微生物凝聚粒子群的激光透射率研究

报

赵欣颖 胡以华 顾有林 李 乐

1电子工程学院脉冲功率激光技术国家重点实验室,安徽合肥 230037 ²电子制约技术安徽省重点实验室,安徽 合肥 230037

摘要 为了研究微米量级微生物凝聚粒子群所构成的复杂介质环境对入射激光透射率的影响,采用团簇--团簇凝聚 模型模拟了微生物凝聚粒子的空间结构;利用离散偶极子近似方法计算其单次散射参量;通过蒙特卡罗仿真研究 了10.6μm 激光在微生物凝聚粒子群中的透射率。结果表明:当每个微生物凝聚粒子包含 20~50 个半径为1.5μm 的原始微粒,凝聚粒子数密度大于 800/cm³,测量区厚度为4m时,将孔隙率的值控制在 0.9 以下,可使 10.6 μm 激 光在微生物凝聚粒子群中的透射率小于10%。

关键词 材料;激光透射率;凝聚粒子群;蒙特卡罗;微生物 中图分类号 0436; TQ567.5; TN012 文献标识码 A doi: 10.3788/AOS201535.0616001

Transmittance of Laser in the Microorganism Aggregated Particle Swarm

Zhao Xinying Hu Yihua Gu Youlin Li Le

¹State Key Laboratory of Pulsed Power Laser Technology, Electronic Engineering Institute, Hefei, Anhui 230037, China ²Anhui Provincial Key Laboratory of Electronic Restriction Technology, Hefei, Anhui 230037, China

Abstract Complex media environment which is composed of micrometer-level microorganism aggregated particle swarm has great impact on laser transmittance. To study what the impact is, based on fractal theory, a cluster-cluster aggregation (CCA) model is used to simulate the fractal structure of microorganism aggregated particles, and the single scattering extinction parameters for aggregated particles are calculated using the discrete dipole approximation (DDA) method. Then the transmittance of 10.6 µm laser in microorganism aggregated particle swarm is studied with the Monte Carlo method. The results show that when each aggregated particle contains $20 \sim 50$ original particles, the radius of original particle is $1.5 \,\mu\text{m}$, the density of aggregated particles is higher than $800/\text{cm}^3$, and the porosity is less than 0.9, the transmittance of $10.6 \,\mu\text{m}$ laser in the microorganism aggregated particle swarm which has a 4 m-thick measurement area can be less than 10%.

Key words materials; transmittance of laser; aggregated particle swarm; Monte Carlo method; microorganism OCIS codes 160.1435; 160.4890; 260.2110; 290.1090; 290.5850

引 1 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复杂结构凝聚粒子群,如大气中的气溶胶粒 子、星际尘埃粒子和烟幕粒子等。在大气气溶胶中,细小的微生物颗粒由于静电、碰撞粘附而形成的微生物 凝聚粒子群是其中一个重要组成部分。在环境监测、大气遥感、目标探测以及烟幕消光机理认识等方面,研 究具有随机取向的微生物凝聚粒子群所构成的复杂介质环境对激光传输的影响,具有非常重要的意义"。

目前,针对复杂结构凝聚粒子群消光性能的研究工作已经展开。王红霞等四利用扩散限制凝聚模型

收稿日期: 2015-01-30; 收到修改稿日期: 2015-03-20

基金项目: 国家自然科学基金(61271353,60908033)、安徽省自然科学基金(1408085MKL47)

作者简介:赵欣颖(1991-),女,硕士研究生,主要从事电磁场方面的研究。E-mail:dd_321@sina.com

(DLA)模拟了纳米石墨凝聚粒子的可能结构,基于离散偶极子近似方法(DDA)计算其红外消光截面^[3]。吴振森等^[4]采用团簇-团簇凝聚模型(CCA)给出了随机分布烟尘团簇粒子的空间结构,并用蒙特卡罗方法研究了激光信号在随机分布烟尘团簇粒子中的传输衰减特性。但是上述研究工作均针对纳米量级的无机气溶胶凝聚粒子,在微米量级的微生物粒子方面,虽有文献用有限时域差分法(FDTD)^[5]或DDA计算^[6]其单次散射特性,但是对于微生物凝聚粒子群中激光衰减特性方面的研究还有待展开。

