ 。可以看出,当 $\lambda = 0.5 \mu\text{m}$ 时,纳米石墨凝聚粒子对该波长的散射主要集中在前向散射上, $\theta > 40^\circ$ 的散射很弱,且随着凝聚的粒子数目增多,凝聚粒子的有效尺寸变大,前向散射强度明显增加;在前、后散射方向上,4种凝聚粒子对应的散射光偏振度都相等,均为零,但在其他方向,偏振度随散射角的变化出现振荡,且相互间存在差异。当 $\lambda = 1 \mu\text{m}$ 时,凝聚粒子

散射强度整体减弱,但仍集中在前向散射区,和 $\lambda = 0.5 \mu\text{m}$ 时的情况相比,粒子数不同导致前向散射强度分布差异变大;4种凝聚粒子对应的散射光偏振度随散射角的起伏变化减小,在前、后向较大散射范围内差异很小,只在 $\pi/2$ 散射角附近差异较明显,在该散射角,粒子数越多,偏振度越小。当 $\lambda = 4 \mu\text{m}$

时,4种凝聚粒子散射强度整体进一步减弱,但每一种凝聚体前、后向散射强度差异较小,趋向于Rayleigh散射;粒子数不同导致凝聚粒子散射强度分布差异更大,粒子数越多,散射强度越大,但偏振度与粒子数 $N$ 关系不大,4条偏振度曲线基本相同。

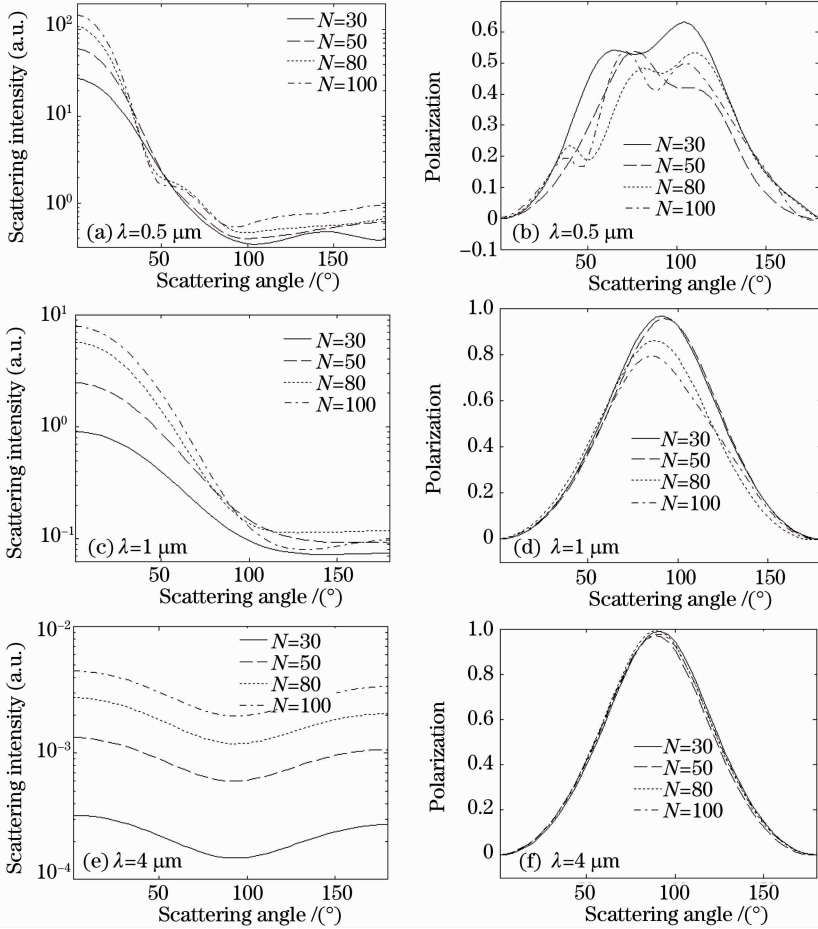


图3 不同粒子数组成的纳米石墨凝聚粒子对不同入射波长的散射强度和偏振度角分布

Fig. 3 Scattering intensity and the degree of linear polarization to different wavelengths for nano-graphite aggregates with different particle numbers versus scattering angles

