

# 不同单体形状生物粒子凝聚体消光特性的差异分析

陈国龙<sup>1,3</sup>, 顾有林<sup>1,2,3\*</sup>, 胡以华<sup>1,2,3</sup>, 孟凡昊<sup>1,3</sup>, 张熙<sup>1,3</sup>

<sup>1</sup>国防科技大学脉冲功率激光技术国家重点实验室, 安徽合肥 230037;

<sup>2</sup>先进激光技术安徽省实验室, 安徽合肥 230037;

<sup>3</sup>国防科技大学, 安徽合肥 230037

**摘要** 针对生物粒子凝聚体单体形状和光学特性的复杂多变, 构建了5种不同单体形状的生物粒子凝聚体空间结构, 并用离散偶极子近似方法计算了生物粒子凝聚体的消光特性参数, 分析了不同单体形状生物粒子凝聚体的消光特性差异。计算结果表明: 非球形生物粒子凝聚体在将其单体形状等效为球形时, 平均质量消光系数的相对偏差绝对值在6%以内; 不同单体形状生物粒子凝聚体对光的散射能力不同是消光特性存在差异的主要表现, 且通常情况下单体形状越偏离球形, 相对偏差越大, 因此, 由不同单体形状引起的消光特性的差异不应被忽略。此项工作可应用于准确评估和优化生物粒子材料的消光性能。

**关键词** 生物粒子材料; 单体形状; 凝聚体; 红外; 消光特性

中图分类号 O433.1

文献标志码 A

DOI: 10.3788/AOS231644

## 1 引言

生物粒子材料作为一种新型的宽波段消光材料<sup>[1]</sup>, 主要由人工可控制备的生物孢子或菌丝等生物微粒构成, 这些生物粒子种类多样、成分丰富<sup>[2]</sup>、粒径分布广、形态结构各异。当生物粒子材料被释放到空气中时, 这些生物微粒在静电、碰撞或黏附作用下形成生物粒子凝聚体, 以生物气溶胶<sup>[3-4]</sup>的形式存在。生物气溶胶可以通过吸收和散射的作用改变光的透射特性<sup>[5-6]</sup>。因此, 生物粒子材料可以削弱可见光、激光和红外探测系统设备的能力, 从而用于实现对关键目标或设施的光电保护。生物粒子材料具有制备成本低、环保、无毒、易降解、消光波段宽等优点, 其消光性能的强弱受到广泛关注<sup>[6-10]</sup>。此前的研究大都将生物粒子单体形状简化近似为球形, 研究其凝聚体的消光特性<sup>[5,11]</sup>, 而最近的研究发现, 通过计算非球形生物粒子凝聚体的消光特性, 能够更加准确地获取生物粒子材料的消光特性<sup>[12]</sup>。但不同非球形生物粒子的单体形状对其随机取向凝聚体的消光特性参数计算结果的具体影响尚未被充分探究。

生物粒子凝聚体消光特性的数值计算依赖于凝聚体空间结构的准确构建, 而由于凝聚过程中粒子运动的随机性, 通常利用随机取向的凝聚模型进行模

拟<sup>[13-14]</sup>。但大部分凝聚模型仅适用于球形粒子的凝聚, 或需要将非球形粒子的运动等同于球形粒子的运动<sup>[15-16]</sup>; 个别凝聚模型可以实现椭球形粒子的随机取向运动凝聚<sup>[17]</sup>的直接模拟, 但并不适用于一些不规则粒子随机取向凝聚的仿真模拟。此前开发的非球形粒子凝聚(NSPA)模型<sup>[12]</sup>利用多球模型<sup>[18]</sup>来构建非球形生物粒子单体形状, 在随机运动的凝聚过程模拟中加入不规则粒子本身的随机旋转, 能够实现不同单体形状的生物粒子随机取向凝聚体的空间结构仿真模拟。

生物材料的消光性能与生物粒子单体形状、单体粒径以及材料复折射率(CRI)等因素密切相关。因此, 本文着眼于解决准确计算非球形生物粒子凝聚体消光特性参数的实际问题, 利用NSPA模型构建了具有不同单体形状的生物粒子凝聚体, 通过离散偶极子近似(DDA)方法计算分析了生物粒子凝聚体消光特性在不同单体粒径、单体数目及材料CRI等情况下的变化趋势, 研究了忽略单体形状不同导致的中远红外波段消光特性参数计算结果的相对偏差问题。通过大量的理论计算验证分析, 系统地评估了生物粒子单体形状对其凝聚体吸收和散射能力的影响, 以为生物粒子凝聚体消光特性的准确计算与分析提供可靠的依据, 并为生物粒子材料消光性能优化提供有益的参考借鉴。

收稿日期: 2023-10-13; 修回日期: 2023-11-12; 录用日期: 2023-11-20; 网络首发日期: 2023-12-12

基金项目: 国家自然科学基金(62075241)、先进激光技术安徽省实验室基金(20191003)

通信作者: \*yigu0912@163.com

## 2 材料和方法

所采用的 AN、AO、BB 三种生物粒子材料均由中国科学院离子束生物工程学重点实验室提供,其制备流程主要包括“菌种激活→摇瓶培育→大型发酵罐发酵→提取→干燥→筛选”等<sup>[19]</sup>。

### 2.1 典型单体形状与材料 CRI

为了得到生物粒子材料的典型单体形状,使用扫描电子显微镜对上述三种生物粒子材料进行观察,得到三种材料的扫描电镜照片,如图 1(a)~(c)所示。并以此构建球形(sphere)、单凹饼(pancake)、椭球体(ellipsoid)、圆柱体(cylinder)与南瓜状(pumpkin)等 5

种典型的单体形状,其多球模型如图 1(d)所示。5 种形状的长短轴之比(AR)分别为 1:1、3:1、1.2:1、1.2:1、2:1。使用 AR 来表示单体粒子形状偏离球形的程度,则单凹饼偏离球形的程度最大,南瓜体次之,椭球体与圆柱体接近于球形。

为了得到上述三种材料的 CRIs,将其用于接下来的消光特性计算,使用红外压片机制作生物材料的压片,使用傅里叶变换红外光谱仪(Nicolet 8700, Thermo Fisher Scientific, 美国)对样品进行镜面反射光谱测试。光谱采集范围为 2.5~25.0  $\mu\text{m}$ ,扫描次数为 32 次,扫描间隔为 0.482  $\text{cm}^{-1}$ ,每个样品测量三次并取平均,测得的镜面反射光谱如图 2 所示。

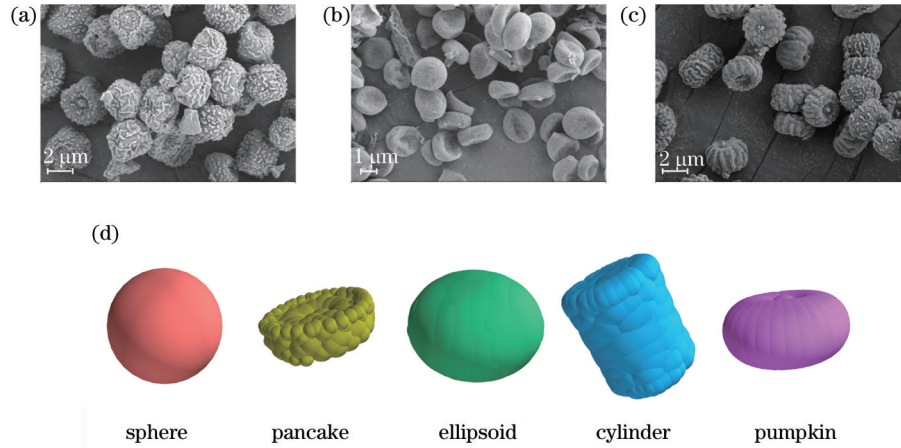


图 1 微生物材料的扫描电镜图和单体形状建模。(a)AO;(b)BB;(c)AN;(d)5种典型单体形状

Fig. 1 Scanning electron micrographs of microbial materials and the models of monomer shapes. (a) AO; (b) BB; (c) AN; (d) five typical monomer shapes

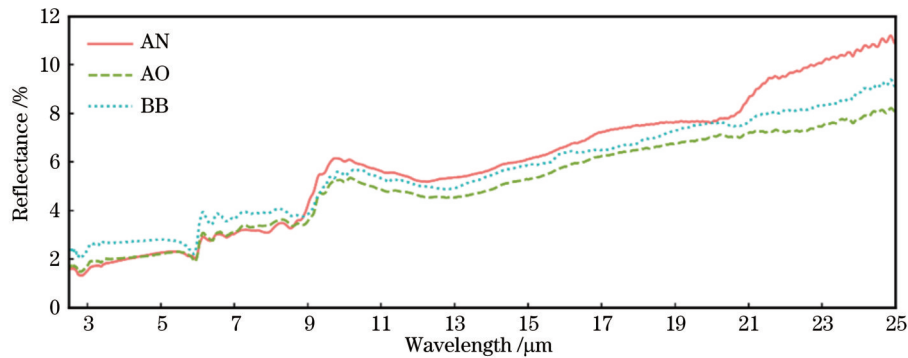


图 2 三种材料在 2.5~25.0  $\mu\text{m}$  波段的镜面反射光谱

Fig. 2 Specular reflection spectrum of three materials in the 2.5~25.0  $\mu\text{m}$  waveband

