人工制备红外消光材料及其消光性能研究进展(特约)

顾有林^{1,2,3},陆 卫^{1,3},方佳节^{1,3},郑 超³,陈 曦^{1,3},王新宇^{1,3},胡以华^{1,2,3}

(1. 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;

2. 先进激光技术安徽省实验室, 安徽 合肥 230037;

3. 国防科技大学, 安徽 合肥 230037)

摘 要:作为消弱红外成像设备或系统性能的重要手段,人工制备的红外消光材料成为各国争相研究的对象,并取得了阶段性的研究成果。从金属材料、膨胀石墨、纳米材料、水基泡沫、生物材料和复合材料等方面介绍了人工制备红外消光材料的研究现状,阐述了粒子-团簇、团簇-团簇等消光材料粒子凝聚模型,介绍了 Mie 散射方法、离散偶极子近似方法、T 矩阵方法和时域有限差分法等几种典型的消光性能计算方法。分析认为,未来人工制备的红外消光材料将朝着持续时间长、成本低、施放形式多样和环保无毒等方向发展。

关键词:红外; 消光材料; 凝聚模型; 计算方法; 消光性能 中图分类号:O443.1 文献标志码:A DOI: 10.3788/IRLA20201018

Research progress on artificially prepared infrared extinction materials and their extinction properties(*Invited*)

Gu Youlin^{1,2,3}, Lu Wei^{1,3}, Fang Jiajie^{1,3}, Zheng Chao³, Chen Xi^{1,3}, Wang Xinyu^{1,3}, Hu Yihua^{1,2,3}

(1. State Key Laboratory of Pulsed Power Laser Technology, National University of Technology, Hefei 230037, China;
 2. Advanced Laser Technology Laboratory of Anhui Province, Hefei 230037, China;
 3. National University of Technology, Hefei 230037, China)

Abstract: As an important means to weaken the performance of infrared imaging equipments or systems, artificially prepared infrared extinction materials have become the research object of many countries, and have achieved staged research results. The research status of artificially prepared infrared extinction materials is introduced from metal materials, expanded graphite, nano-materials, water-based foam, biomaterials and composite materials. The particle aggregation models of extinction materials such as particle and cluster, cluster and cluster are described. Several typical extinction calculation methods such as Mie scattering method, discrete dipole approximation method, T matrix method, and finite-difference time-domain method are introduced. According to the analysis, the infrared extinction materials prepared manually in the future will develop in the direction of long duration, low cost, various forms of release, environmental protection and non-toxic.

Key words: infrared; extinction material; aggregate model; computational method; extinction properties

收稿日期:2020-03-23; 修订日期:2020-04-01

基金项目:先进激光技术安徽省实验室基金 (20191003); 国家自然科学基金 (60908033); 安徽省自然科学基金 (1408085MKL47) 作者简介:顾有林 (1974-), 男, 副教授, 硕士生导师, 博士, 主要从事光电信息处理方面的研究。Email: ylgu0912@163.com

0 引 言

据《武经总要》记载,早在北宋时期,烟球就被用 来形成烟雾以遮蔽视线,保护已方人员设备安全[1]。 作为消弱红外成像设备或系统性能的重要手段,红外 消光材料的研制一直是国内外学者研究的热点。一 方面,随着红外成像设备或系统性能的提升,红外消 光材料需要具有强消光能力、多种施放形式及长持续 时间;另一方面,为了保护己方人员、设备和生态环 境,红外消光材料还需要具有环保、高阻抗、无污染 的要求。除此之外,低成本、易于批量制备也是红外 消光材料研制的一个重要指标。针对目前人工制备 红外消光材料的需求,文中首先分析了几种典型的人 工制备红外消光材料,阐述了粒子与团簇、团簇与团 簇等消光材料粒子凝聚模型,在此基础上综述了 Mie 散射方法、离散偶极子近似方法 (Discrete Dipole Approximation, DDA)、T矩阵方法和时域有限差分法 (Finite-Different Time-Domain, FDTD)等几种典型的消 光性能计算方法,最后提出了人工制备红外消光材料 的发展趋势。

1 人工制备红外消光材料

1.1 金属材料

导电能力强的消光材料,其对电磁波衰减的能力 也强^[2]。金属材料的导电能力较强,因此,其具有较强 的消光能力。阳世清等^[3]研究了高氮化合物和铜粉 混合的抗红外烟幕剂的制备和性能。该烟幕剂以气 溶胶的形式分散到空中,具备燃温低、分散性好、成 气量大等优点。刘香翠等^[4]利用烟幕箱测试了纳米 银粉对 1.06 μm 和 10.6 μm 激光的质量消光系数和 8~12 μm 波段的红外消光性能。结果显示,纳米银粉 对 1.06 和 10.6 μm 激光的消光性能明显优于常规发 烟剂,且具有良好的悬浮特性,对 8~12 μm 波段红外 熟像仪消光作用显著,是一种极具潜力的宽波段红外 消光材料。白林等^[2]分析了铜粉烟幕的消光特性,研 究了不同波段铜粉粒子的粒径范围,开展了铜粉烟幕 与红磷烟幕烟幕箱消光性能测试,结果表明,铜粉烟 幕比传统红磷烟幕的消光性能更好、有效消光时间更长。

1.2 膨胀石墨

膨胀石墨^[5]是鳞片石墨经过插层、水洗、干燥、

高温膨胀处理,形成的具有多孔、高比表面的蠕虫状 碳材料。膨胀石墨除了对红外辐射具有强衰减的消 光特性外,还具有石墨耐腐蚀、耐高低温的优势,同时 兼具良好的吸附性、压缩回弹性和密封性,是一种理 想的红外消光材料。周民善等⁶⁶利用矩量法和 Mathematica 计算了膨胀石墨的半径、长度、磁导率和 电导率对 3 mm 波段消光性能的影响。结果表明, 当 半径为 0.05 mm、长度为 1.5 mm 时,膨胀石墨具有较 好的消光性能;当适当增加磁导率和电导率时,膨胀 石墨的消光效果得到进一步提高。Wang, X.Y.等^[7]为 了研究石墨气溶胶的消光性能,用显微镜分析了一些 预处理过的石墨颗粒,以确定它们的圆度指数、最大 和最小直径、平均直径以及长宽比。根据大气环境参 数计算出石墨颗粒的沉降速率,通过傅里叶变换红外 光谱仪定量测试了石墨气雾的 3~5 um 和 8~14 um 波 段的消光系数。测试结果显示,石墨气溶胶在 3~5 µm 波段、8~14 µm 波段的质量消光系数分别为 0.86 m²·g⁻¹ 和 0.75 m²·g⁻¹,表明石墨气溶胶具有良好的红外消光 性能。李晓霞等图制备了不同膨胀体积的膨胀石墨 并分析其微观结构,研究了膨胀石墨在 1.064 µm 波长 处的质量消光系数与其膨胀体积的关系。研究结果 显示,膨胀石墨的散射能力随膨胀体积增大而增强; 同时,其平均质量消光系数与膨胀体积近似成正比关系。

1.3 纳米材料

纳米粒子通常是指粒径在 1~100 nm 的微粒,纳 米材料的特殊性质使得某些纳米材料具有良好的消 光特性。王红霞等¹⁹研究了碳纳米管、纳米碳纤维和 纳米石墨等几种纳米材料 8~12 um 波段的消光特 性。研究结果表明,碳纳米材料具备良好的的远红外 消光作用,其质量消光系数最大值和最小值分别为 2.622 6 m²·g⁻¹ 和 0.888 4 m²·g⁻¹。 Appleyard, P. G.^[10] 通 过理论计算,得到了高长径比的碳微粒和纳米颗粒的 红外体积消光系数,并构建了层状结晶石墨和微晶石 墨的模型。评价和比较了两种高长径比的细片状和 针状纤维的红外消光性能。确定了每种材料细片状 和针状纤维的最佳尺寸,以实现最大的体积效率消光 性能。Wang, H. L.等[11]利用室内大型烟幕箱实验的 方式,测试了三种碳纳米管在 8~12 μm 波段的消光性 能。实验结果显示,较短和较薄的碳纳米管质量消光 系数较低,但具有更好的成烟性能;正常体积的碳纳

