

文章编号:1004-4213(2011)07-1055-6

# 掺杂对随机取向团簇粒子辐射特性的影响

类成新<sup>1</sup>,冯东太<sup>1</sup>,吴振森<sup>2</sup>

(1 山东理工大学 理学院,山东 淄博 255049)

(2 西安电子科技大学 理学院,西安 710071)

**摘 要:**利用 Bruggeman 有效介质理论得到了占有不同体积份额杂质的团簇粒子的等效复折射率.采用离散偶极子近似方法对包含有不同化学成分的随机取向团簇粒子的散射相函数、消光、吸收、散射效率因子、单次散射反照率以及不对称因子等辐射特性参量进行了数值计算,深入探讨了掺杂量对随机取向团簇粒子辐射特性的影响.研究表明,掺杂对随机取向团簇粒子的辐射特性产生显著的影响,并且此影响随着粒子尺度参量的变化而变化.这一工作对研究多种化学成分组成的混合气溶胶的辐射及气候效应具有重要科学价值.

**关键词:**团簇粒子;辐射特性;Bruggeman 有效介质理论;离散偶极子近似方法

**中图分类号:**P422.3

**文献标识码:**A

**doi:**10.3788/gzxb20114007.1055

## 0 引言

气溶胶在大气科学和环境科学领域受到日益广泛的关注,特别是在气候变化研究方面,气溶胶的辐射特性被认为是十分重要的关键因子.气溶胶作为影响气候变化的一个重要因子,引起了全世界科学界的普遍重视<sup>[1]</sup>.气溶胶通过对太阳的短波辐射和地气系统的长波辐射的散射和吸收作用来影响地气的能量平衡,从而对气候变化产生不可低估的作用<sup>[2]</sup>.研究气溶胶粒子的辐射特性对大气探测、气候模式、辐射传输以及遥感等方面都具有十分重要的意义.

实际的大气气溶胶粒子并不是单一成分的,而是由不同化学成分组成的混合物.气溶胶的复折射率是由其化学特性决定的,不同化学成分组成的气溶胶粒子具有不同的复折射率,从而也就具有不同的辐射特性.一些学者<sup>[3-5]</sup>对混合气溶胶粒子的辐射特性进行了研究,但他们均把气溶胶粒子看作球形粒子来处理.实际上,大部分气溶胶粒子是形状各异的非球形粒子,甚至是一些小的气溶胶微粒由于碰撞、粘附等作用而形成具有复杂分形结构的团簇粒子<sup>[6]</sup>,将其看作球形粒子,可以大为简化数值计算,但计算结果与实际结果存在一定误差<sup>[7-8]</sup>.研究表明,团簇粒子的散射特性受到组成团簇粒子的基本粒子的数量、粒径、分形维数、分形前向因子、入射波

长等因素的影响<sup>[7-14]</sup>,而团簇粒子的化学成分,即掺杂对其散射特性的影响,目前未见报道.为此,本文首先从 Bruggeman 有效介质理论出发,得到含有不同体积份额杂质的气溶胶粒子的等效复折射率,然后利用离散偶极子近似方法数值计算了含有不同体积份额杂质的随机取向团簇粒子的散射相函数、消光效率因子、吸收效率因子、散射效率因子、单次散射反照率以及不对称因子等辐射特性参量,深入探讨了掺杂量对随机取向团簇粒子辐射特性的影响规律.此研究为进一步深入研究多种化学成分组成的混合大气气溶胶辐射特性对气候变化产生的影响提供了一种有效的理论方法.