根据 Kramers-Kronig 关系<sup>[20]</sup>,可由镜面反射光谱计算材料的 CRI<sup>[21]</sup>。材料的反射相移 $\Theta_\lambda$ <sup>[22]</sup>表示为

$$\Theta_\lambda = \frac{\lambda}{\pi} P \int_0^\infty \frac{\ln R_{\lambda'}}{(\lambda'^2 - \lambda^2)} d\lambda', \quad (1)$$

式中: $\lambda$ 为波长; $\lambda'$ 为积分变量; $P$ 为柯西主值函数标记; $R_{\lambda'}$ 为材料在全波段上的镜面反射率。在实际测量中,由于仪器等条件的限制,测量材料在全波段上的镜面反射率很难实现。采用文献中常用的常数外

推方法<sup>[12,23]</sup>将测量得到的镜面反射光谱拓展到 0~1000  $\mu\text{m}$  波段范围,并将其用于反射相移的计算。波长 $\lambda$ 处的材料 CRI 的值用 $m_\lambda$ 来表示, $m_\lambda = n_\lambda + ik_\lambda$ ,其中,

$$n_\lambda = \frac{1 - R_\lambda}{1 + R_\lambda + 2\sqrt{R_\lambda} \cos\Theta_\lambda}, \quad (2)$$

$$k_\lambda = \frac{-2\sqrt{R_\lambda} \sin\Theta_\lambda}{1 + R_\lambda + 2\sqrt{R_\lambda} \cos\Theta_\lambda}, \quad (3)$$

式中,  $R_i$  为测得的镜面反射率。得到的三种材料的 CRIs 如图 3 所示。

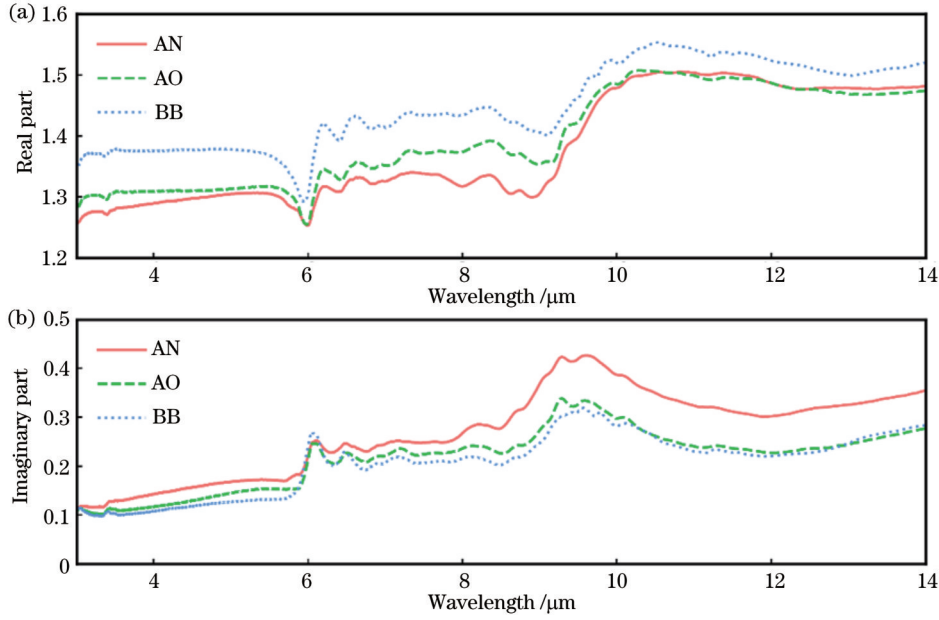


图 3 三种材料在 3~14 μm 波段的 CRIs。(a)实部;(b)虚部  
Fig. 3 CRIs of three materials in the 3-14 μm waveband. (a) Real part; (b) imaginary part

## 2.2 生物粒子凝聚体模型的构建

采用上述 5 种单体形状的生物粒子进行模型的构建, 设定参数单体数量  $N$  分别为 15、30、45 和 60, 在每个单体数量下运行 NSPA 模型 1000 次。凝聚过程中, 粒子随机运动, 使得凝聚体空间结构各有不同, 为了对其空间结构进行表征, 计算其回旋半径  $R_g^{[24]}$ 、等效半径  $R_e$  等参数, 分别表示为

$$R_g^2 = \frac{1}{2N^2} \sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^N |r_i - r_j|^2, \quad (4)$$

$$R_e = \sqrt[3]{\sum_{i=1}^N \frac{3V_i}{4\pi}}, \quad (5)$$

式中:  $r_i$  和  $r_j$  为第  $i$  个和第  $j$  个生物粒子在空间上的坐标向量;  $V_i$  为第  $i$  个生物粒子的体积。则空间结构孔隙率  $P^{[25-26]}$  可表示为

$$P = 1 - \left( \frac{\sqrt{3/5} R_e}{R_g} \right)^3. \quad (6)$$

通常来说, 凝聚体孔隙率越大, 相应的空间结构越疏松。如图 4 所示, 统计的上述 5 种单体形状生物粒子凝聚体孔隙率的分布结果表明, 生物粒子单体形状偏离球形的程度, 会一定程度地影响凝聚体整体空间结构的疏松程度。

此前的研究表明, 具有不同孔隙率的凝聚体的消光特性有所区别<sup>[27]</sup>, 而具有相同孔隙率的凝聚体, 其空间结构的细节差异对其消光特性的影响很小。因此, 取孔隙率均为 0.840 的生物粒子凝聚体进行消光特性参数的计算分析。凝聚体空间结构示意图如图 5 所示。

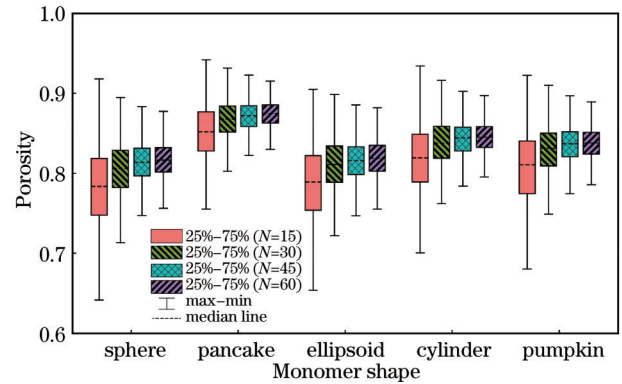


图 4 不同单体形状生物粒子凝聚体孔隙率分布  
Fig. 4 Porosity distributions of bioparticle aggregates with different monomer shapes

## 2.3 消光特性的计算方法

DDA 方法适用于复杂形状凝聚体的消光特性参数的求解<sup>[28]</sup>, 其基本原理是用大量离散且相互作用的偶极子阵列来近似实际的目标空间结构形状<sup>[29]</sup>。计算结果会随着偶极子数量的增加而收敛, 但计算成本也会增加<sup>[30-31]</sup>。使用 DDA 方法计算消光特性参数时, 离散偶极子间距  $d$  必须满足  $|m|kd < 1$ , 其中,  $|m|$  是 CRI 的模值,  $k = 2\pi/\lambda$  ( $\lambda$  是入射光波长)。通常, 对于确定的 CRI 与入射光波长来说,  $|m|kd$  的值由离散偶极子间距  $d$  决定, 不同  $d$ 、同样空间结构近似之后产生的偶极子个数也不相同。 $d$  越小, 凝聚体空间结构近似程度越高, 计算结果越准确。针对不同单体形状生物粒子凝聚体空间结构的差异, 使用更高精度要求进行计算是必要的, 因此, 在本工作中, 所有的计算均在

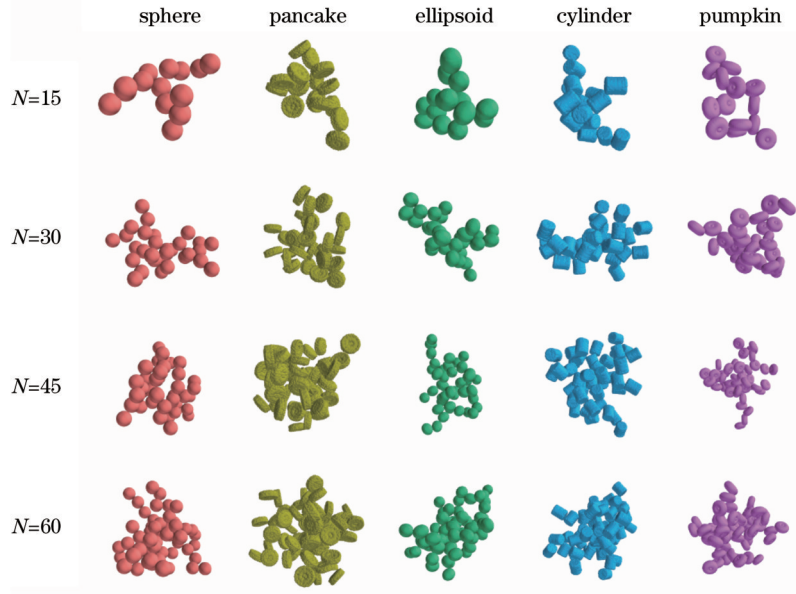


图5 生物粒子凝聚体空间结构

Fig. 5 Spatial structures of bioparticle aggregates

$|m|kd < 0.5$  的范围内完成, 以确保计算结果足够准确。

由于生物粒子凝聚体在空气中是随机取向并不停运动的, 需要考虑随机取向对其实际消光特性的影响。因此, 以  $30^\circ$  角为间隔对空间内  $12 \times 7 \times 12 = 1008$  个方向计算得到的消光特性参数进行了平均, 从而确保计算结果的收敛性和随机取向性。