基于前期对课题组制备的微生物粒子的充分认识,本文采用CCA模拟了微生物凝聚粒子的空间结构, 利用离散偶极子近似方法得出微生物凝聚粒子的单次散射参量,通过蒙特卡罗方法仿真了10.6 μm 激光在 微生物凝聚粒子群中的透射率值。重点讨论了原始微粒的数目和半径、凝聚粒子的孔隙率、凝聚粒子群的 浓度与测量区域厚度等参数对激光在微生物凝聚粒子群中透射率的影响。

2 基本模型

2.1 单次散射计算模型

用 CCA 模型¹⁷模拟了黑曲霉孢子凝聚粒子的空间结构(每个凝聚粒子包含40个半径为1.5 μm 的原始微 粒),如图1(b)所示。图1(a)为放大5000倍的黑曲霉孢子扫描电子显微镜图。



图1 (a) 黑曲霉孢子的扫描电子显微镜图;(b) 用 CCA 构建的黑曲霉孢子凝聚粒子结构(M=40)

Fig.1 (a) Scanning electron micrograph of Aspergillus niger spores;

(b) structure of aggregated Aspergillus niger spores modeled by CCA (M=40)

从图1可以看出,微生物凝聚粒子的空间结构是不规则的,局部与整体结构相似,这种自相关性说明其具有分形特征,结构有孔隙。其原始微粒数目 M 和回旋半径 R_a的关系为^{isi}

$$R_{g}^{2} = \frac{1}{2M^{2}} \sum_{i=1}^{M} \sum_{j=1}^{M} \left| r_{i} - r_{j} \right|^{2}, \qquad (1)$$

式中r_i,r_i分别为第i个和第j个原始微粒在空间的坐标。凝聚粒子的孔隙率为⁹

$$P = 1 - M \left[r_{\rm p} / \left(\sqrt{5/3} R_{\rm g} \right) \right]^3, \qquad (2)$$

式中 r_p 为原始微粒半径。求出凝聚粒子的孔隙率之后就可以给出具有孔隙结构的凝聚粒子的等效折射率 m_{srr}^{10} :

$$m_{\rm eff}^2 = 1 + \frac{3(1-P)(m^2-1)/(m^2+2)}{1-(1-P)(m^2-1)/(m^2+2)},$$
(3)

式中 m 为该种微生物粒子的复折射率,在计算中用等效折射率 m_{en} 代替 m,所得结果更能反映 P 对微生物 凝聚粒子群透射率的影响。

微生物凝聚粒子的空间结构确定后,其单次散射参量用DDA计算^[11]。Draine^[12]指出,DDA算法的使用条件是 |*m*-1|≤3,*m* 是目标的复折射率。生物细胞粒子的折射率 *m* 一般为 1~2^[13],符合 DDA 使用条件。

2.2 蒙特卡罗仿真模型

光在随机介质中传输的蒙特卡罗方法是以概率模型为基础,通过计算机产生随机数来模拟单个光子在 介质中的随机行走和散射^[14]。计算介质透射率的主要过程是:光子以一定方向进入烟幕介质,根据烟幕中粒 子浓度和粒子消光截面,确定光子行进的路程和碰撞点位置;通过计算光子在该位置的吸收确定光子的权 重,如光子权重大于设定的阈值,根据相函数确定光子散射后新的运动方向;根据光子的运动方向和权重, 计算光子在该点直接透射出去的概率。以上过程重复进行,直到光子权重小于阈值,或离开烟幕。跟踪足 够数量的光子,就可得到较为稳定的烟幕透射率统计结果^[15]。

3 数值计算和结果分析

3.1 黑曲霉孢子凝聚粒子群

黑曲霉是常见的典型微生物之一,制备方便,可大量生产。以黑曲霉孢子凝聚粒子群为例进行数值计算。 黑曲霉孢子形状呈球形,半径分布在1~2 μm,平均半径为1.5 μm¹⁶,真空冷冻干燥处理后含水量很低。利用 Kramers-Kronig (K-K)关系计算得到黑曲霉孢子在10.6 μm 波长处的复折射率 *m* = 1.3404 + 0.4349i¹⁷。