## 1 基本理论

### 1.1 离散偶极子近似方法及适用范围

离散偶极子近似方法(Discrete Dipole Approximation, DDA)是由 Purcell 和 Pennypacker<sup>[15]</sup>于 1973 年首次提出,经过 Draine 等人的进一步改进,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散射特性<sup>[16-17]</sup>.原则上,DDA 方法可应用于计算任意形状及尺寸粒子的吸收、散射及消光等光学性质,能应用于各向同性、各向异性、均质或非均质粒子.在计算方面,其迭代法则效率高、占用计算机内存较小,且运算速度较快,这些优点使 DDA 方法得到广泛的

**基金项目:**国家自然科学基金(No. 60771038)资助

**第一作者:**类成新(1976-),男,讲师,硕士,主要研究方向为目标激光散射特性. Email: xdpstgraduate@163.com

**收稿日期:**2011-01-18; **修回日期:**2011-05-12

认可,成为研究粒子特别是复杂粒子的散射、辐射特性的重要理论方法之一.该方法有着非常好的灵活性和通用性,只要粒子或散射体的尺寸参量和复折射率满足它的使用条件,就能很好地运用该方法研究目标或者散射体的散射、极化、辐射等特性.

考虑到计算机实际运算能力的限制,目前 DDA 方法所能求解的粒子的尺度参量范围为  $x < 15$ , 粒子的复折射率  $m$  满足  $|m-1| \leq 3^{[16-17]}$ . 只要在 DDA 适用范围内,其运算准确度可达  $1.0 \times 10^{-5}$ , 并且对于一定的  $m$  和  $x$ , 粒子所划分的偶极子数目越大,计算结果越准确.许多学者<sup>[14,18]</sup>利用 DDA 方法研究了由多个单体粒子构成的具有复杂分形结构的凝聚粒子的散射特性并将计算结果与  $T$  矩阵方法的数值结果进行了比较,得出 DDA 方法特别适用于研究任意形状、具有复杂结构的凝聚粒子的散射特性,两种数值方法的计算结果非常接近.本文所研究的团簇粒子的等效尺度参量、复折射率均在 DDA 方法适用范围之内,因此本文所有计算结果是正确可靠的.

## 1.2 Bruggeman 理论

Bruggeman 理论<sup>[19]</sup>是有效介质理论中较常使用的一种方法,它不仅对具有较大体积内含物的混合物适用,而且考虑了内含物之间的相互作用,利用该理论求解含有无定形碳和硅酸盐的混合气溶胶粒子的等效介电常量( $\epsilon = \epsilon' + i \cdot \epsilon''$ )的表达式为

$$f \frac{\epsilon_1 - \epsilon}{\epsilon_1 + 2\epsilon} + (1-f) \frac{\epsilon_2 - \epsilon}{\epsilon_2 - 2\epsilon} = 0 \quad (1)$$

化简为

$$\epsilon = \frac{1}{4} \{ \epsilon_2 + (3f-1)(\epsilon_1 - \epsilon_2) \pm \{ [(3f-1) \cdot (\epsilon_1 - \epsilon_2) + \epsilon_2]^2 + 8\epsilon_1\epsilon_2 \}^{1/2} \} \quad (2)$$

式中,  $f$  是材料 1 所占的体积份额,  $\epsilon_1$ 、 $\epsilon_2$  分别是材料 1 和材料 2 的介电常量,  $\epsilon$  为复合材料的有效复介电常量.在光频范围内,复合体系的复折射率  $m = n + ik$  与有效介电常量  $\epsilon = \epsilon' + i\epsilon''$  的关系为

$$m = n + ik = \sqrt{\epsilon} = \sqrt{\epsilon' + i\epsilon''} \quad (3)$$

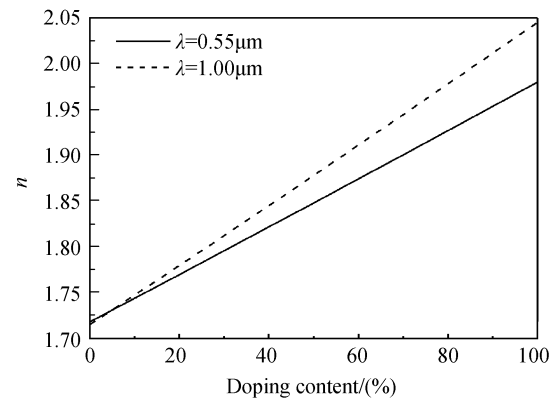
式中  $n$  和  $k$  分别为复合结构的复折射率的实部和虚部,  $\epsilon'$ 、 $\epsilon''$  分别为复介电常量的实部和虚部.求出  $\epsilon$  后,分离出实部  $\epsilon'$  和虚部  $\epsilon''$ ,进而求出

$$n = \sqrt{\frac{1}{2} (\sqrt{\epsilon'^2 + \epsilon''^2} + \epsilon')} \quad (4)$$