米管虽具备良好的质量消光系数,但其在烟幕箱中的 浓度很低。结果证明了碳纳米管的红外消光性能,但 其成烟性能和悬浮性能仍需改进。

1.4 水基泡沫

泡沫具有特殊的结构,光线在其液膜各个界面均 会发生反射、折射和散射等,从而具有良好的消光性 能;另外,还具有成本低、批量制备易和适配性好等特 点,使其成为具有较好消光性能的红外消光材料^[12]。 赵军等[13] 通过傅里叶变换红外光谱法研究了水基泡 沫的消光性能。结果显示,水基泡沫是较好的红外消 光材料, 少量的泡沫即可明显降低 3~5 μm 和 8~14 μm 两个波段的透过率。杜雪峰[14] 通过实验验证了水基 泡沫在 3~5 µm 和 8~14 µm 两个波段具有良好的消光 性能,两个波段辐射在厚为15 cm、直径约为2 mm的 气泡中透过率均不足10%,且泡沫直径越小,其消光 性能越好。此外,添加剂对水基泡沫在两个波段的消 光性能具有较大的影响。王翔等[15] 制备了一种具有 高稳定性的绿色伪装水基泡沫并研究了其消光性 能。水基泡沫的平均尺寸为 0.9~2.5 mm, 具有形状不 规则的闭孔蜂窝结构。环境温度为-2~30 ℃ 时,其发 泡倍率达到 21~32 倍, 持续时间长达 73~185 h。

1.5 生物材料

生物材料是一些小的生物颗粒在静电、碰撞、黏 附作用下形成的具有分形特征、空间结构复杂的随机 取向凝聚粒子体系。生物材料具有形态结构可控、成 本低、批量制备易、阻抗高和环保无毒等特点,是一 种极具发展前景的环境友好型消光材料。孙杜娟等[16] 采用显微红外光谱仪测量了生物样品的反射光谱,计 算得到了生物样品 6~14 µm 波段的复折射率,同时以 水、蛋白质和核酸的红外吸收特性为基础,构建了生 物颗粒在 6~14 µm 波段的复折射率模型。李乐等[17] 通过理论计算和烟幕箱实验研究了三种生物材料的 消光性能。结果表明,三种生物消光材料均具有良好的 红外消光性能,其动态消光系数分别为 $1.257 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$ 、 1.065 m²·g⁻¹ 和 1.009 m²·g⁻¹, 优于常规无机材料。赵欣 颖等[18] 从组成和结构等方面研究了微生物材料的含 水量对其红外波段消光性能的影响,给出了含水量与 其吸收性能之间的定性规律,计算了含水量与其散射 特性的定量关系,结果显示,当透射率小于10%时, 通过控制细胞内结合水的量,改变其复折射率,其消

光性能可提升 50%。顾有林等[19-22] 研究了生物材料 的复折射率计算方法,设计了生物材料紫外和红外复 合消光性能测试装置,在此基础上计算了生物材料的 复折射率和质量消光系数,研究了生物材料的活性对 其红外消光性能的影响,对提升生物材料红外消光性 能和区分生物材料的活性具有重要意义。胡以华等[23] 研究了生物材料的紫外、可见光和红外的宽波段消光 性能,通过理论计算和烟幕箱实验测试了几种典型生 物材料在 240 nm~14 µm 波段的消光性能。王新宇 等[24-25]研究了生物材料种类、原始颗粒大小、数量、 凝聚体的结构和相对湿度对生物材料宽波段消光性 能的影响。研究结果表明生物材料在宽波段内具有 较好的消光性能,且增加原始颗粒的半径并降低凝聚 颗粒的孔隙率可以有效增强生物材料的宽波段消光 性能,当相对湿度超过70%时,生物材料消光性能随 着湿度增加而增加。

1.6 复合材料

很多材料只在红外较窄波段范围内具有良好的 消光性能,通过一定方式配比多种消光材料达到提高 消光材料的宽波段消光效果。陈浩等[26]采用液相法 制备了碳纳米管/石墨烯/碳复合材料,并通过烟幕箱 实验,测试了碳纳米管、石墨烯和复合材料的 3~5 μm 和 8~14 µm 两个红外波段透过率。结果表明,复合材 料消光时间均有所提高,中红外波段消光性能有显著 增强,远红外波段消光性能则有所下降。马德跃等[27-28] 通过原位还原法制备了还原石墨烯/纳米铜复合材 料,测量了该材料的复折射率并计算了其吸收系数和 大气窗口内的法向光谱发射率并进行实验验证,进而 证明了其在红外波段具有较好的消光性能。其又通 过水热法制备了石墨烯/铜镍铁氧体复合材料,测量 材料的中远红外波段的复折射率,分析材料红外消光 性能。结果证明了石墨烯/铜镍铁氧体复合材料在红 外波段具有较好的消光性能,材料在近红外波段主要 是散射消光,而在中远红外主要是吸收消光。

2 人工制备红外消光材料粒子凝聚模型

红外消光材料的消光特性与其结构、成分相关, 消光材料的空间结构特征是计算其消光性能的基 础。根据粒子的属性,消光材料的空间结构可能是单 个粒子或凝聚粒子。在不考虑粒子间相互作用的情 况下,通过计算单粒子形成的烟幕得到消光材料的消 光性能。消光材料的粒子形状随物质不同而不同,一 般具有圆、椭圆、柱状、杆状和链状等形状。若粒子 间相互作用不能忽略时,消光材料则以凝聚粒子的形 态而存在,计算时以凝聚粒子体系为研究对象计算其 消光性能。根据参与凝聚的对象不同,可将凝聚粒子 模型分为粒子与团簇和团簇与团簇两类凝聚模型。 根据构建凝聚粒子的原始粒径是否相同,每种凝聚模 型还可细分为单分散凝聚粒子模型和多分散凝聚粒 子模型。目前粒子凝聚模众多,下面就几种典型的凝 聚模型做一简要介绍。

2.1 粒子-团簇凝聚模型

在粒子与团簇凝聚模型中,粒子可在任意位置加 入凝聚体,通过原始粒子-团簇凝聚形成凝聚粒子体 系,该类凝聚模型形成的凝聚粒子结构相对较密。

2.1.1 扩散限制凝聚模型

扩散限制凝聚 (Diffusion Limited Aggregation, 简 称 DLA) 模型^[29-30] 由 Witten, T.A.和 Sander, L.M.共同 提出,被广泛用于研究和解释自然界中与分形形态相 关的生长和凝聚现象。其主要思想为[29]:以有限空间 内放置一个初始粒子作为中心粒子,空间内远离该粒 子位置放置另一个粒子使其做无规则运动,直至该粒 子与中心粒子碰撞,形成团簇,以同样的方式释放下 一个粒子,直至所有粒子凝聚在一起,凝聚过程结束, 最终形成一个凝聚粒子体系。徐澎等^[31]利用 DLA 模 拟了黑碳团簇粒子的结构模型,计算了黑碳团簇粒子 的光学特性,降低了黑碳气溶胶辐射强迫评估的不确 定性。Sun, W.L.等^[32]根据不同粒径烟灰粒子的 DLA 模型,研究了不同尺度烟灰颗粒分形扩散的预 测和控制。Wu, Y.等^[33]使用固定体积分数模型来模 拟对薄涂层烟尘气溶胶光学特性影响的量化,利用 DLA 模拟了分形凝聚的烟尘,用 DDA 方法计算了烟 尘的光学特性,发现其计算得到的光学性质除不对称 参数外,与固定涂层厚度模型的结果相近。Zhang, M.等^[34] 建立了二维 DLA 模型表征薄膜生长初始成核和生长 过程,实验验证了该方法的有效性。