为了验证 DDA 计算黑曲霉孢子凝聚粒子单次散射参量的正确性,构建了由7个半径为1.5 μm 的黑曲霉 孢子构成的凝聚粒子,如图2所示。用 DDA 计算该凝聚粒子在不同波长入射光下的消光截面 C_{est},与文献中 提供的生物细胞 FDTD 模型^[5]计算结果进行比较,结果如图3所示。由图3可以看出,DDA 计算结果与 FDTD 数据相差很小,特别是在 8~14 μm 波段,数据吻合较好。



图 2 微生物凝聚粒子(M=7) Fig.2 Microorganism aggregated particles (M=7)



particles

3.2 凝聚粒子所含的原始微粒数目

用 CCA 模型构建了原始粒子数目为 5~100 的随机取向黑曲霉孢子凝聚粒子的空间结构。假设凝聚粒子群的测量区域厚度为 4 m,凝聚粒子的粒子数密度为 200 cm⁻³,在 10.6 μm输出功率恒定的激光照射下,原始微粒数目 M 与凝聚粒子消光截面 C_{ext}、孔隙率 P 和粒子群透射率 T的关系如图4所示。

由图 4 可以看出,激光透射率 T 随着单个黑曲霉孢子凝聚粒子所含原始微粒数目 M 的增加总体呈现降低趋势。图 4(a)显示 T 随单个凝聚粒子消光截面 C_{ext} 的增加而减小,且两者波动变化相反。这是由于随着 M 的增加,入射光与黑曲霉孢子凝聚粒子作用后,被吸收和散射的程度也会增大,导致其消光截面的统计平均值增加;大量凝聚粒子构成粒子群后,对入射光的衰减作用增强,透射率下降。图 4(b)显示在 T 随 M 增加 而减小的过程中,其波动变化与单个凝聚粒子孔隙率 P 的变化相同,两者正相关。这是由于 P 大的凝聚粒子虽然分支多但结构疏松,粒子群对激光的衰减作用弱,透射率大;而 P 小的凝聚粒子结构紧密,粒子群对激光的衰减作用强,透射率小。



图 4 (a) 凝聚粒子群透射率和粒子消光截面随原始微粒数目的变化;(b) 凝聚粒子群透射率和粒子孔隙率随原始微粒数目的变化 Fig.4 (a) Change of particle swarm transmittance and extinction cross section of the aggregated particles with number of original particles; (b) change of particle swarm transmittance and porosity of the aggregated particles with number of original particles

3.3 凝聚粒子的孔隙率

图 5 给出的是 10 次随机生成的黑曲霉孢子凝聚粒子的孔隙率 P 随回旋半径 R_g变化的值,其中每一次 生成的凝聚粒子所含原始微粒数目 M 都为 50个,原始微粒半径 r=1.5 μm 。由图可以看出,当 M 和 r 确定 后,凝聚粒子的孔隙率 P 取决于回旋半径 R_g 。 R_g 越大,凝聚粒子的分支越多,结构越疏松, P 也越大。



图 5 孔隙率随回旋半径的变化



图 6 给出的是 10 次随机生成的黑曲霉孢子凝聚粒子的等效折射率 m_{eff} 随凝聚粒子孔隙率 P 的变化。由 图可以看出,当 10.6 μm 的入射波长确定后, m_{eff} 取决于凝聚粒子的 P, 两者变化趋势相反。这是由于 P 增加,凝聚粒子对光的吸收和散射作用减弱,导致 m_{eff} 的实部和虚部皆减小。



为说明微生物凝聚粒子所含原始粒子数目 M 对凝聚粒子孔隙率 P 的影响,给出 P 随 M 变化的规律,如 图 7 所示[由于图 7 中原始微粒数目 M 变化范围较大,因此在用 CCA 模型模拟凝聚粒子的空间结构时,为了