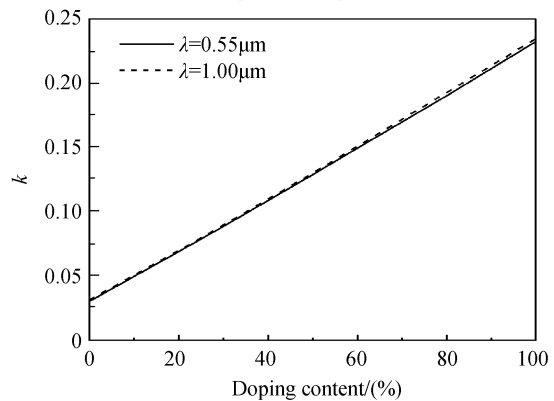
$$k = \sqrt{\frac{1}{2} (\sqrt{\epsilon'^2 + \epsilon''^2} - \epsilon')} \quad (5)$$

本文所研究的团簇粒子是由很多基本粒子随机组成的具有复杂分形结构的凝聚粒子,假设团簇粒子中的基本粒子均为无定形碳和硅酸盐粒子混合而

成的复合粒子.计算中取入射波长为  $0.55 \mu\text{m}$  和  $1.0 \mu\text{m}$ , 对应的无定形碳粒子复折射率<sup>[20]</sup>分别为  $1.98 + 0.232i$ 、 $2.045 + 0.234i$ , 硅酸盐粒子的复折射率<sup>[21]</sup>分别为  $1.717549 + 0.0294i$ 、 $1.714652 + 0.0303i$ , 对应的复合粒子的复折射率由式(2)、(4)、(5)求出,不同入射波长下含有无定形碳的硅酸盐复合粒子的有效复折射率随掺杂量变化曲线如图 1. 其中图 1(a)表示复合粒子复折射率的实部,图 1(b)表示复折射率的虚部.由图 1 知,两种波长下,硅酸盐复合粒子的复折射率的实部和虚部均随着无定形碳体积份额的增加而线性增加,在  $\lambda = 1.0 \mu\text{m}$  情况下,复合粒子的复折射率的实部增加的幅度明显要大,而虚部不太明显.这是因为随着入射波长的增长,无定形碳粒子的复折射率的实部和虚部均增大,实部增大的幅度大于虚部的;硅酸盐粒子的复折射率的虚部稍微增大而实部略微增大.



(a) The real part of complex refractive index



(b) The imaginary part of complex refractive index

图 1 不同入射波长下含有杂质的团簇粒子的有效复折射率随掺杂量变化曲线

Fig. 1 The effective complex refractive index versus the doping content of cluster agglomerates at different wavelengths

## 1.3 理论模型

团簇粒子在形成过程中,由于组成团簇粒子的原始微粒之间存在相互作用而产生随机的碰撞,因此形成的团簇粒子具有十分复杂的分形结构<sup>[6]</sup>.团簇粒子中基本粒子的粒度非常小,典型粒径在  $10 \sim$