2.1.2 反应限制凝聚模型

反应限制凝聚 (Reaction-Limited Aggregation, 简称 RLA)模型^[35]主要特征是形成凝聚粒子体系前经

历了大量的碰撞,在 DLA 的基础上增加了粒子碰撞 成功的概率,即粒子发生碰撞之后不一定发生凝聚, 只有凝聚概率为1时才凝聚。Brahma, N.等^[36]研究了 氧化铝颗粒在硝酸钾溶液中与各种添加剂的凝聚速 率和机理,对于大多数悬浮液,初始阶段凝聚过程具 有 RLA 凝聚模型特点, 当集团尺寸大于 500 mm时, 凝聚速率与悬浮液种类无关且满足幂规律,说明凝聚 过程符合 DLA 凝聚模型特征;在分形维数计算的基 础上,对其凝聚机理进行了深入分析。Wu, J.等^[37]引 入 RLA 模型研究表面活性剂单层对异质外延和同质 外延生长中二维岛形成的影响。Runkana, V.等^[38]提 出了胶体悬浮液反应受限凝聚的几何离散截面总体 平衡模型,该平衡模型含有碰撞频率因子和碰撞效率 因子两个重要参数。研究发现,从平均凝聚体尺寸-凝聚时间数据的动态缩放得出:反应受限凝聚的特征 时间常数与电解质浓度相关。通过采用公开的实验 数据测试了平衡模型,模型预测数值与反应受限的凝 聚体系中平均凝聚体直径随时间变化的实验数据具 有较好的一致性。

2.1.3 弹道凝聚模型

弹道凝聚 (Ballistic Aggregation, 简称 BA) 模型是 Brilliantov, N.V.等^[39]提出的凝聚模型,主要用于研究 胶体凝聚过程。与 DLA 和 RLA 模型不同的是, 粒子 并不是进行无规则的布朗运动,而是从释放就始终沿 着一个方向移动,因此,粒子更容易到达团簇体内部, 形成的凝聚粒子体系更加紧密^[40]。Liang, S.等^[41]利 用 BA 模型讨论了所有线条平行的情况, 粒子只能从 一个方向"下雨"(可视为向下运动),通过计算机算法 对系统进行了仿真。结果显示,凝聚粒子模型成扇状 结构,在中央部分,粒子几乎均匀分布。邵雷霆等[42] 使用蒙特卡洛模拟方法,得到三维空间内 BA 模型的 凝聚粒子结构,并通过计算发现凝聚粒子大小、分形 维数和凝聚机理影响凝聚粒子在简单剪切场中的临 界强度,且BA凝聚体的临界应力与其旋转半径的关 系不大。Majumdar, S.N.等^[43]研究了一维 BA 模型的 长时间行为,该模型用于描述 N个具有随机初始位置 和速度的粒子,通过确定性移动及碰撞形成凝聚体的 粘性气体。研究发现,粒子最初在空间中随机分布, 每个粒子具有单位质量,并且初始速度独立于相同的 分布。每个粒子弹道运动,两个粒子碰撞时形成单个

簇,其总质量和总动量在碰撞过程中得以保留。Paul, S.等^[44]通过事件驱动的分子动力学模拟,研究了 BA模型和颗粒气体模型中的非平衡动力学,给出了 能量衰减和质量增长的结果,并与理论预测值进行了 比较。研究发现, BA模型和颗粒气体模型的能量衰 减与质量增长均具有幂律行为随时间变化的特征。

2.1.4 弹道粒子-团簇凝聚模型

弹道粒子-团簇凝聚 (Ballistic Particle-Cluster Aggregation, BPCA) 模型^[45] 中凝聚体的形成是通过单 个原始粒子在随机弹道轨迹中运动实现的,所有原始 粒子都是具有相同半径的球体,只要碰撞就发生凝 聚,即凝聚概率为1。Kozasa, T.等^[46]用 BPCA 模型模 拟了粉尘凝聚体的结构,对其光学性质进行了研究。 通过研究发现 Maxwell-Garnett 混合规则适用于具有 均匀结构的粉尘凝聚体。Wada, K.等^[47]为了阐明尘 埃凝聚体是否可以在相对较高的速度下通过相互碰 撞而牛长,对基于 BPCA 形成的冰质等质量聚类之间 的碰撞进行了 4000 多次三维数值模拟以及弹道团簇-团簇的凝聚,包括具有各种冲击参数值的偏移碰撞。 Wada, K.等^[48] 研究了尘埃凝聚体的形成和破坏过程, 为了检查凝聚体破坏的凝聚速度,通过 BPCA 模拟相 对紧凑的凝聚体和弹道团簇-团簇凝聚 (BCCA) 模拟 相对蓬松的凝聚体,对亚微米大小冰球形成的凝聚体 相对高速碰撞进行了数值模拟。结果表明, BPCA 凝 聚体更难破坏。Paul, D.等^[49]为研究彗星尘埃的散射 特性,使用 BPCA 和 BCCA 模拟观测到的 NEAT 彗星 的线性极化数据,基于叠加的T矩阵算法,计算出复 折射率的最佳拟合值,该值对应于硅酸盐和有机物的 混合物,可以用来很好地拟合观测到的彗星的偏振 数据。

2.2 团簇-团簇凝聚模型

在团簇与团簇凝聚模型中,凝聚对象是团簇,通 过团簇和团簇间的相互碰撞和粘结,最终形成具有多 孔的不规则分支凝聚结构。

2.2.1 扩散限制凝聚凝聚模型

扩散限制凝聚凝聚 (Diffusion-Limited Clustered Aggregation, 简称 DLCA) 模型^[30,50] 是根据 DLA 模型 改进得到的分形生长模型。在 DLCA 模型中,单体粒 子置于二维或三维网格的格点上,同时进行无规则的 运动,当粒子周围格点被其他粒子占据时,形成一个

团簇继续进行无规则运动,当空间内团簇数量达到预 设要求时停止运动,得到一个不规则、更加开放的凝 聚体^[51]。蒋新^[52] 基于 DLCA 模型仿真了扩散双电层 作用下的凝聚过程,研究发现,凝聚体的分形维数随 双电层厚度增加而下降,意味着原始粒子或小团簇难 以进入大凝聚体内部。Heinson, W.R.等^[53]证明了凝 聚体分形维数与其形状没有相关性,即 DLCA 的分形 维数值不会随着形状而改变。Cho, Y.S.等^[54]将 DLCA 模型应用于三维或四维的不连续渗滤过渡 (PT), 通过研究发现: 对于布朗运动, 其三维和四维同 样存在不连续的 PT, 主要是由布朗运动对大凝聚体 生成的自然抑制作用引起。Jing, D.W.等^[55]针对传统 DLCA 模型用于估算胶体或纳米流体中凝聚和破碎 过程时没有给出凝聚体碎片的明确物理意义问题,提 出了 DLCA 模型的改进型,并考虑了具有明确物理意 义的断裂机制,通过二维实验验证了改进模型的正确 性。Jungblut, S.等^[56]采用 DLCA 模型研究了粒子的 不可逆凝聚到无序结构中的过程,证明了团簇的旋转 运动改变了最终凝聚粒子的结构,旋转凝聚粒子的分 形维数低于常规 DLCA 模型中的分形维数,其值随着 旋转扩散和平移扩散常数比率增加而减小,提供了将 纳米粒子凝聚体的结构调整到常规 DLCA 分形尺寸 极限以下的可能性。