### 4.3 不同分形结构的凝聚粒子散射特性

纳米石墨凝聚粒子的结构具有一定的随机性,即使包含的粒子数相同,凝聚粒子的结构也不尽相同,图4是利用DLA模型模拟得到的由 $N=50$ 个原始粒子形成的不同结构的凝聚粒子。分形维数

$D_f$ 由小到大分别为:2.28, 2.35, 2.48, 2.55和2.67,分形维数越大,粒子聚集越密集。计算得到这些纳米石墨凝聚粒子及等体积球的散射特性如图5所示,每个纳米石墨原始粒径 $a_0 = 50 \text{ nm}$ 。

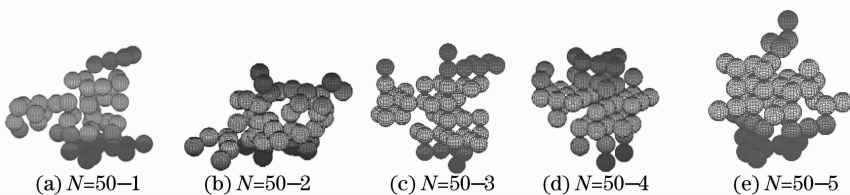


图4 由 $N=50$ 个原始粒子形成的不同结构的凝聚粒子

Fig. 4 Different structures of nano-graphite aggregates with  $N=50$  primary particles