100 nm<sup>[22]</sup>. 文中团簇粒子的实际结构是以团簇-团簇凝聚模型<sup>[23]</sup>为基础,利用计算机模拟的,其模拟过程见文献[11]. 该模型粒子数目与分形维数之间的关系为  $N = k_f (R_g/d_p)^{D_f}$ <sup>[23-24]</sup>, 其中,  $N$  为团簇粒子包含的原始微粒的数量,  $k_f$  为分形因子,  $D_f$  为分形维数,  $d_p$  为原始微粒直径,  $R_g$  为团簇粒子的平均回转半径.  $D_f$  和  $k_f$  的取值分别为 1.8 和 5.8<sup>[9]</sup>. 在计算过程中,需要给定团簇粒子的等效半径  $R_{\text{eff}}$ ,即用和团簇粒子体积相同的球形粒子的半径作为非球形粒子的等效半径. 设  $V$  为团簇粒子的体积则  $V = N \cdot (4\pi/3)a^3$ , 式中:  $N$  表示团簇粒子中原始微粒数量,  $a$  为原始微粒半径,  $a = 0.5d_p$ , 那么团簇粒子的等效半径为  $R_{\text{eff}} = N^{1/3}a$ , 等效尺度参量为  $x =$

$$2\pi R_{\text{eff}}/\lambda = (2\pi a/\lambda)N^{1/3}.$$

## 2 数值结果与分析

### 2.1 掺杂对随机取向团簇粒子散射相函数的影响

粒子的散射相函数表示被粒子散射的能量随散射角的分布,它和粒子大小、形状、折射率及入射波长等因素有关. 图 2 给出了不同粒径和数量组成的含有不同掺杂量的团簇粒子在不同入射波长情况下,散射相函数角分布曲线. 图 2 中计算所取参量为: (a)  $\lambda = 1.0 \mu\text{m}$ ,  $d_p = 20 \text{ nm}$ ,  $N = 50$ ; (b) ~ (d)  $\lambda = 0.55 \mu\text{m}$ ,  $d_p$  分别为 20、20、40 nm,  $N$  分别为 25、50、25, 它们的等效尺度参量分别为 0.23、0.334、0.421、0.668.

