多粒径气溶胶凝聚粒子光学特性的数值计算

黄朝军^{1,2} 吴振森¹ 刘亚锋² 龙姝明² ¹西安电子科技大学理学院,陕西西安 710071 ²陕西理工学院物理与电信工程学院,陕西 汉中 723000

摘要 基于簇团-簇团凝聚(CCA)模型,利用蒙特卡罗法模拟了由不同半径球形基本粒子凝聚而成的多粒径气溶 胶凝聚粒子。结合物质的电结构,将气溶胶凝聚粒子离散为一系列偶极子,利用离散偶极子近似方法,数值计算了 不同波长入射情况下多粒径气溶胶凝聚粒子散射、吸收和消光效率因子等光学特征量的值,并将数值结果与等体积 单一粒径气溶胶凝聚粒子和等体积球形气溶胶粒子的光学特征量进行了对比。结果表明,气溶胶粒子光学特征量的 值取决于入射光的波长和气溶胶粒子的形状,并且单一粒径和多粒径气溶胶凝聚粒子的光学特性明显不同,其中多 粒径凝聚粒子模型更接近实际气溶胶粒子。分析结果为理解和研究气溶胶粒子光学特性提供了一定的参考。

关键词 物理光学;气溶胶凝聚粒子;光学特性;数值计算

doi: 10.3788/AOS201333.0601004 **中图分类**号 O436 文献标识码 A

Numerical Calculation of Optical Properties of Multi-Particle Size Aerosol Aggregate Particles

Huang Chaojun^{1,2} Wu Zhensen¹ Liu Yafeng² Long Shuming²

¹ School of Science, Xidian University, Xi'an, Shaanxi 710071, China

² School of Physics and Telecommunication Engineering, Shaanxi University of Technology, Hanzhong, Shaanxi 723000, China

Abstract Based on cluster-cluster aggregation (CCA) model, Monte Carlo method is taken to simulate the multiparticle size aerosol aggregates particles which consist of spherical original particles with different radius. According to electrical structure of substance, the aerosol aggregates particles are dispersed into a series of dipoles. By using discrete dipole approximation method, the values of optical characteristic quantities are obtained, such as scattering, absorption and extinction efficiency factors of multi-particle size aerosol aggregates particles with different incident wavelengths. Numerical results are compared with the characteristic quantities of the single particle size aerosol aggregates particles and the spherical aerosol particle of equal volume. Results show that the value of optical characteristic quantities of aerosol particles depends on the wavelength of incident light and shape of aerosol particles. There is significantly difference of the optical properties between single-particle size aerosol aggregates particles and multi-particle ones. The multi-particle size aerosol aggregates particles model is much closer to real aerosol particles. The findings provide a certain reference for comprehensive understanding and researching on the optical properties of aerosol particles.

Key words physical optics; aerosol aggregate particles; optical property; numerical calculation OCIS codes 260.0260: 290.1090: 290.5850

收稿日期: 2013-01-07; 收到修改稿日期: 2013-03-08

基金项目:国家自然科学基金(41105107,61172031)、陕西省自然科学基金(2010JM5011)和陕西省教育厅科学研究计划 项目(2013JK0853)资助课题。

作者简介:黄朝军(1977—),男,博士研究生,副教授,主要从事无线电物理和大气光学方面的研究。

E-mail: chaojun1125 @yahoo.com.cn

导师简介:吴振森(1946—),男,教授,博士生导师,主要从事复杂目标环境电磁光散射特性及波传播等方面的研究。 E-mail: wuzhs@mail, xidian, edu, cn

1引 言

作为大气的重要组成部分,大气气溶胶是气候 效应和环境效应中的重要影响因子。大气气溶胶粒 子一方面可以通过散射、吸收太阳辐射和吸收、发射 红外辐射直接影响地气系统辐射能收支,影响区域 和全球的气候及生态环境;另一方面可作为云的凝 结核改变云的光学特性和生命期,间接影响气 候^[1~3];另外,气溶胶颗粒物还可以直接导致大气污 染,严重影响人类生存环境^[4.5]。对大气气溶胶,尤 其对其光学特性的特性研究一直是当前的热门课 题^[6],这是因为大气气溶胶的光学厚度和气溶胶粒 子的吸收、散射效率因子等光学参量不仅是表征大 气混浊度和气溶胶含量的一个重要物理量,而且还 是评价大气污染状况和研究气溶胶辐射气候效应的 重要因子。