2.2.2 反应限制团簇凝聚模型

反应限制集团凝聚 (Reaction-Limited Clustered Aggregation, 简称 RLCA) 模型^[57-58] 同 RLA 模型类 似,凝聚模型结构对凝聚概率具有很强的依赖性。在 DLCA 模型中,发生碰撞的两个团簇一定会凝聚一 起,而在 RLCA 模型中,团簇发生碰撞仅有一定的概 率凝聚。与 DLCA 模型松散的超支化结构相比, RLCA凝聚时间更长,粒子更加容易进入凝聚体内 部,结构形态更紧密^[59]。Asnaghi, D.等^[60]等研究了介 于 DLCA 和 RLCA 的中间区域凝聚聚苯乙烯胶乳的 动力学和分形形态。研究表明,平均团簇质量增长遵 循幂律,取值范围内其指数以连续方式变化。杨晓飞[6] 研究发现 RLCA 颗粒凝聚体的形态结构对凝结概率 具有很强的依赖性, 包裹半径和回旋半径随凝聚概率 增加而增加,凝聚时间随凝聚概率增大而减小。 Earnshaw, J.C.等^[62] 推测二维 RLCA 模型具有共形不 变性。当时间趋于无穷大时,在共形变换下晶格上凝

聚计算的结构函数是渐近不变的,二维 RLCA 确定的 分形维数与基于共形不变性的预测值具有良好的一 致性。Fry, D.等^[63] 针对 DLCA、RLCA 和 BLCA 的团 簇-团簇凝聚的二维和三维模拟,给出了在大范围单 体体积分数上的凝聚体形状各向异性的结果。三种 凝聚模型具有不同的稀释极限形状各向异性,且均略 小于层次模型的相应预测值,其中,DLCA 模型具有 最大的各向异性值,而 RLCA 模型具有最小的各向异 性值。

2.2.3 团簇-团簇凝聚模型

团簇-团簇凝聚 (Cluster-Cluster Aggregation, CCA) 模型^[64-65] 是由 Meakin, P.等人提出的凝聚模 型。模型中粒子不是朝着中心运动的,而是所有粒子 和团簇均做无规则运动,单个粒子先随机运动碰撞形 成小的团簇,小的团簇再凝聚成大的凝聚体系。 CCA 模型受网格影响,每个粒子的中心只能在网格 点上,两个相邻粒子的位置关系只有前后左右上下六 个垂直的方向,难以准确地表现出粒子间的实际位置 关系。类成新等^[66] 基于 CCA 模型模拟了随机取向烟 煤气溶胶粒子,计算了随机取向烟煤气溶胶粒子的紫 外和红外波段消光特性。黄朝军等^[67]利用 CCA 模型 模拟了由 64 个原始球形粒子构成的四种随机取向气 溶胶凝聚粒子,计算了四种气溶胶凝聚粒子不同入射 角情况下的单次散射反照率和不对称因子。Li, C.等^[68] 开发了 CCA 模型的 JAVA 版本程序, 展示了分形凝 聚生成的三维动态过程,同时动态记录了凝聚模拟的 相关动力学数据。Xiong, H.L.等^[69]基于复合数据结 构开发了使用晶格 CCA 模型的仿真程序,优化了胶 体凝聚的模拟。程序通过在整个系统中进行搜索来 达到区分任意选定的团簇,并有效地确定其相邻位置 的目的。徐强等^[70]针对硫酸、硫酸铵、硝酸盐、碳和 有机碳组成的雾霾污染物,构建了基于 CCA 模型的 形状和成分均不同的凝聚粒子,计算了相关凝聚粒子 的光学特性。Fan, L.Y.等^[71]改进了 CCA 模型的 JAVA 版本,避免了程序中簇列表的冗余遍历,大大 减少了仿真时间。程序使用不同的颜色标记不同的 团簇,以便更直观地显示凝聚过程。为了便于其他模 型耦合,程序还提供了凝聚粒子坐标的输出功能。陈 曦等^[72] 基于 CCA 模型研究了不同分形维数条件下的 生物材料消光性能。结果显示在远红外波段内,在原 始颗粒数量相同的情况下,生物凝聚粒子分形维数越 大,其消光性能越好。

2.2.4 弹道团簇-团簇凝聚模型

为解决 CCA 模型中出现的粒子位置受限的问 题,获得更加准确的凝聚粒子模型,研究者提出了弹 道团簇-团簇凝聚 (Ballistic Cluster-Cluster Aggregation, 简称 BCCA) 模型^[73], 该模型构建的蓬松多孔结构适 用于众多消光材料。BCCA 模型原理是所有粒子随 机分布在空间中,其数量为2°个,每次粒子(或团 簇)沿任意方向移动一个单位,发生碰撞时判断两个 粒子(或团簇)所包含的原始颗粒数量是否相等,相等 则发生凝聚,否则直接分开,直至最后空间内形成一 个凝聚粒子体系。由其原理可知, BCCA 模型原始粒 子数量必须为2的整数次方,存在一定的局限性。 Wada,K.等^[74]进行了二维 BCCA 正面碰撞数值模拟, 以研究其生长过程中的压缩和破坏过程,该模拟处理 了大量的颗粒以及凝聚体的各种初始结构,从而可以 对凝聚体的压缩和破坏过程进行统计讨论。Wada, K.等^[75]开发了凝聚碰撞的三维模拟程序,并根据之前 的二维模拟检查了其压缩和破坏过程。通过击打过 程形成的 BCCA 聚类作为初始结构,并使用现实的约 束力研究其正面碰撞。结果表明,压缩和破坏 BCCA团簇的能量标准与先前的二维模拟一致。 Kolokolova, L.等^[76]提出一个新模型,将彗星尘埃视为 凝聚体和紧密颗粒的混合物,用 BCCA 模型模拟凝聚 体,用具有高宽比分布的多分散球体来表征紧密颗 粒。Tazaki, R.等^[77]研究了分形维数分别为2和3的 分形尘埃凝聚体 BCCA 和 BPCA 对散射的角度依赖 性。研究发现 Rayleigh-Gans-Debye(RGD) 理论是计 算 BCCA 光学特性非常有用的方法。

3 人工制备红外消光材料消光性能计算方法

3.1 Mie 散射方法

Mie, V. G.提出了 Mie 散射方法^[78], 用于解释悬浮 在水中的金颗粒胶体对光的散射问题。Mie 散射方 法是在麦克斯韦方程组的基础上, 加上边界条件, 得 到的任意直径均匀球形粒子散射光强的严格数学解。

王玄玉等^[79]利用 Mie 散射方法计算了单个石墨 气溶胶粒子在 8~14 μm 波段的消光因子。结果表明, 石墨气溶胶粒子直径与空气湿度相关,湿度越高,粒

子直径越大,且其消光因子随石墨粒子直径增加而迅 速增加,当粒子直径大于2.5 µm时,石墨气溶胶具有 较好的消光性能。李乐等[80]利用测量的黑曲霉孢子 2.5~15 µm 波段的反射光谱计算得到其复折射率,基 于Mie散射方法计算了黑曲霉孢子的质量消光系 数。结果显示,黑曲霉孢子在 2.5~15 um 波段具有良 好的消光性能。张自嘉等^[81] 基于 Mie 散射方法, 研究 了带电粒子对电磁波的散射特性,计算了导电率对粒 子散射的影响。结果表明散射系数受电导率影响较 大,但达到一定值的时候,散射系数波动不大。付成 花^[82]利用 Mie 散射方法分析亚微米的球体和圆柱, 计 算得到与入射光波长相当尺寸粒子电磁波散射分布, 从而可知散射粒子尺寸、个数、构成和入射光方向均 会影响散射光场的分布。程洁等^[83]通过 Mie 散射方 法,研究蓝宝石晶片中微体缺陷部分的散射特性,分 析得出缺陷尺寸对散射光强分布有较大影响,从而可 以利用散射光强的分布来判断缺陷尺寸,其检测结果 与波长相关,入射光波长越短,检测结果越精确。吕 依颖等^[84] 基于 Mie 散射方法理论分析和数值计算了 以碳作为凝结核外层包裹以水的核壳结构球形微粒 的散射特性。研究结果表明,入射波长、水膜厚度和 铅芯半径对前向散射有较大影响,而对后向散射无明 显影响,前向散射强度与入射波长成反比,与水膜厚 度成正比。徐捷等^[85]采用 Mie 散射方法和 Debye 级 数展开,分析了入射光为自然光和线偏振光情况下散 射光的偏振特性。研究发现,入射光为自然光时散射 光通常为部分偏振光,入射光为线偏振光时散射光通 常为椭圆偏振光。