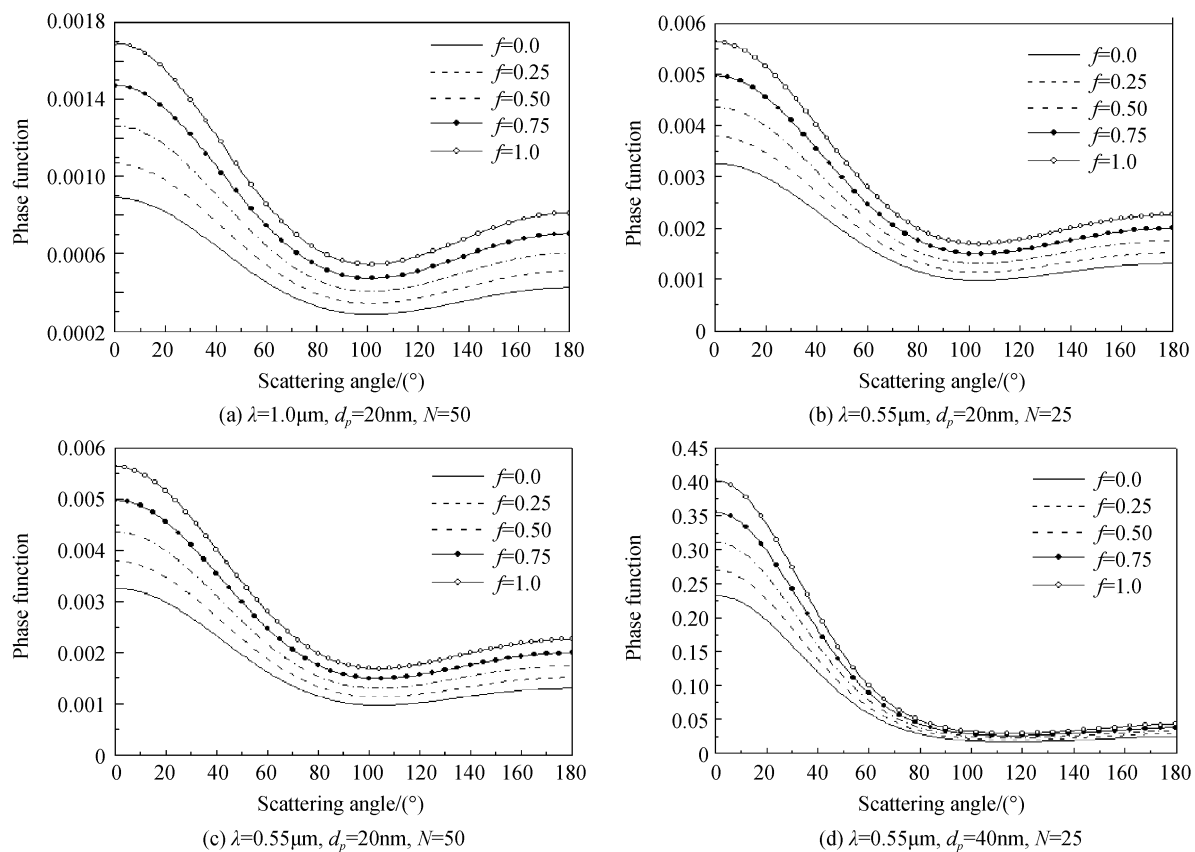


图 2 不同入射波长下不同尺度参数且含不同掺杂量的团簇粒子相函数角分布曲线

Fig. 2 Scattering phase function versus doping content of cluster agglomerates with different size parameters at different wavelengths

从图 2 可知:不同掺杂量的团簇粒子的前向散射明显强于后向散射,说明粒子散射的能量主要集中在前向,随着掺杂量的增加,团簇粒子的前向和后向散射均相应增强,不过前向散射增强的幅度大于后向散射. 随着团簇粒子尺度参量的增大,后向散射与前向散射的差距明显增大,并且随着团簇粒子中掺杂量的增加,此现象更加明显,这是因为随着无定形碳掺入量的增大,混合粒子的复折射率逐渐增大.

### 2.2 掺杂对随机取向团簇粒子的消光、吸收、散射效率因子、单次散射反照率及不对称因子的影响

图 3 给出了不同粒径和数量组成的团簇粒子在不同入射波长情况下,消光效率因子  $Q_{\text{ext}}$ 、吸收效率因子  $Q_{\text{abs}}$ 、散射效率因子  $Q_{\text{sca}}$ 、单次散射反照率  $\omega_0$  及不对称因子  $g$  随掺杂量的变化规律. 计算所取参量跟图 2 中的相同. 由图 3 可以看出, 1) 不同尺度参量的随机取向团簇粒子的消光、吸收、散射效率因子均

随着掺杂量的增大而线性增大,且增大的幅度随着尺度参量的增大而明显加强.当随机取向团簇粒子的尺度参量较小时,粒子的吸收作用较强,而散射作用较弱;随着粒子尺度参量的增大,散射作用逐渐增强并且当混合粒子中无定形碳所占份额较小时,粒子的散射作用强于吸收作用,但当无定形碳所占份额增大时,粒子的吸收作用又明显强于散射作用.2)

随着无定形碳所占份额的增大,混合气溶胶的吸收效应增强,因此粒子的单次散射反照率逐渐减小;此外,随着粒子尺度参量的增大,其单次散射反照率整体增大.3)当团簇粒子尺度参量较小时,不对称因子随着杂质所占份额的增大而减小,并且减小的趋势逐渐变弱;而当尺度参量较大时,不对称因子随着杂质所占份额的增大反而增大.