基于以上分析, 使用 DDA 计算程序 DDSCAT (7.3.3 版本)<sup>[30]</sup> 计算了  $3 \sim 14 \mu\text{m}$  波段内生物粒子凝聚体对波长为  $\lambda$  的入射光的消光效率因子  $Q_{\text{ext}, \lambda}$ 、吸收效率因子  $Q_{\text{abs}, \lambda}$ 、散射效率因子  $Q_{\text{sca}, \lambda}$  等。波段平均质量消光系数  $\alpha_{\text{ext}}$  是表征生物消光材料在相应波段内消光性能的关键指标, 可用于不同粒径和不同单体数量凝聚体消光特性参数的比较, 以消除质量与体积差异所导致的数值计算上的影响。而其中相应的平均质量吸收系数  $\alpha_{\text{abs}}$ 、平均质量散射系数  $\alpha_{\text{sca}}$  分别反映了生物粒子凝聚体对入射光的吸收和散射能力的大小。生物粒子凝聚体的消光由其对入射光的吸收和散射作用实现, 即  $\alpha_{\text{ext}} = \alpha_{\text{abs}} + \alpha_{\text{sca}}$ 。根据此前测量的结果, 非球形生物粒子的质量密度  $\rho$  均设为  $0.8 \text{ g/cm}^3$ , 进而求得其在  $\lambda_1 \sim \lambda_2$  波段上的  $\alpha_{\text{ext}}$ 、 $\alpha_{\text{abs}}$ 、 $\alpha_{\text{sca}}$  等消光特性参数。其中,

$$\alpha_{\text{ext}} = \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} \frac{3Q_{\text{ext}, \lambda}}{4\rho R_e} / (\lambda_2 - \lambda_1) d\lambda, \quad (7)$$

$$\alpha_{\text{abs}} = \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} \frac{3Q_{\text{abs}, \lambda}}{4\rho R_e} / (\lambda_2 - \lambda_1) d\lambda, \quad (8)$$

$$\alpha_{\text{sca}} = \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} \frac{3Q_{\text{sca}, \lambda}}{4\rho R_e} / (\lambda_2 - \lambda_1) d\lambda. \quad (9)$$

### 3 结果与讨论

所研究的生物粒子材料, 其单体粒子等效为等体积球形粒子时, 单体粒径在  $0.5 \sim 3.0 \mu\text{m}$  范围内。因

此, 将单体粒径分别设为  $0.5$ 、 $1.0$ 、 $1.5$ 、 $2.0$ 、 $2.5$ 、 $3.0 \mu\text{m}$ , 计算得到上述不同单体形状生物粒子凝聚体在  $3 \sim 5 \mu\text{m}$  和  $8 \sim 14 \mu\text{m}$  两个波段上的  $\alpha_{\text{ext}}$ 、 $\alpha_{\text{abs}}$ 、 $\alpha_{\text{sca}}$ , 并定义相对偏差  $\delta$  为非球形单体凝聚体相应参数与球形单体凝聚体计算结果之差和球形单体计算结果的数值之比, 以定量研究单体形状对生物粒子材料凝聚体消光特性差异的影响。

#### 3.1 不同单体粒径的生物粒子凝聚体消光特性

利用 AO 材料的 CRI 对比了 6 种单体粒径下当凝聚体所含单体数目为 30 时的计算结果。图 6 与图 7 分别为  $3 \sim 5 \mu\text{m}$  波段与  $8 \sim 14 \mu\text{m}$  波段生物粒子凝聚体的消光特性参数计算结果。如图 6(a) 与图 7(a) 所示: 对于单体粒径在  $0.5 \sim 3.0 \mu\text{m}$  范围的生物粒子材料来说, 其生物粒子凝聚体的尺寸更接近  $3 \sim 5 \mu\text{m}$  波段的入射光波长; 生物粒子凝聚体对  $3 \sim 5 \mu\text{m}$  波段的入射光散射明显强于  $8 \sim 14 \mu\text{m}$  波段;  $3 \sim 5 \mu\text{m}$  波段的中红外消光能力明显强于  $8 \sim 14 \mu\text{m}$  波段。如图 6(b)、(c) 与图 7(b)、(c) 所示, 总体而言, 中远红外波段上, 生物粒子凝聚体对入射光的吸收能力随着单体粒径的增大而减小, 散射能力随着单体粒径的增大而增大。

在  $3 \sim 5 \mu\text{m}$  波段, 如图 6(a)~(c) 所示, 随着单体粒径的增大, 凝聚体质量消光系数整体上呈现出先增大后减小的趋势。其中: 当单体粒径从  $0.5 \mu\text{m}$  变化为  $1.5 \mu\text{m}$  时, 凝聚体消光系数迅速增大, 这主要是因为生物粒子凝聚体的尺寸与  $3 \sim 5 \mu\text{m}$  波段入射光波长的整体接近程度逐渐提高, 凝聚体的散射能力明显增强; 而当单体粒径在  $1.5 \sim 2.5 \mu\text{m}$  范围时, 凝聚体的散射能力增强而吸收能力有所减弱, 因而整体消光能力变化不大, 相应的生物粒子凝聚体消光能力最强; 当单体

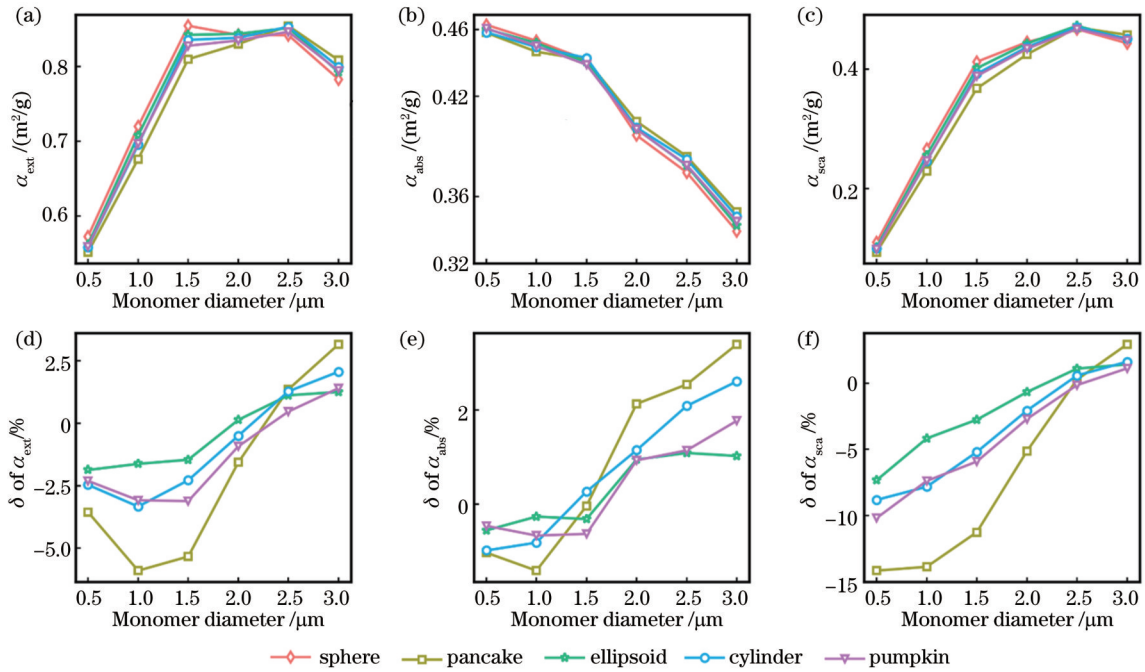


图 6 不同单体粒径的生物粒子凝聚体在 3~5  $\mu\text{m}$  波段的消光特性。(a)  $\alpha_{\text{ext}}$ ; (b)  $\alpha_{\text{abs}}$ ; (c)  $\alpha_{\text{sca}}$ ; (d)  $\alpha_{\text{ext}}$  的相对偏差; (e)  $\alpha_{\text{abs}}$  的相对偏差; (f)  $\alpha_{\text{sca}}$  的相对偏差

Fig. 6 Extinction characteristics of bioparticle aggregates with different monomer diameters in the 3~5  $\mu\text{m}$  waveband. (a)  $\alpha_{\text{ext}}$ ; (b)  $\alpha_{\text{abs}}$ ; (c)  $\alpha_{\text{sca}}$ ; (d) relative deviation of  $\alpha_{\text{ext}}$ ; (e) relative deviation of  $\alpha_{\text{abs}}$ ; (f) relative deviation of  $\alpha_{\text{sca}}$

粒径从 2.5  $\mu\text{m}$  变化为 3.0  $\mu\text{m}$  时,生物粒子凝聚体的尺寸与 3~5  $\mu\text{m}$  波段入射光波长的整体接近程度逐渐降低,散射能力与吸收能力有所减弱,因而整体消光能力有所减弱。