3.2 DDA 方法

DDA 方法广泛运用于任意形状粒子消光特性的 计算。Devoe, H.^[86] 在利用单体的光学性质求解凝聚 体光学性质时提出了 DDA 方法的框架。在此基础 上, Purcell, E. M.等^[87] 提出了 DDA 的概念。Draine, B. T.等^[88-89] 人对 DDA 进行了改进和完善,形成了一套 较为完备的 DDA 理论体系,并推向应用。DDA 计算 方法基本原理为:用有限个相互作用的、离散的小偶 极子形成的阵列来近似实际的粒子,而且电磁特性上 需足够匹配欲描述的实际粒子。

黄朝军等^[90]基于 DDA 方法计算球形和非球形 气溶胶粒子凝聚体的光学因子、散射强度和极化度, 研究发现,粒子形状对凝聚体的光学因子、散射强度 和极化度存在较大影响。王红霞等^[91]采用 DDA 方 法计算不同形状石墨椭球粒子的红外消光性能,结合 等效球形石墨粒子的消光性能,分析粒子形状对粒子 消光性能的影响。结果表明,椭球状石墨粒子的消光 性能明显优于球形石墨粒子,在中远红外波段,石墨 粒子形状越圆,消光消光越差。类成新等[92]基于 DDA 方法研究发现混合凝聚粒子的混合方式对非对 称因子的影响非常大,散射截面和单次散射反照率也 受到较大影响,但吸收和消光截面受其影响不明显。 随着凝聚粒子中原始粒子粒径和数量增加,混合方式 对非对称因子、散射截面等影响越来越显著。刘建斌 等^[93]利用 DDA 方法分析了生物细胞光散射特性,发 现生物细胞的散射光强与散射角度和相对折射率成 正比关系,同时散射能量主要集中在很小的散射角 内。宋越辉等^[94]采用 DDA 方法研究粒子形状、尺度 参数和复折射率对非球形气溶胶散射特性的影响。 胡以华等[95]将人工制备絮状生物材料等效为子弹政 瑰花型粒子,利用 DDA 方法计算其在远红外波段的 平均消光效率因子。研究发现,该生物材料在远红外 波段具有良好的消光性能,且其平均消光效率因子与 尺度因子和孔隙率成正比。

3.3 T矩阵方法

T矩阵方法^[96]由 Waterman, P. C.提出并将其用于 散射体的电磁场计算。T矩阵方法具有计算速度快、 精度高和尺寸范围广等特点。T矩阵原理是将入射 光和散射光利用矢量球谐函数展开,展开的散射光与 入射光系数通过转换系数联系起来,再利用扩展边界 条件求解。

Sang, V.Q.等^[97]构造圆柱体、椭球体和切比雪夫 体三种非球形粒子模拟水中的悬浮颗粒,基于T矩阵 方法计算了三种粒子的散射光强分布,数值表明粒子 形状、尺寸及取向和入射光波长都会影响其散射光强 分布。张肃等^[98]为研究非球形沙尘、烟煤粒子对光 的偏振特性,利用T矩阵方法,分析非偏振光通过不 同形状、大小和折射率的椭球形粒子后的偏振特性。 并通过海洋、沙尘和烟尘粒子的实际参数验证结果的 准确性。殷金英等^[99]结合 Maxwell-Garnett 理论和 T矩阵方法计算包覆水层碳黑粒子的辐射特性,并通 过 Mie 散射方法验证研究结果。研究发现随着相对 湿度的提升,辐射特性显著增强,相对湿度提升导致 碳黑粒子粒径增加是碳黑凝聚体辐射特性增强的主 要原因。郑利娟等^[100] 采用叠加 T 矩阵方法计算了新 鲜状态的黑碳气溶胶和老化后包裹硫酸盐的黑碳气 溶胶的红外吸收特性,结果表明黑碳老化后可以显著 增强其大气层的长波辐射强迫,且大气层顶的黑碳长 波辐射强迫随包裹黑碳的硫酸盐半径增大而增强。 米利等^[101]利用T矩阵方法直接计算粒子的光散射特 性,为研究粒子的凝聚速率提供了一种简单快捷的方 法,该方法不受粒子本身形状的影响。Spurr, R.等^[102] 提出了分别用于非球形和球形粒子光散射的T矩阵 和 Mie 散射计算的新的线性化方法,该方法除了输出 消光截面、散射截面和散射矩阵,还输出相对于粒子 复折射率的解析导数和相对于形状参数的解析导 数。赵太飞等^[103] 基于 Mie 散射方法和 T 矩阵方法研 究了不同浓度和形态雾霾粒子紫外光波段的散射特 性,分析了散射角对散射光强的影响,并通过实验验 证了结果的准确性。

3.4 FDTD 方法

FDTD 的概念由 Yee, K.S.^[104] 首次提出。FDTD 方法是一种在时域直接求解麦克斯韦方程的方法,需 利用有限差分方程代替麦克斯韦时域旋度方程,模拟 出电子脉冲和理想导体作用的时域响应特性,再通过 傅里叶变换得到三维空间的频域解。FDTD 可以求 解任意形状的粒子,尤其在处理复杂形状、成分复杂 材料中占据优势。

Sun, W. B.等^[105]使用 FDTD 计算了单粒子在吸 收性介质中非球形粒子对光的散射和吸收。当计算 吸收介质中粒子的单散射特性时,使用内部场的体积 积分来推导散射相位函数、消光和吸收效率的单散射 特性。计算表明,消光和吸收效率误差小于 2%,散射 相位函数误差通常小于 5%,不对称因子误差小于 0.1%。王维娟^[106]用 FDTD 方法计算了纳米银球的消 光特性,并将计算结果与 Mie 散射方法进行比较,验 证了 FDTD 计算消光特性的有效性。还用 FDTD 方 法计算了三棱柱、五棱柱、六棱柱和八棱柱等复杂形 状纳米银质棱柱的消光特性,发现纳米棱柱的消光特 性随着尺寸和形状的变化而发生较大改变。刘建晓^[107] 等推导了磁化铁氧体的 FDTD 公式,并基于 FDTD 方 法分析各向异性铁氧体材料覆盖金属圆柱的散射特 性。同时采用与移位算子法 (SO-FDTD) 验证该方法 的正确性。张晓峰等^[108] 基于 DDA 方法求解了不同 尺寸纳米银球及其阵列的消光光谱和消光效率,并通 过基于 FDTD 的电磁学仿真软件 XFDTD 分析了双纳 米银球阵列的电场分布。王世通等[109]建立三角形、 矩形截面光学元器件表面缺陷的散射仿真模型,结合 FDTD 方法分析了表面散射光场分布,研究了散射光 在相面的分布情况。对样本进行了散射成像实验,得 到的结果与理论分析相符。杨丽霞等[110]利用 FDTD 方法和表面边界条件计算了单层石墨烯的反 射和透射系数,验证发现解析解和数值解基本符合。 同时发现了在太赫兹高频段处,石墨烯的透射率接近 1,反射率接近于0.1,说明石墨烯良好的消光性能。 宛栋等[111] 基于 FDTD 方法研究了癌细胞不同时期的 光散射特性,通过研究发现,不同尺寸癌细胞的前向 散射强度不同,其主要原因是细胞核内的 DNA 含量 发生了改变。

4 人工制备红外消光材料发展趋势

4.1 持续时间长、单向可见

人工制备红外消光材料的持续时间受天气影响 较大,与风速、大气湍流、垂直温度梯度密切相关,目 前人工制备红外消光材料持续时间仍需加强,可以结 合材料本身及其运动特性采取恰当的方式增加其持 续时间。

单向可见是指有效防护己方人员或设施不被对 方发现,同时己方不受影响,可视性仅存在于己方,便 于防护同时随时掌握对方态势,占据主动权。

4.2 成本低、施放形式多样

在消光效果不变的情况下,选取成本低且易于批 量制备的红外消光材料。为了保证重要节点或重要 区域红外消光长时间有效,必须消耗大量的红外消光 材料,成本因素成为一个不可避开的因素。