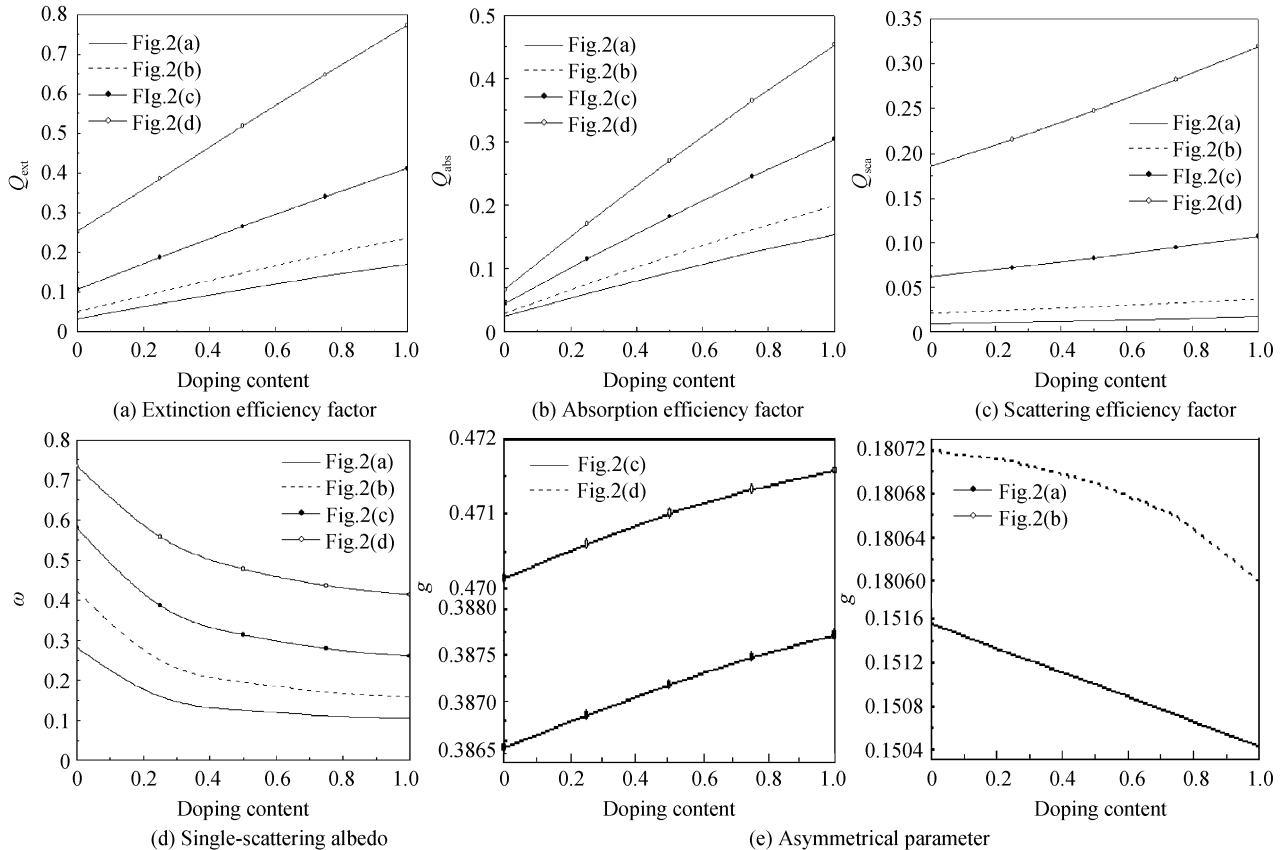


图3 不同入射波长下不同尺度大小的团簇粒子效率因子、单次散射反照率及不对称因子随掺杂量的变化  
Fig. 3 Change of extinction, absorption and scattering efficiency factor, single-scattering albedo and asymmetrical parameter with doping content of cluster agglomerates with different size parameters at different wavelengths

### 3 结论

气溶胶粒子对地气系统的能量平衡有不可低估的影响,由于部分气溶胶粒子是人类活动造成的,所以可以预测,随着人类活动影响的加剧气溶胶对气候的影响肯定会越来越大.但是气溶胶分布随时间的变化很大,且辐射特性又有很大差别,因此气溶胶对大气辐射影响的参量化是一个很复杂的问题.本文以含有无定形碳和硅酸盐的混合气溶胶粒子体系为研究对象,首先利用 Bruggeman 有效介质理论得到了含有不同体积份额无定形碳和硅酸盐混合粒子的等效复折射率.然后采用离散偶极子近似方法对包含有不同化学成分的随机取向团簇粒子的散射相

函数、消光、吸收、散射效率因子、单次散射反照率以及不对称因子等辐射特性参量进行了数值计算,深入探讨了占有不同体积份额的杂质对随机取向团簇粒子辐射特性的影响.研究表明,掺杂量对随机分布团簇粒子的辐射特性参量存在显著影响,并且此影响随着粒子尺度参量的变化而变化.通过本文研究结果,可以反演随机分布团簇粒子的分形结构、化学成分以及各成分所占的份额,这样不仅可以定性地了解大气中气溶胶的来源,还可以分析它们的化学物理特性、生成机制及其传输过程,从而为更深入地研究多种化学成分构成的具有分形结构的团簇粒子的辐射特性以及对气候变化产生的影响提供重要的理论依据.