对于气溶胶粒子光学特性的研究方法大致可分 为数值计算、实验测量和利用卫星谣感数据进行反 演。相对而言,理论计算几乎不需要实验设备,所需 成本较低,不仅能从本质上分析影响气溶胶粒子光 学特性的原因,还能为实验测量和利用卫星遥感数 据反演气溶胶光学特性提供参考。通过理论计算分 析气溶胶粒子光学特性的前提是找出符合实际气溶 胶粒子空间结构和几何特征的模型,然后通过理论 分析和数值计算研究气溶胶粒子的光学特性。过去 是将气溶胶粒子等效为球形或者椭球形等单体形 状,结合电磁(光)散射理论和程序设计给出描述其 光学特性特征量的数值结果。但随着科学技术的发 展以及实验手段和计算手段的改进,实验观察和研 究表明,大部分气溶胶粒子并不是单体形状,而是一 些小的单体气溶胶原始微粒由于碰撞、粘附等作用 形成具有分形结构的随机取向凝聚粒子体系[7,8]。 显然单体气溶胶粒子光学特性的理论计算不能全面 真实地反映实际气溶胶粒子的光学特性。

近年来,已有大量关于气溶胶凝聚粒子光学特 性数值计算方面的文献报道,其中对由相同半径球 形粒子凝聚而成的单粒径气溶胶凝聚粒子光学特性 数值计算的文献较多^[9~15],而对不同粒径基本粒子 凝聚而成的多粒径气溶胶凝聚粒子光学特性数值计 算的文献则比较少。实际上,几乎不存在相同粒径 基本粒子凝聚而成的气溶胶凝聚粒子,因此在研究 气溶胶凝聚粒子光学特性时,若只考虑单一粒径气 溶胶凝聚粒子,虽然数值计算便于实现,但所得结果 必不能全面真实的反映气溶胶凝聚粒子的光学特 性。为此,必须考虑多粒径气溶胶凝聚粒子的光学 特性。本文基于簇团-簇团凝聚(CCA)模型利用 Monte Carlo 法^[7,16]模拟了不同粒径球形基本粒子 凝聚而成的多粒径气溶胶凝聚粒子,结合离散偶极 子近似(DDA)方法^[17],数值计算了多粒径气溶胶凝 聚粒子光学特征量随入射波长变化的值,并将所得 结果与等体积的单一粒径气溶胶凝聚粒子和等体积 的球形气溶胶粒子光学特征量的数值结果进行了对 比,最后分析了基本粒子的粒径和入射光的波长对 气溶胶凝聚粒子光学特性的影响。

2 理论分析

2.1 计算方法

气溶胶凝聚粒子形成过程的随机性,导致其不 仅具有复杂的空间结构,而且还具有分形特征,其光 学特性的研究只能以数值解的形式给出。DDA 方 法以其迭代效率高、运算速度快等优点,广泛应用于 凝聚粒子光学特性的数值计算^[12~15,17]。根据物质 的电结构,将气溶胶凝聚粒子离散为 N 个偶极子, 偶极子的极化率 α_j (j = 1, 2, ..., N)采用 Draine 和 Goodman 修正过的线性极化率(LDR)^[18],设第 j 个 偶极子的坐标为 r_j ,根据 DDA 方法可得气溶胶凝 聚粒子中第 j 个偶极子的偶极矩为^[17]

 $p_{j} = \alpha_{j}E_{j}, \quad j = 1, 2, ..., N,$ (1) 式中 $E_{j} = E_{inc,j} + E_{sca,j}$ 是第 j 个偶极子所在位置的 总电场强度,是第 j 个偶极子所在处入射场 $E_{inc,j}$ 与 其他所有偶极子散射场 $E_{sca,j}$ 的总和。在获得每一 个偶极子的电偶极矩 p_{j} 之后,就可由 p_{j} 来求得气 溶胶凝聚粒子的吸收、散射和消光效率因子及不对 称因子等光学特征量^[17],