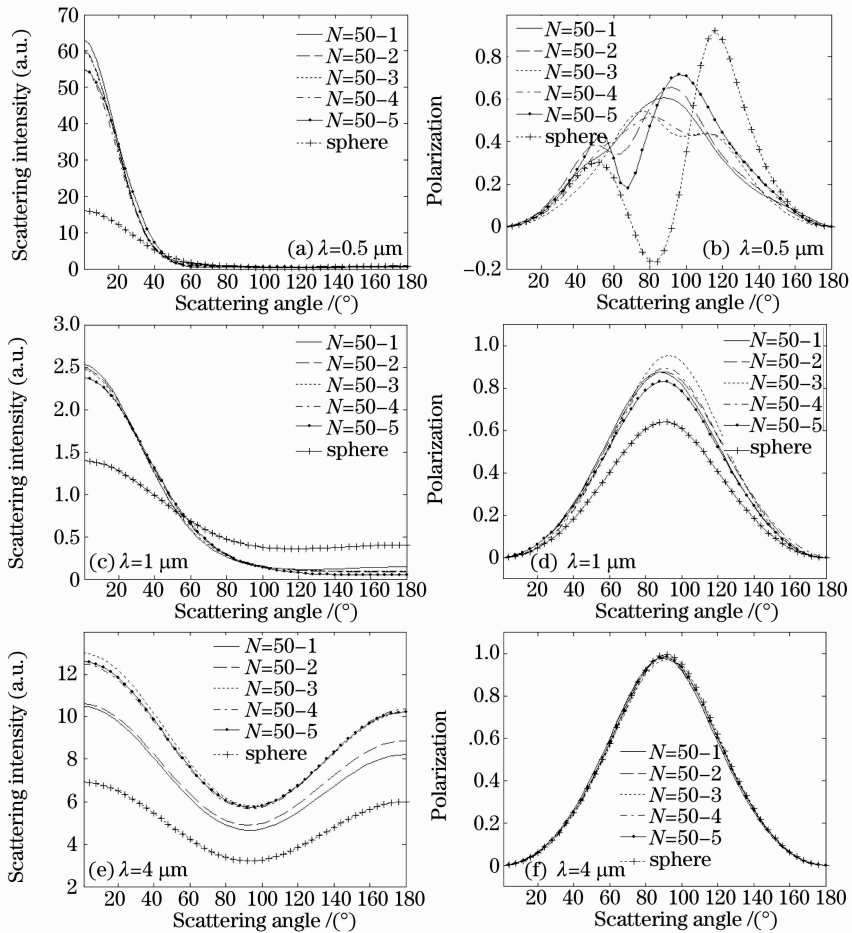


图5 不同结构的纳米石墨凝聚粒子及等体积球对不同入射波长的散射强度和偏振度角分布

Fig. 5 Scattering intensity and the degree of linear polarization to different wavelengths for nano-graphite aggregates with different structures and equal volume sphere versus scattering angles

图5(a)和(b)是当 $\lambda = 0.5 \mu\text{m}$ 时,由图4所示的5种结构的凝聚粒子及等体积球的散射强度和偏振度的角分布情况。显然,散射主要集中在前向,凝聚粒子的前向散射强度明显大于等体积球的前向散射强度,平均是后者的3.65倍。凝聚粒子包含的原始粒子数相同,但分形结构不同导致前向散射强度有差异,分形维数最小( $D_f = 2.28$ )的凝聚粒子,前向散射强度最大,原因是分形维数较小时,粒子聚集相对较疏散,无因次粒径参数相对较大。偏振度的差异主要体现在除前、后向以外的其他散射方向上,凝聚粒子分形维数越大,分形结构密集度越大,偏振度曲线振荡变化越明显,等体积球粒子相应的散射光偏振度振荡变化最显著。

图5(c)和(d)显示对于 $\lambda = 1 \mu\text{m}$ 的近红外,凝聚粒子的散射强度在 $0^\circ \sim 46^\circ$ 前向范围大于等体积球的散射强度,而在其余散射方向,小于等体积球的散射强度;分形维数较小的凝聚粒子其前向和后向散射强度都较大;偏振度的变化趋势基本一致,但在

$90^\circ$ 散射角附近,差异较大,凝聚粒子相应的散射光偏振度明显大于等体积球散射光偏振度,分形维数 $D_f = 2.48$ 的凝聚粒子在该散射角附近的产生的散射光偏振度最大。

图5(e)和(f)说明对于 $\lambda = 4 \mu\text{m}$ 的中红外,散射强度远弱于对可见光和近红外的散射强度,但后向散射相对增强,趋于Rayleigh散射。凝聚粒子分形维不同,散射强度存在较大差异,分形维数 $D_f = 2.48$ 的凝聚粒子散射强度最大,分形维数最小的凝聚粒子散射强度相对最弱;在所有散射方向,5种凝聚粒子的散射强度都显著大于等体积球的散射强度,而偏振度随散射角的变化规律基本相同。

## 5 结 论

根据分形生长的DLA模型,模拟了凝聚粒子三维空间的分形结构;以纳米石墨( $a_0 = 50 \text{ nm}$ )为例,对由不同原始粒子数目( $N \leq 100$ )组成的凝聚粒子、原始粒子数相同分形结构不同的凝聚粒子以及

等体积球粒子,利用 DDA 方法计算分析了其对可见光和近、中红外入射波的散射强度和偏振度随散射角的分布情况。研究表明,随着包含的原始粒子数目增多,凝聚粒子的前向散射强度显著增强,且差异随波长变长而变大;散射强度整体上随着波长的增大而减弱,但凝聚粒子的前向散射强度明显大于等体积球的前向散射强度;对可见光和近红外,粒子散射能量主要集中在前向,在中红外,前、后向散射强度差异减小,趋近 Rayleigh 散射。总体来说,凝聚粒子的散射特性与等体积球粒子的散射特性存在很显著的差异。

凝聚粒子散射特性与分形维数的关系比较复杂,通过对包含原始粒子数相同、分形维数在 2.28~2.67 之间的 5 种纳米石墨凝聚粒子散射强度和偏振度计算表明,对可见光和近红外,分形维数小的凝聚粒子前向散射强度相对强;但在中红外,分形维数小的凝聚粒子散射强度相对较弱。分形维数越大的凝聚粒子,对可见光的散射波偏振度随散射角的变化曲线振荡越显著;在中红外,偏振度与分形维数的关系不大,都趋近 Rayleigh 散射的偏振度分布。

致谢 美国 Princeton University 的 B. T. Draine 教授提供了 DDA 的主程序,在此表示感谢!