## 参考文献

- [1] MENON S, HANSEN J E, NAZARENKO L, *et al.* Climate effects of black carbon aerosols in China and India [J]. *Science*, 2002, **297**(5590): 2250-2253.
- [2] KIRKEVÅG A, IVERSEN T. Global direct radiative forcing by process-parameterized aerosol optical properties [J]. *Journal of Geophysical Research*, 2002, **107**(D20): 4433-4448.
- [3] ZHANG Ying, GAO Qing-xian. A study on the radiative effect of sulfate and soot aerosols[J]. *Quarterly Journal of Applied Meteorology*, 1997, **8**(S1): 87-91.  
张瑛,高庆先.硫酸盐和碳黑气溶胶辐射效应的研究[J].应用气象学报,1997,**8**(S1):87-91.
- [4] HAO Li, YANG Wen, WU Tong-wen, *et al.* Study on radiative property of soot-sulfate mixed aerosol[J]. *Plateau Meteorology*, 2010, **29**(5): 1238-1245.  
郝丽,杨文,吴统文,等.黑碳-硫酸盐混合气溶胶的辐射特性分析[J].高原气象,2010,**29**(5):1238-1245.
- [5] ZONG Peng-cheng, MIAO Qi-long, WEI Xiao-yi. Effect of different mixing scenarios on aerosol radiative properties[J]. *Research of Environmental Sciences*, 2010, **23**(5): 627-633.  
宗鹏程,缪启龙,魏晓奕.不同混合方案对气溶胶辐射特性的影响[J].环境科学研究,2010,**23**(5):627-633.
- [6] AUGER J C, STOUT B, MARTINEZ V. Scattering efficiency of aggregated cluster of spheres: dependence on configuration and composition[J]. *JOSA A*, 2005, **22**(12): 2700-2708.
- [7] LEI Cheng-xin, LIU Han-fa, ZHANG Hua-fu. 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.
- [8] LEI Cheng-xin, WU Zhen-sen. A study of radiative properties of randomly distributed soot aggregates [J]. *Acta Physica Sinica*, 2010, **59**(8): 5692-5699.  
类成新,吴振森.随机分布烟尘团簇粒子辐射特性研究[J].物理学报,2010,**59**(8):5692-5699.
- [9] LEI Cheng-xin, ZHANG Hua-fu, LIU Han-fa. Numerical calculation of mueller matrices of randomly distributed soot cluster agglomerates[J]. *Acta Physica Sinica*, 2009, **58**(10): 7168-7175.  
类成新,张化福,刘汉法.随机分布烟尘簇团粒子穆勒矩阵的数值计算[J].物理学报,2009,**58**(10):7168-7175.
- [10] LEI Cheng-xin, LIU Han-fa, ZHANG Hua-fu. Numerical calculation of optical cross sections of randomly oriented soot clustered agglomerates [J]. *Journal of Atomic and Molecular Physics*, 2010, **27**(1): 183-186.  
类成新,刘汉法,张化福.随机取向烟尘团簇粒子的光学截面的数值计算[J].原子与分子物理学报,2010,**27**(1):183-186.
- [11] LEI Cheng-xin, WU Zhen-sen. Study on the extinction properties of randomly oriented smoke screen clustered agglomerates [J]. *Chinese Journal of Computational Physics*, 2010, **27**(4): 593-597.  
类成新,吴振森.随机取向烟幕凝聚粒子的消光特性研究[J].计算物理,2010,**27**(4):593-597.
- [12] LEI Cheng-xin, ZHANG Hua-fu, LIU Han-fa. Study on extinction characteristics of randomly distributed smoke screen cluster agglomerates to the laser [J]. *Infrared Technology*, 2009, **31**(9): 528-531.  
类成新,张化福,刘汉法.随机分布烟幕凝聚粒子对激光的消光特性研究[J].红外技术,2009,**31**(9):528-531.
- [13] LEI Cheng-xin, WU Zhen-sen, ZHANG Hua-fu, *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.
- [14] LEI Cheng-xin, ZHANG Hua-fu, LIU Han-fa. Study of extinction characteristics of solar radiation by soot aerosols [J]. *Acta Optica Sinica*, 2010, **30**(12): 3373-3377.  
类成新,张化福,刘汉法.煤烟气溶胶粒子对太阳辐射的消光特性研究[J].光学学报,2010,**30**(12):3373-3377.
- [15] PURCELL E M, PENNYPACKER C R. Scattering and absorption of light by non-spherical dielectric grains[J]. *The Astrophysical Journal*, 1973, **186**: 705-714.