吸收效率因子

$$Q_{\text{abs}} = \frac{4k}{|E_{\text{inc}}|^2 a_{\text{eff}}^2} \sum_{j=1}^N \left\{ \text{Im} \left[\boldsymbol{p}_j \cdot (\boldsymbol{\alpha}_j^{-1})^* \boldsymbol{p}_j^* \right] - \frac{2}{3} k^3 |\boldsymbol{p}_j|^2 \right\},$$
(2)

散射效率因子

$$Q_{\rm sca} = \frac{k^4}{|E_{\rm inc}|^2 a_{\rm eff}^2} \int d\Omega \Big| \sum_{j=1}^N [p_j - \hat{n}(\hat{n} \cdot p_j)] \exp(-ik\hat{n} \cdot r_j) \Big|^2, \qquad (3)$$

消光效率因子

不对称因子

$$Q_{\text{ext}} = \frac{4k}{|E_{\text{inc}}|^2 a_{\text{eff}}^2} \sum_{j=1}^N \text{Im}(\boldsymbol{E}_{\text{inc},j}^* \cdot \boldsymbol{p}_j), \qquad (4)$$

$$g = \langle \cos \theta \rangle = \frac{k^3}{C_{\text{sca}} |\boldsymbol{E}_{\text{inc}}|^2} \int d\Omega \, \boldsymbol{\hat{n}} \cdot \boldsymbol{k} \, \Big| \sum_{j=1}^N [\boldsymbol{p}_j - \boldsymbol{\hat{n}} (\boldsymbol{\hat{n}} \cdot \boldsymbol{P}_j)] \exp(-i\boldsymbol{k}\boldsymbol{\hat{n}} \cdot \boldsymbol{r}_j) \, \Big|^2,$$
(5)

式中 C_{sca} 为散射截面, E_{inc} 为入射场, $d\Omega$ 立体角微 元,n 为散射方向的单位矢量, $k \equiv 2\pi/\lambda$, λ 为入射光 的波长, a_{eff} 为气溶胶凝聚粒子等体积球的等效半 径,上标*表示取复共轭。对于随机取向的气溶胶 凝聚粒子,其不对称因子、散射、吸收和消光效率因 子等光学特征量可以通过求统计平均的方法获得, 如效率因子

$$\langle Q \rangle = rac{1}{8\pi^3 a_{
m eff}^2} \int\limits_{0}^{2\pi} \mathrm{d}\beta \int\limits_{-1}^{1} \mathrm{d}\cos \Theta \int\limits_{0}^{2\pi} \mathrm{d}\Phi Q(\beta,\Theta,\Phi) \,, \ (6)$$

式中 $\langle Q \rangle$ 为气溶胶凝聚粒子效率因子各种取向的 统计平均值, $Q(\beta, \Theta, \Phi)$ 为系统中某特定取向气溶 胶凝聚粒子的效率因子, β, Θ, Φ 为气溶胶凝聚粒子 在系统坐标系中的空间方位角,其取值范围为 $\beta \in$ $[0^{\circ}, 360^{\circ}], \Theta \in [0^{\circ}, 180^{\circ}], \Phi \in [0^{\circ}, 360^{\circ}].$

2.2 气溶胶粒子模型

气溶胶凝聚粒子是由小的原始气溶胶单体粒子 在随机运动过程中由于碰撞、粘附等作用凝聚而成, 这种形成过程适合用 CCA 模型来模拟^[7,8],CCA 模 型的模拟过程为:让所有原始气溶胶单体粒子同时 进入一个区域并作随机运动,一旦粒子与粒子相遇 就形成粒子团,并进一步与其他随机运动的粒子或 粒子团相遇形成更大的粒子团,直到所有的原始微 粒都凝聚在一起。为对比分析单一粒径和多粒径气 溶胶凝聚粒子光学特性的差异,基于 CCA 模型,利 用 Monte Carlo 法分别模拟了由 64 个球形基本粒 子凝聚而成的两种随机取向气溶胶凝聚粒子,如 图 1所示。其中,图 1(b)中簇团 2 是多粒径凝聚粒