### 参 考 文 献

- 1 Smith D. A., Stokes K. L.. Discrete dipole approximation for magneto-optical scattering calculations[J]. *Opt. Express*, 2006, **14**(12): 5746~5754
- 2 Andersen A. C., Sotelo J. A., Pustovit V. N. *et al.*. Extinction calculations of multi-sphere polycrystalline graphitic clusters[J]. *A & A*, 2002, **386**(1): 296~307
- 3 Li Liu, M. I. Mishchenko, W. P. Arnott. A study of radiative

- properties of fractal soot aggregates using the superposition T-matrix method[J]. *J. Quant. Spectrosc. & Radiat Transf.*, 2008, **109**: 2656~2663
- 4 Lei Chengxin, Liu Hanfa, Zhang Huaifu. Research on laser scattering property by randomly oriented soot clustered agglomerates[J]. *Acta Optica Sinica*, 2010, **30**(3): 876~880  
类成新,刘汉法,张化福.随机取向烟尘团簇粒子激光散射特性研究[J]. *光学学报*, 2010, **30**(3): 876~880
- 5 B. T. Draine, P. J. Flatau. Discrete-dipole approximation for scattering calculations[J]. *J. Opt. Soc. Am. A*, 1994, **11**(4): 1491~1499
- 6 Chaumet P. C., Rahmani A.. Efficient iterative solution of the discrete dipole approximation for magneto dielectric scatters[J]. *Opt. Lett.*, 2009, **34**: 917~919
- 7 Yurkin M. A., Hoekstra A. G.. The discrete dipole approximation: an overview and recent developments [J]. *J. Quant. Spectrosc. & Radiat Transf.*, 2007, **106**: 558~589
- 8 Shao Shiyong, Huang Yinbo, Wei Heli *et al.*. Phase function of prolate spheroidal mono-disperse aerosol particles [J]. *Acta Optica Sinica*, 2009, **29**(1): 108~113  
邵士勇,黄印博,魏合理等.单分散长椭球形气溶胶粒子的散射相函数研究[J]. *光学学报*, 2009, **29**(1): 108~113
- 9 Sun Xianming, Wang Haihua, Liu Wanqiang *et al.*. Nonspherical model for sand dust storm and its application to the research of light multiple scattering[J]. *Acta Optica Sinica*, 2010, **30**(5): 1506~1510  
孙贤明,王海华,刘万强等.沙尘暴粒子的非球形模型及其对激光的多次散射特性研究[J]. *光学学报*, 2010, **30**(5): 1506~1510
- 10 Fang Yun, Zhang Jian, Wu Liying. Optical property simulation of liquid crystal based on finite-difference time-domain method [J]. *Acta Optica Sinica*, 2010, **30**(2): 562~566  
方运,张健,吴丽莹.基于时域有限差分法的液晶光学特性模拟[J]. *光学学报*, 2010, **30**(2): 562~566
- 11 Liu Juanyi, Yang Huan, Luo Xiangang *et al.*. Investigation of localized surface plasmons resonance properties of metal composition nanoparticles[J]. *Acta Optica Sinica*, 2010, **30**(4): 1092~1095  
刘娟意,杨欢,罗先刚等.金属复合纳米粒子的局域表面等离子体特性研究[J]. *光学学报*, 2010, **30**(4): 1092~1095
- 12 B. T. Draine. The discrete-dipole approximation and its application to interstellar graphite grains[J]. *Astrophys. J.*, 1988, **333**: 848~872