- [16] COLLINGE M J, DRAINE B T. Discrete dipole approximation with polarizabilities that account for both finite wavelength and target geometry [J]. *JOSA A*, 2004, **21**(10): 2023-2028.
- [17] SHEN Y, DRAINE B T, JOHNSON E T. Modeling porous dust grains with ballistic aggregates; light scattering properties[J]. *The Astrophysical Journal*, 2009, **696**(2): 2126-2137.
- [18] HIROSHI K. Light scattering properties of fractal aggregates; numerical calculations by a superposition technique and the discrete dipole approximation[J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 2001, **70**(4-6): 581-594.
- [19] CHOY T C. Effective medium theory: principles and applications[M]. Oxford: Oxford University Press, 1999: 10-15.
- [20] ROULEAU F, MARTIN P G. Shape and clustering effects on the optical properties of amorphous carbon [J]. *The Astrophysical Journal*, 1991, **377**(8): 526-540.
- [21] IATÌ M A, SAIJA R, GIUSTO A, *et al.* Optical properties of interstellar grain aggregates[J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 2004, **89**(1-4): 43-51.
- [22] SORENSEN C M. Light scattering by fractal aggregates; a review[J]. *Science and Technology*, 2001, **35**(2): 648-687.
- [23] MACKOWSKI D W. A simplified model to predict the effects of aggregation on the absorption properties of soot particles [J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 2006, **100**(2): 237-249.
- [24] SHEN Y, DRAINE B T, JOHNSON E T. Modeling porous dust grains with ballistic aggregates; geometry and optical properties[J]. *The Astrophysical Journal*, 2008, **689**: 260-275.

## Influence of Impurity on Radiative Properties of Randomly Oriented Cluster Agglomerates

LEI Cheng-xin<sup>1</sup>, FENG Dong-tai<sup>1</sup>, WU Zhen-sen<sup>2</sup>

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

(2 *School of Science, Xidian University, Xi'an 710071, China*)

**Abstract:** The influence of impurity on the radiative properties of randomly oriented cluster agglomerates was mainly analyzed. The equivalent complex refractive index of aerosols containing different volume fractions of amorphous carbon was obtained by Bruggeman effective medium theory. The radiative characteristic quantities were calculated based on the discrete dipole approximation method, such as the phase function, extinction, absorption and scattering efficiency factor, single-scattering albedo and asymmetrical parameter of randomly oriented cluster agglomerates. The influence of the impurity on the radiative properties of randomly oriented cluster agglomerates was mainly discussed. The results indicate that the influence of the impurity on the radiative properties of randomly oriented cluster agglomerates is obvious, and it varies with the size parameters of the randomly distributed cluster agglomerates. This work is important for the study of radiative characteristics of aerosols with a mixture of various chemical compositions and their climatic effects.

**Key words:** Cluster agglomerates; Radiative properties; Bruggeman effective medium theory; Discrete dipole approximation method