图 1 随机取向气溶胶凝聚粒子。(a)簇团 1;(b)簇团 2 Fig. 1 Randomly oriented aerosol aggregates particles. (a) Cluster 1;(b) cluster 2 子,根据文献[19]中气溶胶粒子尺度谱分布,基本粒 子半径 r_p选择谱分布函数较大的 0.100~0.300 μm 区间随机取值;图 1(a)中簇团 1 是与图 1(b)中簇团 等体积的单一粒径凝聚粒子,基本粒子半径 r_p 都为 0.215 μm。由图 1 可知,对于相同数目基本粒子凝聚 而成的等体积气溶胶凝聚粒子,由于基本粒子的粒 径和凝聚过程中基本粒子和小粒子团运动的随机 性,导致所有原始微粒都凝聚在一起的气溶胶凝聚 粒子的空间形态和取向完全不同。

3 数值结果

以图1所示气溶胶凝聚粒子为模型,利用(6)式 数值计算了这两种气溶胶凝聚粒子和等体积的球形 气溶胶粒子在不同波长入射情况下吸收、散射和消 光效率因子及不对称因子各种取向的统计平均值。 计算中气溶胶粒子的类型选取烟尘型气溶胶,因为 相对其他类型气溶胶粒子,烟尘性气溶胶粒子的折 射率具有较大的虚部,其对能量的吸收更为突出,而 且还可为烟幕消光特性的研究提供计算方法。与入 射光波长相对应的气溶胶粒子折射率的值源自文献 [20]。

图 2 为图 1 中两种气溶胶凝聚粒子和等体积的 球形气溶胶粒子吸收效率因子统计平均值随波长变 化的曲线。由图 2 可知,三种粒子的吸收效率因子



图 2 吸收效率因子统计平均值随波长的变化 Fig. 2 Statistical average of absorption efficiency factor versus wavelength

随波长变化的值完全不同,波长较小时,球形粒子吸 收效率因子的值最小,单一粒径凝聚粒子吸收效率 因子的值最大。当波长增大到一定程度时,单一粒 径凝聚粒子吸收效率因子有趋于最小,而球形粒子 吸收效率因子又有趋于最大的趋势;球形粒子的吸 收效率因子随波长的增大而增大,当波长增加到一 定程度时有趋于平稳的趋势,而凝聚粒子的吸收效 率因子在波长较小时,随波长的增大而增大,当波长 增大到一定值时又随波长的增大而减小。造成这种 变化趋势的原因为随波长的增大,烟尘气溶胶粒子 折射率的实部和虚部都在增大,从而使得气溶胶粒 子对光的吸收比例增大。但对于凝聚粒子,由于其 存在孔隙特性,当波长增大到一定程度时,受孔隙的 影响,孔隙率大的单一粒径凝聚粒子对光的吸收比 孔隙率小的多粒径凝聚粒子小;同时气溶胶粒子对 光的吸收还受气溶胶粒子尺寸参数的影响,随着波 长的增大,粒子的尺寸参数减小,光被气溶胶粒子吸 收的比例也在减小。

图 3 为图 1 中两种气溶胶凝聚粒子和等体积的 球形气溶胶粒子散射效率因子统计平均值随波长变 化的曲线。由图 3 可知,三种气溶胶粒子散射效率 因子随波长变化的差异非常明显。波长较小时,球 形气溶胶粒子的散射效率因子最小,单粒径气溶胶 凝聚粒子的散射效率因子最大,波长增大到一定程 度时,球形气溶胶粒子的散射效率因子变得最大,而 单粒径气溶胶凝聚粒子的散射效率因子不仅取决于入射 波长,还取决于粒子的形状,孔隙特性和尺寸参数。