更加接近实际情况,图7中原始微粒所在三维立方运动空间的边长是图4(b)的两倍。因而两图所示相同 *M* 条件下的凝聚粒子空间结构并不相同,孔隙率数值也不一样]。由图7可以看出,随着 *M* 的增加, *P* 先是急 剧增加,且波动很大。当 *M* > 100后, *P* 几乎稳定在0.95。这种变化的原因在于用 CCA 模拟凝聚粒子的空间结构时, *M* 较小虽会导致凝聚粒子的回旋半径 *R*_s 较小,但由于其分支少致密度较好,从而 *P* 较小;同时 *M* 较小,粒子凝聚过程表现的随机性更强,凝聚粒子空间结构的差异更大, *P* 的波动也更剧烈(例如 *M*=4 时,4个原始微粒可以一线排开,可以排列成正方形平面,可以排列成空间立体金字塔形)。而当 *M* > 100后,凝聚过程中粒子的分支越来越多,慢慢形成深孔。因为要克服沿途已经凝聚的粒子的干扰,外围做随机运动的原始粒子或形成的小粒子团进入凝聚粒子内部的概率变小,从而在深孔的孔口处碰撞凝聚,进而起到封口的作用,阻止后续粒子的进入,最终造成所形成的凝聚粒子致密性差, *P* 较大。根据(1)式可知,随着 *M* 的继续增大, *R*_s 也将增大;结合(2)式,在 *M* 增大到一定值时,孔隙率 *P* 将趋于平稳。





图 8 给出在黑曲霉孢子凝聚粒子所含原始微粒数目 M 和半径 r 不变,凝聚粒子群的测量区域厚度为 4 m,凝聚粒子数密度为 200 cm⁻³ 的情况下,透射率 T 与单个凝聚粒子孔隙率 P 的关系。由图可见,粒子群 的透射率 T 随孔隙率 P 的增加而增加。结合图 4、7、8 可以看出,若想提高黑曲霉孢子凝聚粒子群对 10.6 μm 激光的衰减性能,对凝聚粒子所含原始微粒的数目 M 的控制很重要。 M 小会导致消光截面小,粒子群对光 的衰减性能弱; M 也不能太大,一方面, M 值过大后,单个凝聚粒子的质量大,沉降速度快,粒子群的滞空性 差;另一方面由图 7 可以看出, M 值过大,凝聚粒子的孔隙率 P 也大,不利于粒子群的消光性能。同时,在 M 一定的情况下,应选择 P 小、空间结构紧密的凝聚粒子。根据仿真数据的统计平均综合考虑,当孔隙率 P < 0.9 时, M 在 20~50 之间黑曲霉孢子凝聚粒子群对 10.6 μm 激光的衰减性能较好,透射率较小。

3.4 原始微粒半径、测量区域凝聚粒子的浓度与厚度

为了说明原始微粒粒径 r、测量区域凝聚粒子群厚度 d 对微生物凝聚粒子群透射率 T 的影响,计算了由 20个原始微粒组成, r 在 0.25~2 μm 范围均匀变化的黑曲霉孢子凝聚粒子群(凝聚粒子数密度 200 cm⁻³)在 10.6 μm 激光照射下的透射率。



Fig.9 Change of particle swarm transmittance with radius of original particles

由图9可以看出,透射率T随原始微粒半径r的增加先迅速下降,后缓慢减小。同时,在r一定时,透射率随测量区域粒子群厚度d的增加而减小。当凝聚粒子数密度一定,d=2m曲线下降的斜率约为-1,

d < 2 m 时,透射率 *T* 与原始微粒半径 *r* 呈弱负相关;随着 *d* 增加,*d* > 2 m 后, *T* 与 *r* 呈强负相关,*r* 在很小的 变化范围内就可以使凝聚粒子群的透射率 *T* 下降到 20% 以下。



Fig.10 Change of particle swarm transmittance with number density of particles

用蒙特卡罗方法仿真了黑曲霉孢子凝聚粒子群的粒子数密度 n₁ 对激光透射率 T 的影响。基于电镜图观察结果,每个黑曲霉孢子平均半径为1.5 μm,取每个黑曲霉孢子凝聚粒子平均包含 20 个原始微粒为 M 参数,以 CCA 构建凝聚粒子的空间结构(孔隙率为0.9221,等效折射率为1.0289+0.0287i,回旋半径为7.3836 μm),测量区域厚度为 4 m。从图 10 可以看出,随着 n₁ 的增加,T 迅速减小,在 n₁ > 800 cm⁻³ 后,T < 10%,趋于稳定。