为了适应各种不同的应用场合,消光材料应具有 不同施放设备的适应性。现在常用的施放设备有发 烟罐、无人机空中抛洒装置、爆炸装置和车载发烟机 等。不同的应用场合要求消光材料能够根据需求选 择合适的施放方式,从而达到最佳的消光效果。

4.3 环保无毒、阻抗高

环保无毒红外消光材料是近年来的研究热点,保

护人员安全和领土生态环境免遭破坏是各国关注的 重点,无毒无害的环境友好型红外消光材料的研究得 到了各国的重视。消光材料用于防护重要设施时,不 能造成设备的破坏,因此,要求材料具有高阻抗的特 性。因此,环保无毒、阻抗高的红外消光材料是未来 红外消光材料发展的一个极其重要的研究方向。

5 结束语

红外成像设备或系统的迅速发展使得人员和设 备面临前所未有的安全隐患,对红外消光材料的性能 提出了更高的要求,同时促使了人工制备红外消光材 料的研究不断深入。文中分析了几种典型的人工制 备红外消光材料的消光性能。阐述了消光材料结构 建模方面常用的粒子-团簇和团簇-团簇凝聚模型,并 列举了几种典型的凝聚粒子模型。综述了几种典型 消光性能的计算方法。在此基础上,提出人工制备红 外消光材料将朝着持续时间长、单向可见、成本低、 施放形式多样、环保无毒和阻抗高等方向发展。

参考文献:

- Wang Zhaochun. Firearms History of the World[M]. Beijing: Military Science Press, 2007: 25. (in Chinese)
 王兆春. 世界火器史[M]. 北京: 军事科学出版社, 2007: 25.
- Bai Lin, Li Ning, Guo Yongli. Extinction characteristic of the copper powder smoke screen and the comparative trial of the infrared [J]. *Ship Electronic Engineering*, 2009, 29(5): 161–163. (in Chinese)

白林,李宁,郭永利.铜粉烟幕的消光特性及其红外遮蔽效果 对比试验[J].舰船电子工程,2009,29(5):161-163.

- [3] Yang Shiqing, Xu Songlin, Yue Shouti, et al. Study on the ir interfering smoke agent based on copper powder and high nitrogen energetic materials [J]. *Electro-Optic Technology Application*, 2006(4): 22–26. (in Chinese)
 阳世清, 徐松林, 岳守体, 等. 含高氮化合物的铜基红外干扰 烟幕剂研究[J]. 光电技术应用, 2006(4): 22–26.
- [4] Liu Xiangcui, Zhen Weiping. Study on IR extinction characteristic of nano-Ag powder [J]. *Infrared Technology*, 2008(5): 301-304. (in Chinese) 刘香翠,郑卫平. 纳米银粉的红外消光特性研究[J]. 红外技术, 2008(5): 301-304.
- [5] Chen Wenliang, Teng Dongxiao, Ma Yuan, et al. Preparation and application of expanded graphite: A review [J]. Science

and Technology Innovation Herald, 2019, 6: 111-114. (in Chinese)

陈文亮, 滕东晓, 马元, 等. 膨胀石墨材料的研究进展及其应 用综述[J]. 科技创新导报, 2019, 6: 111-114.

- [6] Zhou Mingshan, Xu Ming. Numerical calculation of 3 mm wave extinction for expanded graphite [J]. Acta Phys Sin, 2013, 62(9): 378-384. (in Chinese)
 周明善, 徐铭. 膨胀石墨3 mm波消光数值计算[J]. 物理学报, 2013, 62(9): 378-384.
- [7] Wang X Y, Dong W J, Pang M H, et al. Granular characteristics and infrared extinction coefficients of graphite aerosol [J]. *Procedia Engineering*, 2015, 102: 1238–1244.
- [8] Li Xiaoxia, Zhao Jijin, Ma Deyue, et al. Preparation and extinction behaviour of expanded graphite to 1.064 micrometer laser [J]. *Acta Photonica Sinica*, 2016, 45(4): 0414001. (in Chinese)

李晓霞,赵纪金,马德跃,等.膨胀石墨制备及其1.064 μm激 光消光性能[J].光子学报,2016,45(4):0414001.

[9] Wang Hongxia, Liu Daizhi, Song Zibiao. Infrared images shielded characteristics of carbon nano-materials [J]. *Chinese Journal of Energetic Materials*, 2008, 16(5): 588–591. (in Chinese)

王红霞,刘代志,宋子彪.碳纳米材料红外图像遮蔽特性研 究[J].含能材料,2008,16(5):588-591.

- [10] Appleyard P G. Infrared extinction performance of high aspect ratio carbon nanoparticles [J]. *Journal of Optics A: Pure and Applied Optics*, 2006, 8: 101–113.
- [11] Wang H X, Wang L F, Xu B, et al. Experimental study on extinction performance of carbon nanotubes smoke to infrared radiation [J]. *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering*, 2017, 167: 012033.
- [12] Zhao Jun, Pan Gongpei, Chen Xin. Experimental study on infrared attenuation factors of foam [J]. *Acta Optica Sinica*, 2007, 27(10): 1883–1888. (in Chinese)
 赵军, 潘功配, 陈昕. 泡沫红外消光影响因素的实验研究[J]. 光学学报, 2007, 27(10): 1883–1888.
- [13] Zhao J, Pan G P Chen X. Novel medium of broadband PPECM: aqueous foam[J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2007, 36(3): 425–429.
- [14] Du Xuefeng. Study on preparation and extinction properties of PPECM aqueous foams[D].Nanjing: Nanjing University of Science & Technology, 2018. (in Chinese) 杜雪峰. 无源光电干扰水基泡沫制备及其消光特性研究[D]. 南京:南京理工大学, 2018.
- [15] Wang Xiang, Yuan Jian, Jiang Xiaojun, et al. Research on

preparation and performance of green camouflage aqueous foam [J]. *Acta Armamentarii*, 2019, 40(10): 2136–2141. (in Chinese)

王翔, 袁建, 蒋晓军, 等. 绿色伪装水基泡沫的制备与性能研 究[J]. 兵工学报, 2019, 40(10): 2136-2141.

- [16] Sun Dujuan, Hu Yihua, Gu Youlin, et al. Determination and model construction of microbes' complex refractive index in far infrared band [J]. *Acta Phys Sin*, 2013, 62(9): 094218. (in Chinese)
 孙杜娟, 胡以华, 顾有林, 等. 微生物远红外波段复折射率测
- [17] Li Le, Hu Yihua, Gu Youlin, et al. Infrared extinction performance of biological materials [J]. *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 2017, 37(11): 115–119. (in Chinese)
 李乐, 胡以华, 顾有林, 等. 生物材料红外波段消光性能分 析[J]. 光谱学与光谱分析, 2017, 37(11): 115–119.

定及模型构建[J]. 物理学报, 2013, 62(9): 094218.

- [18] Zhao X Y, Hu Y H, Gu Y L, et al. The effect of water content of microbial material on the extinction performance of infrared band[C]// Infrared, Millimeter-Wave, and Terahertz Technologies V, 2018: 1082610.
- [19] Gu Youlin, Wang Cheng, Yang Li, et al. Infrared extinction before and after aspergillus niger spores inactivation [J]. *Infrared ad Laser Engineering*, 2015, 44(1): 36-41. (in Chinese) 顾有林, 王成, 杨丽. 等. 黑曲霉孢子灭活前后红外消光特性

[J]. 红外与激光工程, 2015, 44(1): 36-41.