图 4 为图 1 中两种气溶胶凝聚粒子和等体积的 球形气溶胶粒子散射效率因子统计平均值随波长变 化的曲线。消光效率因子描述的是气溶胶凝聚粒子





对入射光散射和吸收的总和 $\langle Q_{ext} \rangle = \langle Q_{sca} \rangle +$ $\langle Q_{\text{ext}} \rangle$ 。由图 4 可知,消光效率因子的变化趋势完全 取决于散射和吸收效率因子。吸收、散射和消光效 率因子不仅是描述气溶胶粒子光散射特性的特征 量,而且还是研究气溶胶中光传输特性的重要参量, 效率因子的准确计算不仅能真实反映气溶胶凝聚粒 子的光散射特性,而且还直接影响气溶胶中光传输 特性数值计算的精度。因此,准确获取气溶胶粒子 光学特性的特征量具有重要的实际应用价值。 图 2~4 表明折射率、粒子的形状、入射光的波长以 及凝聚粒子中基本粒子的粒径都是决定气溶胶凝聚 粒子光学特性的主要参量。而且,图 2~4 还表明, 单粒径与多粒径气溶胶凝聚粒子的光学特性截然不 同,而实际的气溶胶凝聚粒子几乎不存在单粒径凝 聚粒子,所以在实际应用中,若用单粒径凝聚粒子来 近似实际气溶胶凝聚粒子,所得结果必然存在误差。

图 5 为图 1 中两种气溶胶凝聚粒子和等体积的 球形气溶胶粒子不对称因子统计平均值随波长变化 的曲线。不对称因子 g 不仅是表征散射体前向散



图 5 不对称因子统计平均值随波长的变化 Fig. 5 Statistical average of asymmetry parameter versus wavelength

射的方向性和前向散射动量以及辐射压力效率因子 等描述粒子光散射特性的一个重要的参量,还是描 述粒子前向散射和后向散射不对称性的一个参量。 由图 4 可知,在波长较小时,单粒径和多粒径气溶胶 凝聚粒子的不对称因子基本相同,随着波长的增大, 两者的差异就比较明显,但波长增大到一定程度时, 两者又有趋于一致的趋势;而等体积球形气溶胶粒 子则与气溶胶凝聚粒子的不对称因子差异非常明 显,说明在研究气溶胶粒子光学特性时若统一用单 粒径凝聚粒子或球形粒子来近似所有的气溶胶粒 子,所得结果必不能反映气溶胶粒子的真实特性。 图 5 还表明,波长越小,不对称因子的值越接近 1, 说明此时的散射主要集中于前向散射。

4 结 论

利用 Monte Carlo 法,模拟了由 64 个相同和不 同粒径基本粒子凝聚而成的随机取向气溶胶凝聚粒 子,结合离散偶极子近似方法数值计算了不同波长 入射情况下等体积的单一粒径和多粒径气溶胶凝聚 粒子以及等体积的球形气溶胶粒子的不对称因子、 散射、吸收和消光效率因子各种取向的统计平均值。 结果表明,气溶胶粒子的光学特性取决于粒子的形 状和入射光的波长,对于气溶胶凝聚粒子,其光学特 性还取决于凝聚粒子中基本粒子的粒径。对于相同 的入射光波长,多粒径与单粒径气溶胶凝聚粒子的 光学特性不同。考虑到实际气溶胶凝聚粒子几乎不 存在单一粒径的基本粒子,多粒径气溶胶凝聚粒子光 学因子的数值计算不仅能更准确地反映气溶胶粒子 的光学特性,而且还可以为气溶胶粒子光学特性的反 演以及气溶胶中光的传输特性的研究提供参考和方 法。为了便于计算和比较,只考虑了粒径在0.100~ 0.300 µm 之间随机取值的基本粒子凝聚而成的多粒 径气溶胶凝聚粒子,更进一步的研究应当依据气溶胶 粒子的尺度谱分布确定基本粒子的粒径范围。

参考文献

- 1 Y. J. Kaufman, D. Tanré, O. Boucher. A satellite view of aerosols in the climate system [J]. Nature, 2002, 419(6903): 215~223
- 2 U. Lohmann, G. Lesins. Stronger constraints on the anthropogenic indirect aerosol effect [J]. Science, 2002, 298(5595): 1012~1015
- 3 J. Quaas, O. Boucher. Impacts of greenhouse gases and aerosol direct and indirect effects on clouds and radiation in atmospheric GCM simulations of the 1930 ~ 1989 period [J]. *Climate Dynamics*, 2004, 23(7-8): 779~789