如图 6(d)~(f) 所示,生物粒子单体形状偏离球形的程度越大,将其等效为球形单体的计算结果的相对偏差越大,并且相对偏差随着单体粒径的不同而有所变化。当单体粒径为 1.0  $\mu\text{m}$  时,AR 为 3:1 的单凹饼状生物粒子凝聚体的  $\alpha_{\text{ext}}$  的相对偏差为 -6% 左右,其中吸收和散射的相对偏差分别为 -1.3% 和 -14% 左右;而对于 AR 仅为 1.2:1 的椭球与圆柱的单体形状,其  $\alpha_{\text{sca}}$  的相对偏差绝对值也在 4% 以上。可见,不同单体形状的生物粒子凝聚体消光能力的差异主要是由凝聚体之间的散射能力差异导致的。原因在于:生物粒子凝聚体的散射特性与其各个方向的散射表面面积有关,相同体积或质量的不同单体形状生物粒子的表面积存在明显差异;而生物粒子凝聚体的吸收特性与各入射方向光学厚度有关,相同体积或质量的不同单体形状生物粒子凝聚体的光学厚度差异相对较小。当单体粒径小于 1.0  $\mu\text{m}$  时,不同单体形状生物粒子凝聚体的  $\alpha_{\text{sca}}$  较小,不同单体形状生物粒子凝聚体的散射差异随单体粒径的变化趋势不明显;当单体粒径大于 1.0  $\mu\text{m}$  时,不同单体形状生物粒子凝聚体的各自纵横比不变,但其比表面积随着单体粒径的增大而减小,相应的比表面积数值上的差异随着单体粒径的增大而减小,不同单体形状生物粒子凝聚体的  $\alpha_{\text{sca}}$  的相对偏差绝

对值整体上随着单体粒径的增大而减小;当单体粒径增大到 2.5  $\mu\text{m}$  以上时,不同单体形状生物粒子凝聚体的  $\alpha_{\text{sca}}$  达到极值后开始减小,计算的不同单体形状生物粒子凝聚体的散射相对偏差绝对值相对较小,而吸收差异有所增强,最大可达 3.3%,从而使得生物粒子凝聚体的  $\alpha_{\text{ext}}$  的相对偏差由负变正,且呈现出不断增大的趋势,此时非球形生物粒子凝聚体的消光性能强于球形生物粒子凝聚体。

在 8~14  $\mu\text{m}$  波段,如图 7 所示,生物粒子凝聚体的  $\alpha_{\text{ext}}$  随着单体粒径的增大而增大。这是因为生物粒子凝聚体的尺寸与 8~14  $\mu\text{m}$  波段入射光波长的整体接近程度逐渐提高,生物粒子凝聚体散射能力不断增强,而吸收能力小幅度减弱。当单体粒径在 2.5~3.0  $\mu\text{m}$  范围时,相应的生物粒子凝聚体的消光能力最强;当单体粒径为 1.5  $\mu\text{m}$  时,单凹饼状生物粒子凝聚体的  $\alpha_{\text{ext}}$  的相对偏差为 -3.3% 左右,其中  $\alpha_{\text{sca}}$  的相对偏差为 -14% 左右。

### 3.2 不同单体数量的生物粒子凝聚体消光特性

在单体粒径为 2.0  $\mu\text{m}$  的情况下,对比了单体数目分别为 15、30、45、60 时的 3~5  $\mu\text{m}$  波段与 8~14  $\mu\text{m}$  波段生物粒子凝聚体的消光特性参数的计算结果。如图 8 与图 9 所示,生物粒子凝聚体在 3~5  $\mu\text{m}$  波段的  $\alpha_{\text{ext}}$  明显大于 8~14  $\mu\text{m}$  波段(分别为 0.820~0.850  $\text{m}^2/\text{g}$  与 0.430~0.470  $\text{m}^2/\text{g}$ )。

在 3~5  $\mu\text{m}$  波段,如图 8(a)~(c) 所示,生物粒子凝聚体的  $\alpha_{\text{ext}}$  随着单体数目的增大整体上变化不大。

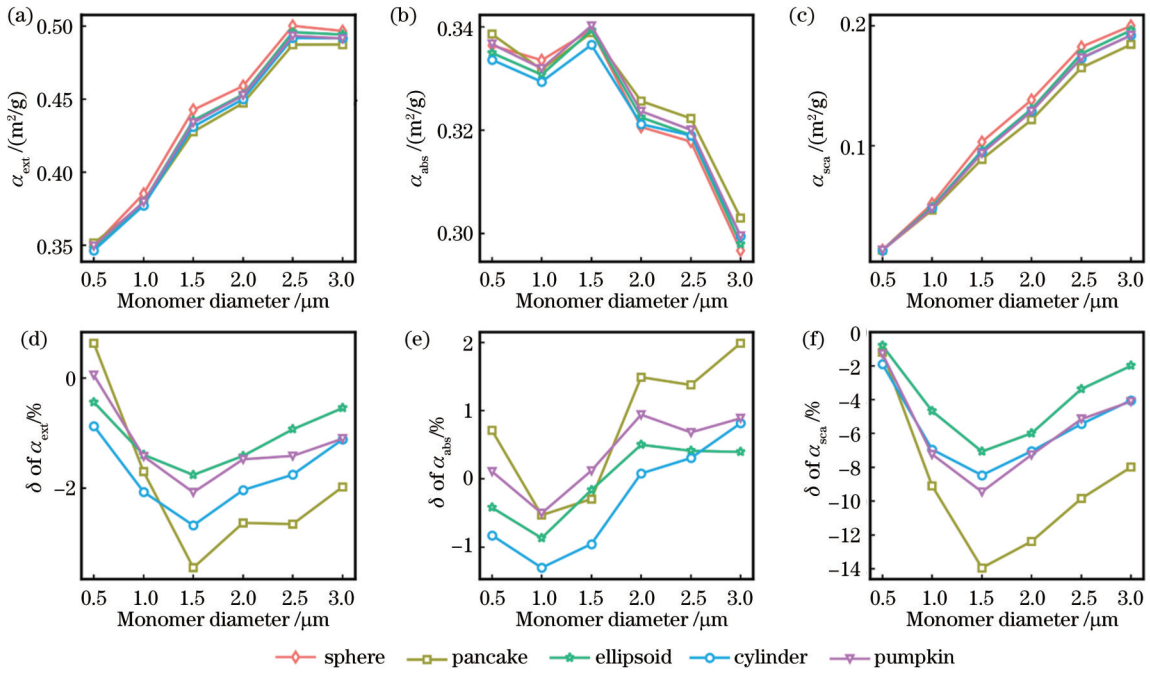


图 7 不同单体粒径的生物粒子凝聚体在 8~14 μm 波段的消光特性。(a)  $\alpha_{ext}$ ; (b)  $\alpha_{abs}$ ; (c)  $\alpha_{sca}$ ; (d)  $\alpha_{ext}$  的相对偏差; (e)  $\alpha_{abs}$  的相对偏差; (f)  $\alpha_{sca}$  的相对偏差

Fig. 7 Extinction characteristics of bioparticle aggregates with different monomer diameters in the 8-14 μm waveband. (a)  $\alpha_{ext}$ ; (b)  $\alpha_{abs}$ ; (c)  $\alpha_{sca}$ ; (d) relative deviation of  $\alpha_{ext}$ ; (e) relative deviation of  $\alpha_{abs}$ ; (f) relative deviation of  $\alpha_{sca}$

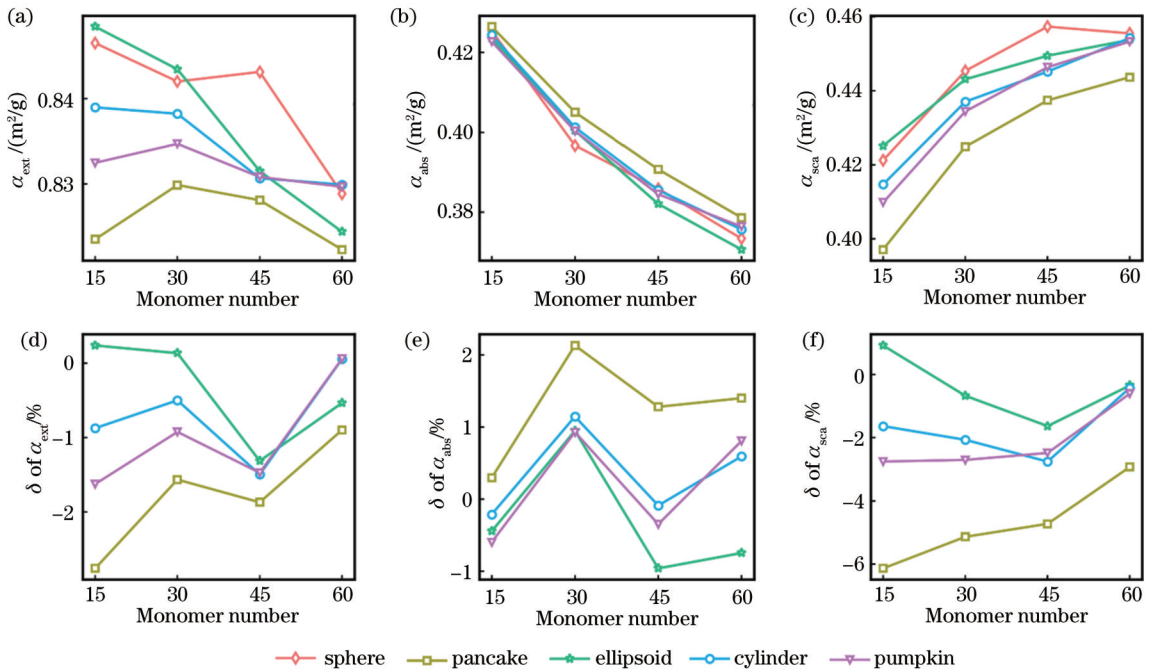


图 8 不同单体数目的生物粒子凝聚体在 3~5 μm 波段的消光特性。(a)  $\alpha_{ext}$ ; (b)  $\alpha_{abs}$ ; (c)  $\alpha_{sca}$ ; (d)  $\alpha_{ext}$  的相对偏差; (e)  $\alpha_{abs}$  的相对偏差; (f)  $\alpha_{sca}$  的相对偏差