为了验证仿真结果的可靠性,将仿真数据与大型烟幕箱实验所测数据比较。实验所用黑曲霉孢子经菌种活化→摇瓶培养→大型发酵罐发酵→离心机离心→纯净水清洗→真空冷冻干燥机干燥→超细中药粉碎机粉碎流程制备得到,存放在加硅胶的干燥皿中,室温下包藏^[16]。实验过程中,由于样品含水量低,短时间内其性状不随环境因素改变。取少量样品制片,在高倍显微镜下计数后估算得到每克黑曲霉样品中约含1.8×10¹⁰ 个孢子。黑曲霉孢子凝聚粒子的浓度通过施放材料的质量控制。实验所用10.6 μm CO₂激光器,输出功率恒定,激光光程为4m。实验时,用10 atm的N₂将喷头中的样品喷出,待样品在烟幕箱内扩散均匀后,以功率接收传感器在激光光程另一端接收穿透黑曲霉孢子凝聚粒子群的激光,转换为电信号输出。输出激光功率与初始功率的平均比值即为透射率。在烟幕箱实验中,由于材料施放方法的客观限制和材料扩散的不均匀性,都会导致实际起作用的材料质量小于施放的质量。定义烟幕箱内材料粒子分布较均匀、粒子浓度较稳定无明显变化时弥散在烟幕箱内材料的质量为有效质量 *a*eff 。 经实验数据估算,有效质量 *a*eff 为施放材料质量 *a* 的40%左右。考虑上述损耗因素,进行蒙特卡罗模拟时,以有效质量计算。仿真结果与实验结果测得的透射率数据如表1所示。

由表1可以看出,仿真透射率与烟幕箱实验透射率值很接近,可以较好地反映出10.6μm激光在黑曲霉 孢子凝聚粒子群中的透射率规律。并且,当烟幕箱中有效质量达到饱和后,即粒子密度饱和,随着施放黑曲 霉孢子质量的增加,透射率下降趋势变缓,接近于一个稳定值,与图10所示变化趋势相同。

Quality of materials	Effective mass	Experimental transmittance by	Transmittance by Monte Carlo
a /g	$a_{ m _{eff}}$ /g	smoke box /%	simulation /%
10	4	68.12	65.98
20	8	48.23	42.81
30	12	30.20	28.49
40	16	18.70	18.19
50	20	13.30	12.05
60	24	9.43	8.34
70	28	5.20	5.01
80	32	4.12	3.28

表1 烟幕箱实验透射率与蒙特卡罗仿真透射率 Table 1 Transmittance by smoke chamber experiment and Monte Carlo simulation

4 结 论

利用 CCA 模型模拟了随机取向微生物凝聚粒子的空间形态,并计算其单次散射参量,用蒙特卡罗方法

模拟了10.6 µm 激光在微生物凝聚粒子群中的透射率。结果表明:

1) 微生物凝聚粒子的孔隙率随所含原始微粒数目的增多而增大。但当原始粒子数目大于100后,孔隙 率稳定在 0.95 附近;

2) 当每个微生物凝聚粒子包含 20~50 个半径为 1.5 μm 的原始微粒,凝聚粒子数密度大于 800 cm⁻³,测量 区厚度为 4 m 时,将孔隙率的值控制在 0.9 以下,可使 10.6 μm 激光在微生物凝聚粒子群中的透射率小于 10%。

参 考 文 献

1 Huang Chaojun, Wu Zhensen, Liu Yafeng, *et al.*. Numerical calculation of optical properties of multi-partical size aerosol aggregate particals[J]. Acta Optica Sinica, 2013, 33(6): 0601004.

黄朝军,吴振森,刘亚峰,等.多粒径气溶胶凝聚粒子光学特性的数值计算[J].光学学报,2013,33(6):0601004.

- 2 T A Witten, L M Sander. Diffusion-limited aggregation, a kinetic critical phenomenon[J]. Physical Review Letters, 1981, 47(19): 1400-1403.
- 3 Wang Hongxia, Zhu Youzhang, Ma Jin, *et al.*. Study in the infrared extinction properties of nano-graphite aggregates[J]. Journal of Functional Materials, 2011, 4(42): 616-618.

王红霞, 竹有章, 马进, 等. 纳米石墨凝聚粒子红外消光特性研究[J]. 功能材料, 2011, 4(42): 616-618.