- 4 I. Rodriguez, S. Gali, C. Marcos. Atmospheric inorganic aerosol of a non-industrial city in the centre of an industrial region of the North of Spain, and its possible influence on the climate on a regional scale [J]. *Environ. Geo.*, 2009, **56**(8): 1551~1561
- 5 C. Xie, T. Nishizawa, N. Sugimoto *et al.*. Characteristics of aerosol optical properties in pollution and Asian dust episodes over Beijing, China [J]. *Appl. Opt.*, 2008, **47**(27): 4945~ 4951
- 6 Han Yong, Wang Tijian, Rao Ruizhong *et al.*. Progress in the study of physic-optics characteristics of atmospheric aerosols [J]. *Acta Physica Sinica*, 2008, 57(11): 7396~7407
 韩 永, 王体健, 饶瑞中等. 大气气溶胶物理光学特性研究进展 [J]. 物理学报, 2008, 57(11): 7396~7407
- 7 Z. Wu, I. Colbeck. Studies of the dynamic shape factor of aerosol agglomerates [J]. Europhysics Letters, 1996, 33(9): 719~724
- 8 S. K. Friedlander, C. Xiong. Measurements of fractal-like atmospheric particles [J]. J. Aerosol. Sci., 2000, 31(suppl. 1): 226~227
- 9 M. Kahnert, T. Nousiainen, H. Lindquist *et al.*. Optical properties of light absorbing carbon aggregates mixed with sulfate: assessment of different model geometries for climate forcing calculations [J]. *Opt. Express*, 2012, **20**(9): 10042~10058
- 10 K. N. Liou, Y. Takano, P. Yang. Light absorption and scattering by aggregates. Application to black carbon and snow grains [J]. J. Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer, 2011, 112(10): 1581~1594
- 11 M. Kahnert. Numerically exact computation of the optical properties of light absorbing carbon aggregates for wavelength of 200 nm-12. 2 μm [J]. Atmos. Chem. Phys., 2010, 10: 8319~ 8329
- Wang Hongxia, Ma Jin, Song Zibiao *et al.*. Light scattering properties of fractal aggregates [J]. Acta Optica Sinica, 2011, 31(3): 0329001 王红霞,马 进,宋仔标 等. 分形凝聚粒子的光散射特性研究
- [J]. 光学学报, 2011, 31(3): 0329001
 13 Lei Chengxin, Wu Zhensen, Feng Dongtai. Extinction characteristics of soot-silicate mixed agglomerates in random distribution [J]. Acta Optica Sinica, 2012, 32(4): 0429001 类成新, 吴振森, 冯东太. 随机分布黑碳-硅酸盐混合凝聚粒子的
- 消光特性研究[J]. 光学学报, 2012, **32**(4): 0429001 4 Huang Chaojing Wu Zhanson Lin Yafong *et al.* Effect of
- 14 Huang Chaojun, Wu Zhensen, Liu Yafeng *et al.*. Effect of porosity on optical properties of aerosol aggregate particles [J]. *Acta Optica Sinica*, 2013, 33(1): 0129001 黄朝军, 吴振森, 刘亚锋等. 孔隙率对气溶胶凝聚粒子光学特性的影响[J]. 光学学报, 2013, 33(1): 0129001
- 15 Huang Chaojun, Liu Yafeng, Wu Zhensen. Numerical calculation of optical cross section and scattering matrix for soot aggregation particles [J]. Acta Physica Sinica, 2007, 56(7): 4068~4074 黄朝军,刘亚锋,吴振森. 烟尘簇团粒子光学截面和散射矩阵的数值计算[J]. 物理学报,2007,56(7): 4068~4074
- 16 M. Balthasara, M. Frenklachb. Monte-Carlo simulation of soot particle coagulation and aggregation: the effect of a realistic size distribution [J]. *Proceedings of the Combustion Institute*, 2005, **30**(1): 1467~1475
- 17 B. T. Draine. The discrete-dipole approximation and its application to interstellar graphite grains [J]. Astrophys J., 1988, 333: 848~872
- 18 B. T. Draine, J. Goodman. Beyond Clausius-Mossotti-Wave propagation on a polarizable point lattice and the discrete dipole approximation [J]. Astrophys J., 1993, 405(2): 685~697
- 19 D. Deirmendjian. Electromagnetic Scattering on Spherical Polydispersions [M]. New York; American Elsevier Pub. Co., 1969. 75~77
- 20 T. L. Farias, M. G. Carvalho, U. O. Koylü. Radiative heat transfer in soot-containing combustion systems with aggregation [J]. Int. J. Heat Mass Transfer, 1998, 41(17): 2581~2587