Fig. 8 Extinction characteristics of bioparticle aggregates with different monomer numbers in the 3-5 μm waveband. (a)  $\alpha_{ext}$ ; (b)  $\alpha_{abs}$ ; (c)  $\alpha_{sca}$ ; (d) relative deviation of  $\alpha_{ext}$ ; (e) relative deviation of  $\alpha_{abs}$ ; (f) relative deviation of  $\alpha_{sca}$

主要原因是:随着单体数目由 15 增大到 60 (增大为原先的 4 倍),生物粒子凝聚体的等效半径仅增大为原先的 1.59 倍,尺寸与 3~5 μm 波段的波长相当且接近程度变化不大,凝聚体的散射能力有所增强,吸收能力有所减弱,消光能力略有降低。

如图 8(d)~(f) 所示,随着单体数目的增加,相对偏差整体上有所减小。以单凹饼状生物粒子凝聚体为例,当单体数目为 15 时,  $\alpha_{ext}$  的相对偏差可达 -2.8%, 其中,  $\alpha_{sca}$  的相对偏差为 -6.1%; 而当单体数目为 60 时,  $\alpha_{ext}$  的相对偏差已减小到 -1.0%,  $\alpha_{sca}$  的相对偏差

为-2.8%，均减小了50%以上。这是因为随着单体数目的增多，不同单体形状生物粒子凝聚体的空间结

构的整体纵横比及比表面积差异越来越小，散射差异相对减弱。

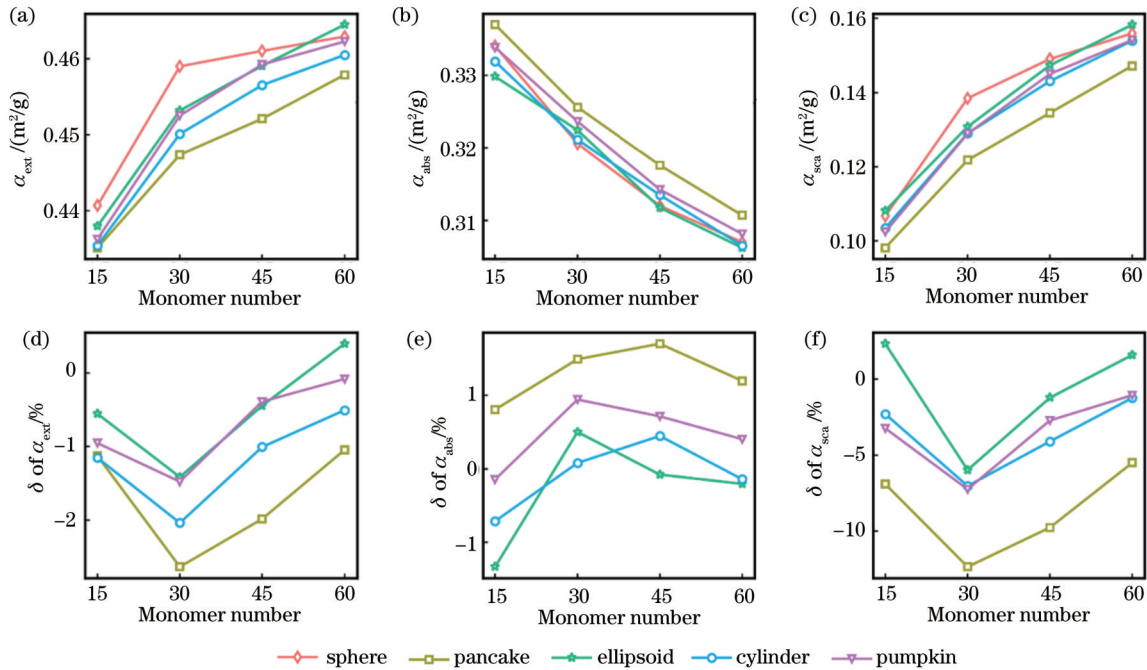


图9 不同单体数目的生物粒子凝聚体在8~14 μm波段的消光特性。(a)  $\alpha_{\text{ext}}$ ; (b)  $\alpha_{\text{abs}}$ ; (c)  $\alpha_{\text{sca}}$ ; (d)  $\alpha_{\text{ext}}$ 的相对偏差; (e)  $\alpha_{\text{abs}}$ 的相对偏差; (f)  $\alpha_{\text{sca}}$ 的相对偏差

Fig. 9 Extinction characteristics of bioparticle aggregates with different monomer numbers in the 8-14 μm waveband. (a)  $\alpha_{\text{ext}}$ ; (b)  $\alpha_{\text{abs}}$ ; (c)  $\alpha_{\text{sca}}$ ; (d) relative deviation of  $\alpha_{\text{ext}}$ ; (e) relative deviation of  $\alpha_{\text{abs}}$ ; (f) relative deviation of  $\alpha_{\text{sca}}$

在8~14 μm波段,如图9所示,生物粒子凝聚体的 $\alpha_{\text{ext}}$ 整体上随着单体数目的增大而增大。这主要是因为:当单体粒径为2.0 μm时,随着单体数目的增加,凝聚体的尺寸与8~14 μm波段的波长不断接近,生物粒子凝聚体的散射能力不断增强,吸收能力略有减少,整体消光能力有所增强。不同单体形状生物粒子凝聚体在8~14 μm波段的散射差异较明显,但散射整体较弱,消光差异不明显。

### 3.3 不同CRI的生物粒子凝聚体消光特性

利用上述三种不同材料的CRIs计算了单体粒径为2.0 μm、单体数目为30的5种单体形状的生物粒子凝聚体的消光特性参数,结果如图10与图11所示。

在3~5 μm波段,如图10(a)~(c)所示,材料的CRI对生物粒子凝聚体的消光特性影响较大。其中,利用BB材料CRI计算得到的凝聚体的 $\alpha_{\text{ext}}$ 最大,这可能是由于相应波段BB材料的CRI实部较大(如图3所示),整个波段上凝聚体对光的散射能力最强,而相应的吸收能力较弱。如图10(d)~(f)所示:利用三种材料的CRIs计算的3~5 μm波段凝聚体的消光特性的相对偏差略有差异。利用AN材料的CRI计算得到的单凹饼状生物粒子凝聚体的 $\alpha_{\text{ext}}$ 的相对偏差小于南瓜状生物粒子凝聚体。这是因为单体形状导致的凝聚体消光特性的差异源于凝聚体吸收和散射两方面,虽然吸收和散射各自的计算结果的相对偏差绝对值随着单

体形态偏离球形程度的增大而增大,但偏差的方向并不一致。因此,在特定材料的CRI影响下,生物粒子凝聚体的 $\alpha_{\text{ext}}$ 的相对偏差的大小并不完全由单体形状偏离球形的程度直接决定,而是吸收和散射综合作用下的具体结果。

在8~14 μm波段,如图11所示,不同CRIs下,不同单体形状的生物粒子凝聚体对光的散射能力均弱于吸收能力,而 $\alpha_{\text{sca}}$ 的相对偏差明显大于 $\alpha_{\text{abs}}$ 的相对偏差,最终不同单体形状的生物粒子凝聚体在远红外波段的 $\alpha_{\text{ext}}$ 的相对偏差整体上大于中红外波段。如图10(d)~(f)与图11(d)~(f)所示,大体而言,不管采用何种材料的CRI,当单体形状偏离球形越多时,相应波段的消光特性计算结果的相对偏差绝对值就越大。

### 3.4 生物粒子凝聚体消光特性差异与单体形状形貌参数的关系

为了进一步定量分析单体生物粒子形貌参数偏离球形的程度对其凝聚体消光特性差异的影响,在已有球形与AR为1.2:1的椭球体生物粒子凝聚体的基础上,构建了单体数目为30,单体粒径为1.0 μm,AR分别为3:1、2:1的椭球体单体形状生物粒子凝聚体。图12与图13为在生物粒子孔隙率为0.840情况下凝聚体的消光特性参数计算结果。总体上,不同单体形状的生物粒子凝聚体的吸收特性变化不大,而散射特性变化比较明显。