4 Lei Chengxin, Wu Zhensen, Zhang Huafu, *et al.*. Attenuation characteristics of laser in the randomly distributed soot agglomerates [J]. Acta Photonica Sinica, 2010, 39(6): 1021-1025.

类成新, 吴振森, 张化福, 等. 激光在随机分布烟尘团簇粒子中的衰减特性[J]. 光子学报, 2010, 39(6): 1021-1025.

5 Sun Dujuan, Hu Yihua, Wang Yong, et al.. Sub-microstructures' influences on cell's scattering prosperities[J]. Acta Photonica Sinica, 2013, 42(6): 710-714.

孙杜娟, 胡以华, 王 勇, 等. 生物细胞亚显微结构对光散射特性的影响[J]. 光子学报, 2013, 42(6): 710-714.

6 Liu Jianbin, Zeng Yingxin, Yang Chuping. Light scattering study of biological cells with the discretedipole approximation[J]. Infrared and Laser Engineering, 2014, 43(7): 2204–2208.

刘建斌,曾应新,杨初平.基于离散偶极子近似生物细胞光散射研究[J].红外与激光工程,2014,43(7):2204-2208.

- 7 C Li, H Xiong. 3D simulation of the cluster-cluster aggregation model[J]. Computer Physics Communications, 2014, 185(12): 3424-3429.
- 8 M Lattuada, H Wu, M Morbidelli. Radial density distribution of fractal clusters[J]. Chemical Engineering Science, 2004, 59(21): 4401-4413.
- 9 T Kozasa, J Blum, T Mukai. Optical properties of dust aggregates[J]. Astronomy and Astrophysics, 1992, 263(1-2): 423-432.
- 10 Huang Chaojun, Wu Zhensen, Liu Yafeng, *et al.*. Effect of porosity on optical properties of aerosol aggregate particals[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.

11 Ding Chizhu, Yang Kecheng, Li Wei, *et al.*. Intensity distribution of polarized light scattering for a nucleated cell[J]. Acta Optica Sinica, 2013, 33(11): 1129001.

丁驰竹,杨克成,李 微,等. 有核细胞对偏振光的散射强度分布[J]. 光学学报, 2013, 33(11): 1129001.

- 12 B T Draine. User Guide for the Discrete Dipole Approximation Code DDSCAT 7.3.
- 13 M Kinunen, A Kauppila, A Karmenyan, *et al.*. Effect of the size and shape of a red blood cell on elastic light scattering properties at the single-cell level[J]. Biomedical Optical Express, 2011, 2(7): 1803–1814.
- 14 Wu Chunyang, Lu Qipeng, Ding Haiquan, et al.. Noninvasive blood glucose sensing with near-infrared spectroscopy based on interstitial fluid[J]. Acta Optica Sinica, 2013, 33(11): 1117001.

吴春阳, 卢启鹏, 丁海泉, 等. 利用人体组织液进行近红外无创血糖测量[J]. 光学学报, 2013, 33(11): 1117001.

15 Wang Ziqian, Zhang Xudong, Jin Haihong, *et al.*. All sky turbid atmospheric polarization pattern modeling based on Monte Carlo method[J]. Acta Optica Sinica, 2014, 41(10): 1013001.

王子谦, 张旭东, 金海红, 等. 基于 Monte Carlo 方法的混浊大气偏振模式全天域建模[J]. 光学学报, 2013, 41(10): 1013001.

16 Li Le, Hu Yihua, Gu Youlin, et al.. Infrared extinction performance of Aspergillus niger spores[J]. Infrared and Laser Engineering, 2014, 43(7): 2175-2179.

李 乐, 胡以华, 顾有林, 等. 黑曲霉孢子红外波段消光性能研究[J]. 红外与激光工程, 2014, 43(7): 2175-2179.

17 Sun Dujuan, Hu Yihua, Gu Youlin, *et al.*. Determination and model construction of microbes' complex refractive index in far infrared band[J]. Acta Physica Sinica, 2013, 62(9): 268-276.

孙杜娟,胡以华,顾有林,等.微生物远红外波段复折射率测定及模型构建[J].物理学报,2013,62(9):268-276.

栏目编辑: 吴秀娟