- [20] Gu Y L, Hu Y H, Zhao X Y, et al. Discrimination of viable and dead microbial materials with Fourier transform infrared spectroscopy in 3-5 micrometers [J]. *Opt Express*, 2018, 26(12): 15842–15850.
- [21] Gu Youlin, Cao Guanghua, Hu Yihua, et al. Measurement of ultraviolet and infrared composite extinction performance of biological materials [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2018, 47(3): 0321003. (in Chinese) 顾有林, 曹光华, 胡以华, 等. 生物材料紫外红外复合消光性 能测试[J]. 红外与激光工程, 2018, 47(3): 0321003.
- [22] Gu Y L, Hu Y H, Zhao X Y, et al. Determination of infrared complex refractive index of microbial materials [J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 2018, 217: 305–314.
- [23] 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.
- [24] Wang X Y, Hu Y H, Gu Y L, et al. Effects of relative humidity on the broadband extinction performance of bioaerosol [J]. Opt

Express, 2019, 27(17): 23801–23813.

- [25] Wang X Y, Hu Y H, Gu Y L, et al. Analysis of factors affecting the broadband extinction performance of bioaerosol [J]. *Optik*, 2020, 201: 163527.
- [26] Chen Hao, Gao Xinbao, Xu Xingchun, et al. Middle and far infrared interference properties of CNT/graphene/carbon composites smoke screen [J]. *Chinese Journal of Energetic Materials*, 2019, 27(3): 249–254. (in Chinese) 陈浩, 高欣宝, 许兴春, 等. 碳纳米管/石墨烯/碳复合材料烟幕 的中远红外的干扰性能[J]. 含能材料, 2019, 27(3): 249–254.
- [27] Ma Deyue, Wang Chengming. Li Xiaoxia, et al. Research on preparation and infrared property of graphene and nano-copper composites [J]. *Acta Photonica Sinica*, 2018, 47(3): 0316002. (in Chinese)
 马德跃, 王成名, 李晓霞, 等. 石墨烯/纳米铜复合材料的制备 及红外性能研究[J]. 光子学报, 2018, 47(3): 0316002.
- [28] Ma Deyue, Li Xiaoxia, Guo Yuxiang, et al. Research on preparation and properties of graphene/copper nickel ferrite composites [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2018, 47(9): 0921002. (in Chinese)
 马德跃, 李晓霞, 郭宇翔, 等. 石墨烯/铜镍铁氧体复合材料的 制备及性能研究[J]. 红外与激光工程, 2018, 47(9): 0921002.
- [29] Witten T A, Sander L M. Diffusion-limited aggregation, a kinetic critical phenomenon [J]. *Physical Review Letters*, 1981, 47(19): 1400–1403.
- [30] Witten T A, Sander L M. Diffusion-limited aggregation [J]. *Physical Review B*, 1983, 27(9): 5686–5697.
- [31] Xu Shu, Bai Lianhong, Fan Meng, et al. Optical properties of soot aggregates and mixture particles with water coatings [J]. *Acta Optica Sinica*, 2017, 37(2): 0201002. (in Chinese) 徐澍, 白连红, 范萌, 等. 黑碳团簇及具有包覆水层混合态粒子的光学特性[J]. 光学学报, 2017, 37(2): 0201002.
- [32] Sun W Y, Wang W, Gu Y Q, et al. Study on the wax/asphaltene aggregation with diffusion limited aggregation model [J]. *Fuel*, 2017, 191: 106–113.
- [33] Wu Y, Cheng T H, Zheng L J, et al. Models for the optical simulations of fractal aggregated soot particles thinly coated with non-absorbing aerosols [J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 2016, 182: 1–11.
- [34] Zhang M, Deng C Y. Fractal simulation of thin film nucleation growth process using a diffusion-limited aggregation model [J]. *Modern Physics Letters B*, 2018, 32(33): 1850408.
- [35] Meakin P, Family F. Structure and dynamics of reactionlimited aggregation [J]. *Physical Review A*, 1987, 36(11): 5498–5501.

- [36] Brahma N, Talbot J B. Effects of chemical mechanical planarization slurry additives on the agglomeration of alumina nanoparticles II: Aggregation rate analysis [J]. *Journal of Colloid and Interface Science*, 2014, 419: 25–30.
- [37] Wu J, Liu B G, Zhang Z Y, et al. Reaction limited aggregation in surfactant-mediated epitaxy [J]. *Physical Review B*, 2000, 61(19): 13212–13222.
- [38] Runkana V, Somasundaran P, Kapur P C. Reaction-limited aggregation in presence of short-range structural forces [J]. *Aiche Journal*, 2005, 51(4): 1233–1245.
- [39] Brilliantov N V, Bodrova A S, Krapivsky P L. A model of ballistic aggregation and fragmentation [J]. Journal of Statistical Mechanics-Theory and Experiment, 2009, 6: 06011.
- [40] Bensimon D, Shraiman B, Liang S. On the ballistic model of aggregation [J]. *Physics Letters A*, 1984, 102A(5-6): 238–240.
- [41] Liang S, Kadanoff L P. Scaling in a ballistic aggregation model
 [J]. *Physical Review A*, 1985, 31(4): 2628–2630.
- [42] Shao Leiting, Feng Lianfang, Xu Zhongbin. Simulation of dispersion of fractal agglomerates in shear flow fielD [J]. *Polymer Materials Science & Engineering*, 2006, 22(2): 189–193. (in Chinese)
 邵雷霆, 冯连芳, 许忠斌. 剪切场作用下团聚体分散的计算机 模拟[J]. 高分子材料科学与工程, 2006, 22(2): 189–193.
- [43] Majumdar S N, Mallick K, Sabhapandit S. Statistical properties of the final state in one-dimensional ballistic aggregation [J]. *Physical Review E*, 2009, 79(2): 021109.
- [44] Paul S, Das S K. Dimension dependence of clustering dynamics in models of ballistic aggregation and freely cooling granular gas [J]. *Physical Review E*, 2018, 97(3): 032902.
- [45] Mukai T, Ishimoto H, Kozasa T, et al. Radiation pressure forces of fluffy porous grains [J]. *Astronomy and Astrophysics*, 1992, 262(1): 315–320.
- [46] Kozasa T, Blum J, Mukai T. Optical-properties of dust aggregates. 1. wavelength dependence [J]. Astronomy and Astrophysics, 1992, 263(1-2): 423–432.
- [47] Wada K, Tanaka H, Suyama T, et al. Collisional growth conditions for dust aggregates [J]. *The Astrophysical Journal*, 2009, 702(2): 1490–1501.
- [48] Wada K, Tanaka H, Suyama T, et al. Numerical Simulation of Dust Aggregate Collisions: Growth and disruption of dust aggregates[C]//AIP Conference Proceedings, 2009: 103-106.
- [49] Paul D, Das S R, Das H S, et al. Polarisation properties of comet NEAT C/2001 Q4 [J]. *Indian Journal of Physics*, 2010, 84(6): 623–627.

- [50] Ball R C, Brady R M, Rossi G, et al. Anisotropy and cluster growth by diffusion-limited aggregation [J]. *Physical Review Letters*, 1985, 55(13): 1406–1409.
- [51] Zhen Dianmo, Zhu Shengan, Jiang Wentian, et al. Simulation on flocculation process based on DLCA model and its application [J]. *Journal of Nanchang University(Engineering & Technology*), 2011, 33(2): 129–133. (in Chinese)
 郑典模, 朱升干, 蒋文天, 等. 基于DLCA模型的絮凝过程模 拟与应用[J]. 南昌大学学报(工科版), 2011, 33(2): 129–133.
- [52] Jiang Xin. Simulation of colloidal particles aggregation in presence of diffuse double layer [J]. Journal of Chemical Engineering of Chinese Universities, 2004, 18(1): 33–37. (in Chinese)

蒋新. 扩散双电层作用下的胶体粒子聚集过程模拟[J]. 高校 化学工程学报, 2004, 18(1): 33-37.