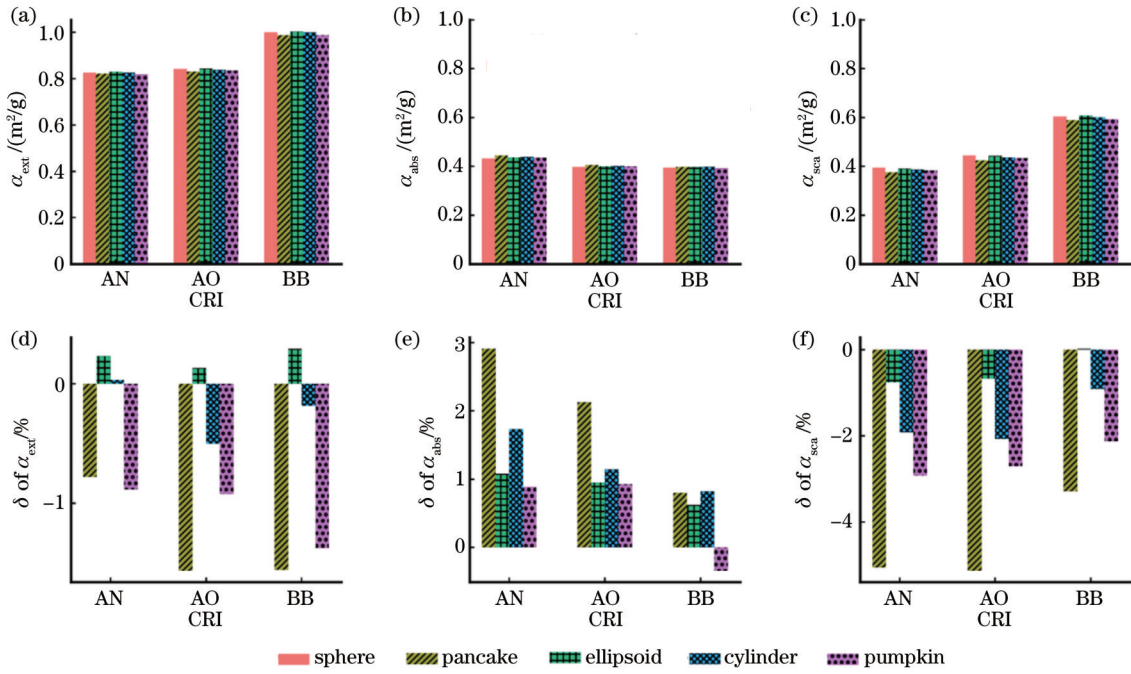


图 10 不同 CRIs 的生物粒子凝聚体在 3~5 μm 波段的消光特性。(a)  $\alpha_{ext}$ ; (b)  $\alpha_{abs}$ ; (c)  $\alpha_{sca}$ ; (d)  $\alpha_{ext}$  的相对偏差; (e)  $\alpha_{abs}$  的相对偏差; (f)  $\alpha_{sca}$  的相对偏差

Fig. 10 Extinction characteristics of bioparticle aggregates with different CRIs in the 3-5 μm waveband. (a)  $\alpha_{ext}$ ; (b)  $\alpha_{abs}$ ; (c)  $\alpha_{sca}$ ; (d) relative deviation of  $\alpha_{ext}$ ; (e) relative deviation of  $\alpha_{abs}$ ; (f) relative deviation of  $\alpha_{sca}$

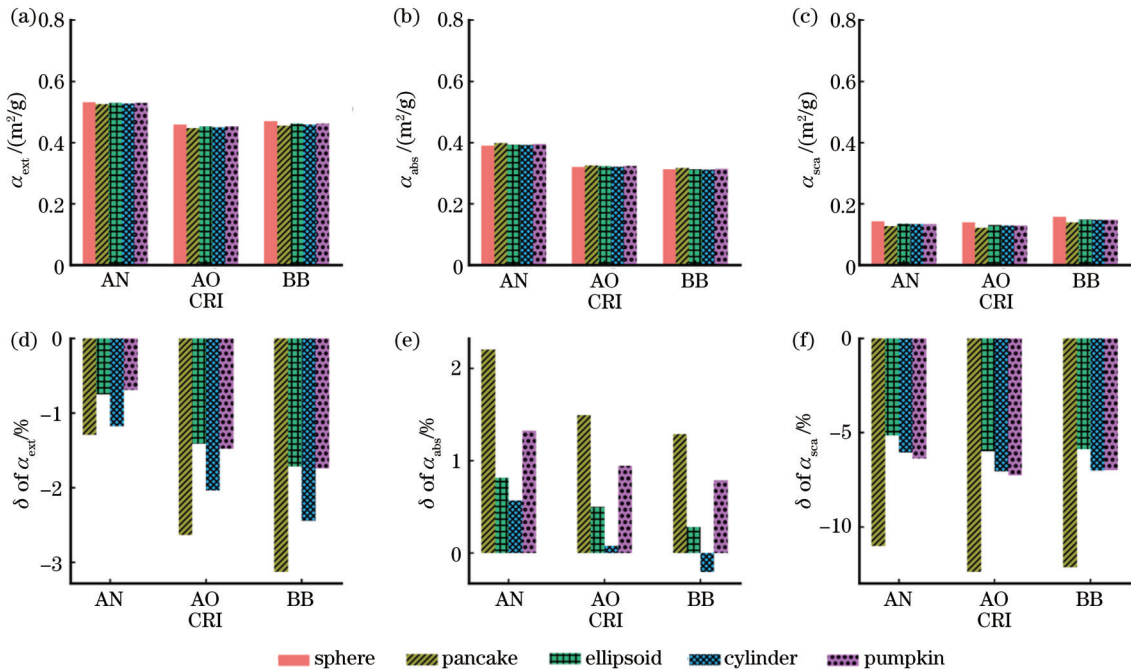


图 11 不同 CRIs 的生物粒子凝聚体在 8~14 μm 波段的消光特性。(a)  $\alpha_{ext}$ ; (b)  $\alpha_{abs}$ ; (c)  $\alpha_{sca}$ ; (d)  $\alpha_{ext}$  的相对偏差; (e)  $\alpha_{abs}$  的相对偏差; (f)  $\alpha_{sca}$  的相对偏差

Fig. 11 Extinction characteristics of bioparticle aggregates with different CRIs in the 8-14 μm waveband. (a)  $\alpha_{ext}$ ; (b)  $\alpha_{abs}$ ; (c)  $\alpha_{sca}$ ; (d) relative deviation of  $\alpha_{ext}$ ; (e) relative deviation of  $\alpha_{abs}$ ; (f) relative deviation of  $\alpha_{sca}$

如图 12 所示, 单体形状同为椭球体的情况下, 生物粒子凝聚体的  $\alpha_{sca}$  的相对偏差绝对值随着单体形状 AR 的增大而增大。在 AR 为 3:1 的情况下, 生物粒子凝聚体的  $\alpha_{ext}$  与  $\alpha_{sca}$  的相对偏差绝对值最大; 而上述单凹饼状生物粒子凝聚体的 AR 最大, 相应偏差也最大,

与该结论一致 [图 6(d)]。不同的单体形状具有不同的形貌参数, 而单体形状 AR 在研究不同单体形状生物粒子凝聚体消光特性差异时能够一定程度上表示生物粒子单体形状偏离球形程度的大小。

如图 13 所示, 虽然生物粒子凝聚体的  $\alpha_{sca}$  的相对



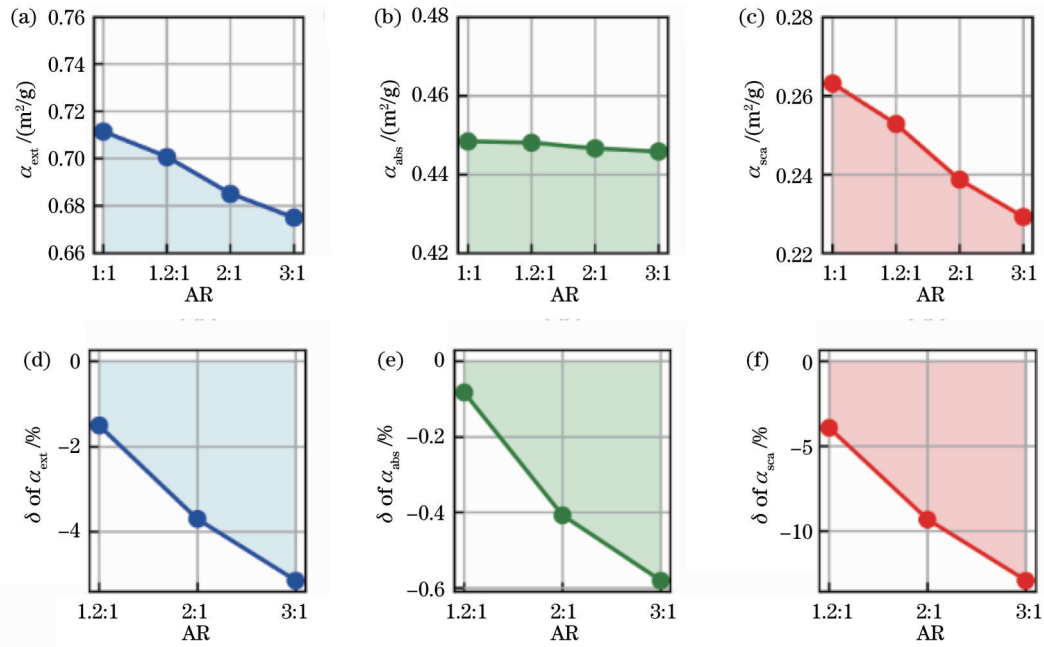


图 12 不同 AR 的生物粒子凝聚体在 3~5 μm 波段的消光特性。(a)  $\alpha_{ext}$ ; (b)  $\alpha_{abs}$ ; (c)  $\alpha_{sca}$ ; (d)  $\alpha_{ext}$  的相对偏差; (e)  $\alpha_{abs}$  的相对偏差; (f)  $\alpha_{sca}$  的相对偏差

Fig. 12 Extinction characteristics of bioparticle aggregates with different AR in the 3~5 μm waveband. (a)  $\alpha_{ext}$ ; (b)  $\alpha_{abs}$ ; (c)  $\alpha_{sca}$ ; (d) relative deviation of  $\alpha_{ext}$ ; (e) relative deviation of  $\alpha_{abs}$ ; (f) relative deviation of  $\alpha_{sca}$

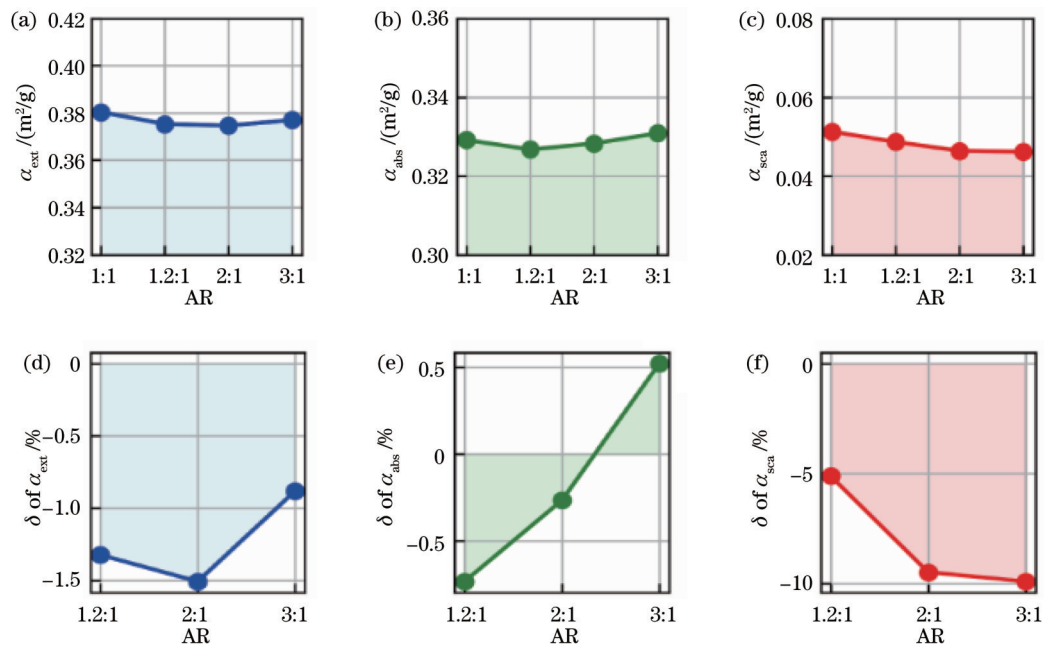


图 13 不同 AR 的生物粒子凝聚体在 8~14 μm 波段的消光特性。(a)  $\alpha_{ext}$ ; (b)  $\alpha_{abs}$ ; (c)  $\alpha_{sca}$ ; (d)  $\alpha_{ext}$  的相对偏差; (e)  $\alpha_{abs}$  的相对偏差; (f)  $\alpha_{sca}$  的相对偏差

Fig. 13 Extinction characteristics of bioparticle aggregates with different AR in the 8~14 μm waveband. (a)  $\alpha_{ext}$ ; (b)  $\alpha_{abs}$ ; (c)  $\alpha_{sca}$ ; (d) relative deviation of  $\alpha_{ext}$ ; (e) relative deviation of  $\alpha_{abs}$ ; (f) relative deviation of  $\alpha_{sca}$

偏差绝对值随着单体形状 AR 的增大而增大,但由于凝聚体尺寸的影响,  $\alpha_{sca}$  的数值很小,最终消光能力的差异也较小。

## 4 结 论

构建了 5 种典型的单体形状生物粒子凝聚体,利

用 DDA 方法计算了不同单体粒径、单体数目、CRI 等三种情况下  $\alpha_{ext}$ 、 $\alpha_{abs}$ 、 $\alpha_{sca}$  等消光特性参数,比较了不同单体形状生物粒子凝聚体消光特性参数计算结果的差异。结果表明:不同单体形状生物粒子凝聚体的消光特性存在一定差异,主要由不同单体形状的生物粒子凝聚体对光的散射差异引起。不同单体形状的生物粒

子凝聚体的消光特性差异大体上随着生物粒子单体形态偏离球形程度的增大而增大。不同单体形状的生物粒子凝聚体的消光特性参数的相对偏差具体大小是单体粒径、单体数量、CRI 等因素耦合作用的结果。此项工作能为准确评估和优化生物粒子材料的消光性能提供重要参考。

## 参 考 文 献

- [1] Hu Y H, Zhao X Y, Gu Y L, et al. Significant broadband extinction abilities of bioaerosols[J]. *Science China Materials*, 2019, 62(7): 1033-1045.
- [2] Cao H, Gu Y L, Fang J J, et al. Application of stacking ensemble learning model in quantitative analysis of biomaterial activity[J]. *Microchemical Journal*, 2022, 183: 108075.
- [3] Fröhlich-Nowoisky J, Kampf C J, Weber B, et al. Bioaerosols in the earth system: climate, health, and ecosystem interactions[J]. *Atmospheric Research*, 2016, 182: 346-376.
- [4] 顾有林, 陈国龙, 胡以华, 等. 气溶胶沉降扩散研究进展(特邀)[J]. *红外与激光工程*, 2022, 51(7): 20220313.  
Gu Y L, Chen G L, Hu Y H, et al. Research progress on the deposition and diffusion of aerosols (invited)[J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2022, 51(7): 20220313.
- [5] 赵欣颖, 胡以华, 顾有林, 等. 微生物凝聚粒子群的激光透射率研究[J]. *光学学报*, 2015, 35(6): 0616001.  
Zhao X Y, Hu Y H, Gu Y L, et al. Transmittance of laser in the microorganism aggregated particle swarm[J]. *Acta Optica Sinica*, 2015, 35(6): 0616001.
- [6] Li L, Hu Y H, Gu Y L, et al. Infrared extinction performance of randomly oriented microbial-clustered agglomerate materials[J]. *Applied Spectroscopy*, 2017, 71(11): 2555-2562.
- [7] 顾有林, 陆卫, 方佳节, 等. 人工制备红外消光材料及其消光性能研究进展(特约)[J]. *红外与激光工程*, 2020, 49(7): 20201018.  
Gu Y L, Lu W, Fang J J, et al. Research progress on artificially prepared infrared extinction materials and their extinction properties (Invited)[J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2020, 49(7): 20201018.
- [8] 陆卫, 顾有林, 方佳节, 等. 多分散生物凝聚粒子 10.6  $\mu\text{m}$  激光消光性能研究[J]. *中国激光*, 2021, 48(4): 0401019.  
Lu W, Gu Y L, Fang J J, et al. 10.6  $\mu\text{m}$  laser extinction performance of polydisperse biological aggregate particles[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2021, 48(4): 0401019.
- [9] Chen G L, Gu Y L, Hu Y H, et al. Research progress of biological extinction materials[J]. *Proceedings of SPIE*, 2023, 12617: 126172R.
- [10] Gu Y L, Hu Y H, Zhao X Y, et al. Combined analysis of static and dynamic extinction characteristics of microbial spores and mycelia as a mid-infrared extinction material[J]. *Optik*, 2019, 176: 535-541.
- [11] Ding W Y, Gu Y L, Hu Y H, et al. Quantitative determination of microbial materials activity based on infrared extinction properties[J]. *Optics Express*, 2023, 31(19): 31486-31503.
- [12] Chen G L, Gu Y L, Hu Y H, et al. Analysis of extinction characteristics of non-spherical biological particle aggregates[J]. *Chinese Optics Letters*, 2023, 21(9): 090003.
- [13] Ding W Y, Gu Y L, Hu Y H, et al. Ballistic cluster-cluster aggregation model optimization[J]. *AIP Advances*, 2023, 13(3): 035017.
- [14] 顾有林, 张熙, 胡以华, 等. 气溶胶粒子凝聚模型研究进展(特邀)[J]. *红外与激光工程*, 2023, 52(6): 20230243.  
Gu Y L, Zhang X, Hu Y H, et al. Research progress of aerosol particle aggregation model(invited) [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2023, 52(6): 20230243.
- [15] Qin Z H, Zhang Q X, Luo J, et al. Optical properties of soot aggregates with different monomer shapes[J]. *Environmental Research*, 2022, 214: 113895.
- [16] Wu Y, Cheng T H, Zheng L J, et al. Effect of morphology on the optical properties of soot aggregated with spheroidal monomers[J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 2016, 168: 158-169.
- [17] Perry J, Kimery J, Matthews L S, et al. Effects of monomer shape on the formation of aggregates from a power law monomer distribution[J]. *New Journal of Physics*, 2013, 15(7): 073026.
- [18] El-Emam M A, Zhou L, Shi W D, et al. Theories and applications of CFD-DEM coupling approach for granular flow: a review[J]. *Archives of Computational Methods in Engineering*, 2021, 28(7): 4979-5020.
- [19] Liu H X, Wang P, Hu Y H, et al. Optimised fermentation conditions and improved collection efficiency using dual cyclone equipment to enhance fungal conidia production[J]. *Biocontrol Science and Technology*, 2015, 25(9): 1011-1023.
- [20] Booi H C, Thoone G P J M. Generalization of Kramers-Kronig transforms and some approximations of relations between viscoelastic quantities[J]. *Rheologica Acta*, 1982, 21(1): 15-24.
- [21] Grosse P, Offermann V. Analysis of reflectance data using the Kramers-Kronig relations[J]. *Applied Physics A*, 1991, 52(2): 138-144.
- [22] Meitav O, Shaul O, Abookasis D. Determination of the complex refractive index segments of turbid sample with multispectral spatially modulated structured light and models approximation[J]. *Journal of Biomedical Optics*, 2017, 22(9): 097004.
- [23] Segal-Rosenheimer M, Linker R. Impact of the non-measured infrared spectral range of the imaginary refractive index on the derivation of the real refractive index using the Kramers-Kronig transform[J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 2009, 110(13): 1147-1161.
- [24] Lattuada M, Wu H, Morbidelli M. Radial density distribution of fractal clusters[J]. *Chemical Engineering Science*, 2004, 59(21): 4401-4413.
- [25] Kozasa T, Blum J, Mukai T. Optical properties of dust aggregates. I. Wavelength dependence[J]. *Astronomy and Astrophysics*, 1992, 263: 423-432.
- [26] Kozasa T, Blum J, Okamoto H, et al. Optical properties of dust aggregates. II. Angular dependence of scattered light[J]. *Astronomy and Astrophysics*, 1993, 276: 278-288.
- [27] 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.  
Huang C J, Wu Z S, Liu Y F, et al. Effect of porosity on optical properties of aerosol aggregate particles[J]. *Acta Optica Sinica*, 2013, 33(1): 0129001.
- [28] 范哲源, 王园园, 李卫军, 等. 不同数值模式模拟黑碳气溶胶光学特性的差异分析[J]. *光学学报*, 2023, 43(6): 0601004.  
Fan Z Y, Wang Y Y, Li W J, et al. Difference in optical properties of black carbon aerosols simulated by different numerical models[J]. *Acta Optica Sinica*, 2023, 43(6): 0601004.
- [29] Draine B T, Flatau P J. Discrete-dipole approximation for periodic targets: theory and tests[J]. *Journal of the Optical Society of America A*, 2008, 25(11): 2693-2703.
- [30] Collinge M J, Draine B T. Discrete-dipole approximation with polarizabilities that account for both finite wavelength and target geometry[J]. *Journal of the Optical Society of America A*, 2004, 21(10): 2023-2028.
- [31] Draine B T, Flatau P J. Discrete-dipole approximation for scattering calculations[J]. *Journal of the Optical Society of America A*, 1994, 11(4): 1491-1499.

# Difference in Extinction Characteristics of Bioparticle Aggregates with Different Monomer Shapes

Chen Guolong<sup>1,3</sup>, Gu Youlin<sup>1,2,3\*</sup>, Hu Yihua<sup>1,2,3</sup>, Meng Fanhao<sup>1,3</sup>, Zhang Xi<sup>1,3</sup>

<sup>1</sup>State Key Laboratory of Pulsed Power Laser Technology, National University of Defense Technology, Hefei 230037, Anhui, China;

<sup>2</sup>Advanced Laser Technology Laboratory of Anhui Province, Hefei 230037, Anhui, China;

<sup>3</sup>National University of Defense Technology, Hefei 230037, Anhui, China

## Abstract

**Objective** Biological particle materials have significant wide-band extinction performance, and the monomer shapes of bioparticles are complex with some irregular non-spherical shapes. However, the differences in extinction characteristics of bioparticle aggregates with different monomer shapes are still uncertain and have been ignored in previous research. Thus, we build bioparticle aggregation models with different monomer shapes to calculate the extinction coefficients in the 3–5  $\mu\text{m}$  and 8–14  $\mu\text{m}$  wavebands and analyze the differences in extinction characteristics caused by monomer shapes.

**Methods** Five typical monomer shapes are constructed by employing multi-sphere models in terms of the scanning electron microscopy (SEM) images, and the complex refractive indices (CRIs) of three biomaterials are calculated according to Kramers-Kronig relations based on specular reflectance in the 2.5–25.0  $\mu\text{m}$  waveband. A novel simulation code or non-spherical particle aggregation (NSPA) model is applied to build realistic spatial structure models of bioparticle aggregates with different monomer shapes. To eliminate the influence of spatial structure density, we select the bioparticle aggregates with the same porosity of 0.840 to obtain the extinction characteristics. The discrete dipole approximation (DDA) method is adopted to calculate average mass extinction coefficient  $\alpha_{\text{ext}}$ , average mass absorption coefficient  $\alpha_{\text{abs}}$ , and average mass scattering coefficient  $\alpha_{\text{sca}}$  in the 3–5  $\mu\text{m}$  and 8–14  $\mu\text{m}$  wavebands respectively. Then the differences in extinction characteristics of the bioparticle aggregates with different monomer shapes can be analyzed.

**Results and Discussions** According to the calculation results, the influence of the monomer size, monomer number, CRI, and aspect ratio (AR) on the absorption and scattering effects of bioparticle aggregates with different monomer shapes is investigated. The results show that the closer size of bioparticle aggregates to the wavelength of incident light leads to stronger scattering of incident light by bioparticle aggregates. For bioparticle materials with monomer particle sizes ranging from 0.5 to 3.0  $\mu\text{m}$ , the extinction ability in the 3–5  $\mu\text{m}$  waveband is significantly stronger than that in the 8–14  $\mu\text{m}$  waveband (Figs. 6 and 7). When the monomer diameter is 2.0  $\mu\text{m}$ , the  $\alpha_{\text{ext}}$  of bioparticle aggregates with different monomer shapes are about 0.820–0.850  $\text{m}^2/\text{g}$  in the 3–5  $\mu\text{m}$  waveband (Fig. 8) and about 0.430–0.470  $\text{m}^2/\text{g}$  in the 8–14  $\mu\text{m}$  waveband (Fig. 9). Within a certain range, an increase in monomer size enhances scattering effects (Fig. 6), but the trend of absorption and scattering effects is usually opposite. In the 3–5  $\mu\text{m}$  waveband, the relative deviation of  $\alpha_{\text{ext}}$ ,  $\alpha_{\text{abs}}$  and  $\alpha_{\text{sca}}$  can reach about  $-6\%$ ,  $-1.3\%$ , and  $-14\%$  respectively (Figs. 6 and 8). In the 8–14  $\mu\text{m}$  waveband, the relative deviation of  $\alpha_{\text{ext}}$ ,  $\alpha_{\text{abs}}$  and  $\alpha_{\text{sca}}$  can reach about  $-3.3\%$ ,  $-1.2\%$ , and  $-14\%$  respectively (Figs. 7 and 9). There are indeed differences in the optical properties of bioparticle aggregates with different monomer shapes. For the bioparticle aggregates with the monomer shape of pancake, when the monomer number is 15, the relative deviation of  $\alpha_{\text{ext}}$  and  $\alpha_{\text{sca}}$  can reach  $-2.8\%$  and  $-6.1\%$ , but under the monomer number of 60, the relative deviation has reduced by more than 50% (Fig. 8). As the monomer number increases, the specific surface area differences of the overall spatial structure among bioparticle aggregates with different monomer shapes become smaller, and the scattering differences of bioparticle aggregates with different monomer shapes are relatively weakened. The extinction abilities of biological particle aggregates are more sensitive to CRI (Figs. 10 and 11). Therefore, the actual relative deviation in the extinction characteristics of bioparticle aggregates is not directly determined by the degree to which the monomer shape deviates from the spherical shape, but by the specific result of the combined effect of absorption and scattering. As the AR of ellipsoid rises, the absorption changes slightly while the scattering ability declines significantly (Figs. 12 and 13). Additionally, the results in the case of similar monomer shapes also demonstrate that the scattering differences caused by monomer shapes are indeed related to the degree to which the monomer shape deviates from the spherical shape.

**Conclusions** We construct bioparticle aggregates with five typical monomer shapes and calculate and compare the

extinction characteristic parameters of them under the influence of multiple factors. The results indicate that there are great differences in the extinction characteristics of bioparticle aggregates with different monomer shapes, which is mainly caused by the differences in light scattering. Meanwhile, generally the more deviation of the monomer shape from the sphere causes greater differences in extinction characteristic of bioparticle aggregates, but the specific magnitude of the relative deviation of the extinction characteristic parameters is the coupling result of various factors such as monomer size, monomer number, and CRI. Our study is of significance for accurately evaluating and optimizing the extinction performance of biological particle materials.

**Key words** bioparticle materials; monomer shape; aggregates; infrared; extinction characteristics