- [53] Heinson W R, Sorensen C M, Chakrabarti A. Does shape anisotropy control the fractal dimension in diffusion-limited cluster-cluster aggregation? [J]. *Aerosol Science and Technology*, 2010, 44: I–Iv.
- [54] Cho Y S, Kim Y W, Kahng B. Discontinuous percolation in diffusion-limited cluster aggregation [J]. *Journal of Statistical Mechanics-Theory and Experiment*, 2012, 60: 2547–2571.
- [55] Jing D W, Hu S W, Zhang Y M, et al. A modified diffusionlimited cluster aggregation model for accurate prediction of the coagulation and fragmentation process in nanoparticle suspension [J]. *Journal of Physics D-Applied Physics*, 2019, 52(45): 455305.
- [56] Jungblut S, Joswig J O, Eychmuller A. Diffusion-limited cluster aggregation: impact of rotational diffusion [J]. *Journal* of *Physical Chemistry C*, 2019, 123: 950–954.
- [57] Jullien R, Kolb M. Hierarchical model for chemically limited cluster cluster aggregation [J]. Journal of Physics a-Mathematical and General, 1984, 17: L639–L643.
- [58] Ball R C, Weitz D A, Witten T A, et al. Universal kinetics in reaction-limited aggregation [J]. *Physical Review Letters*, 1987, 58(3): 274–277.
- [59] Xiong Hailing, Yang Zhimin, Li Hang. Coupling effects of diffusive model and sticking model on aggregation kinetics of colloidal particles: a monte carlo simulation study [J]. *Acta Physico-Chimica Sinica*, 2014, 30(3): 413–422. (in Chinese) 熊海灵,杨志敏,李航. 扩散模型和凝聚模型耦合作用下胶体 凝聚动力学的Monte Carlo模拟研究[J]. 物理化学学报, 2014, 30(3): 413–422.
- [60] Asnaghi D, Carpineti M, Giglio M, et al. Coagulation kinetics and aggregate morphology in the intermediate regimes between

diffusion-limited and reaction-limited cluster aggregation [J]. *Physical Review A*, 1992, 45(2): 1018–1023.

- [61] Yang Xiaofei. Research on fractai-aggregation during coagulation process: computer simulation[D].Qingdao: Ocean University of China, 2007. (in Chinese) 杨晓飞. 混凝过程中颗粒分形凝聚生长的计算机模拟研究 [D]. 青岛: 中国海洋大学, 2007.
- [62] Earnshaw J C, Harrison M B J. Conformal invariance in twodimensional cluster-cluster aggregation [J]. *Physical Review E*, 1998, 58(6): 7566–7570.
- [63] Fry D, Mohammad A, Chakrabarti A, et al. Cluster shape anisotropy in irreversibly aggregating particulate systems [J]. *Langmuir*, 2004, 20(18): 7871–7879.
- [64] Meakin P, Wasserman Z R. Some universality properties associated with the cluster cluster aggregation model [J]. *Physics Letters A*, 1984, 103A(6-7): 337–341.
- [65] Meakin P. Structure of the active zone in diffusion-limited aggregation, cluster-cluster aggregation, and the screenedgrowth model [J]. *Physical Review A*, 1985, 32(1): 453–459.
- [66] Lei Chengxin, Zhang Huafu, Liu Hanfa, et al. Study of extinction characteristics of solar radiation by soot aerosols [J]. *Acta Optica Sinica*, 2010, 30(12): 3373–3377. (in Chinese) 类成新,张化福,刘汉法,等.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.
- [67] Huang Chaojun, Wu Zhensen, Liu Yafeng. Scattering characteristics of aerosol aggregation particles of 1.06µm laser [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2013, 42(9): 2353–2357. (in Chinese) 黄朝军, 吴振森, 刘亚锋. 1.06 µm激光气溶胶凝聚粒子散射 特性[J]. 红外与激光工程, 2013, 42(9): 2353–2357.
- [68] Li C, Xiong H L. 3D simulation of the Cluster-Cluster Aggregation model [J]. *Computer Physics Communications*, 2014, 185(12): 3424–3429.
- [69] Xiong H L, Li H, Chen W P, et al. Data structure for on-lattice cluster-cluster aggregation model performance optimization [J]. *Computer Physics Communications*, 2014, 185: 836–840.
- [70] Xu Qiang, Pan Feng, Bai Jinqiang, et al. Light scattering characteristics of aerosol particle cluster by discrete-dipole approximation method [J]. Journal of Atmospheric and Environmental Optics, 2018, 13(5): 370–377. (in Chinese) 徐强, 潘丰, 白进强, 等. 离散偶极子法研究雾霾随机团簇粒 子的光散射特性[J]. 大气与环境光学学报, 2018, 13(5): 370–377.
- [71] Fan L Y, Liao J W, Zuo J S, et al. Version 4.0 of code Java for3D simulation of the CCA model [J]. *Computer Physics*

Communications, 2018, 228: 290-292.

[72] Chen Xi, Hu Yihua, Gu Youlin, et al. Extinction characteristics of biological aggregated particles in the far infrared band [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2019, 48(7): 0704002. (in Chinese) 陈曦, 胡以华, 顾有林, 等. 生物凝聚粒子远红外波段消光特

性[J]. 红外与激光工程, 2019, 48(7): 0704002.

- [73] Meakin P. Fractal aggregates in geophysics [J]. *Reviews of Geophysics*, 1991, 29(3): 317–354.
- [74] Wada K, Tanaka H, Suyama T, et al. Numerical simulation of dust aggregate collisions. i. compression and disruption of two - dimensional aggregates [J]. *The Astrophysical Journal*, 2007, 661(1): 320–333.
- [75] Wada K, Tanaka H, Suyama T, et al. Numerical simulation of dust aggregate collisions. II. Compression and disruption of three-dimensional aggregates in head-on collisions [J]. *Astrophysical Journal*, 2008, 677(2): 1296–1308.
- [76] Kolokolova L, Kimura H. Comet dust as a mixture of aggregates and solid particles: model consistent with groundbased and space-mission results [J]. *Earth Planets and Space*, 2010, 62: 17–21.
- [77] Tazaki R, Tanaka H, Okuzumi S, et al. Light scattering by fractal dust aggregates. i. angular dependence of scattering [J]. *Astrophysical Journal*, 2016, 823(2): 1–16.
- [78] Mie V G. Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen [J]. *Annalen der Physik*, 1908, 330(3): 377–445.
- [79] Wang Xuanyu, Song Li, Cheng Lejian. Study on particle size distribution and far infrared extinction factors of graphite aerosol [J]. *China Powder Science And Technology*, 2009, 15(1): 34-36. (in Chinese)
 王玄玉, 宋黎, 程乐见. 石墨气溶胶粒度分布及远红外消光因 子研究[J]. 中国粉体技术, 2009, 15(1): 34-36.
- [80] Li Le, Hu Yihua, Gu Youlin, et al. Infrared extinction performance of Aspergillus niger spores [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2014, 43(7): 127–131. (in Chinese) 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): 127–131.
- [81] Zhang Zijia, Pan Qi, Chen Haixiu. Mie scattering of electromagnetic waves by charged sphere particle [J]. *Chinese Journal of Radio Science*, 2015, 30(3): 429–436. (in Chinese) 张自嘉,潘琦,陈海秀.带电粒子的Mie散射研究[J]. 电波科 学学报, 2015, 30(3): 429–436.
- [82] Fu Chenghua. Analysis of optical scattering of micro-nano particles [J]. *Acta Physica Sinica*, 2017, 66(9): 097301. (in

Chinese)

付成花. 微纳粒子光学散射分析[J]. 物理学报, 2017, 66(9): 097301.

[83] Cheng Jie, Wang Xiangning, Xiao Yongliang, et al. Simulation of scattering characteristics of micro-and nano-scale defects in sapphire wafer [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2019, 46(4): 0404001. (in Chinese)

程洁, 王湘宁, 肖永亮, 等. 蓝宝石晶片中微/纳米缺陷散射特性的仿真[J]. 中国激光, 2019, 46(4): 0404001.

[84] Lv Yiying, Gao Shan, Xu Qingjun. Scattering characteristics of C@H_2O composite particle based on mie light scattering theory [J]. *Chinese Journal of Luminescence*, 2019, 40(3): 298–303. (in Chinese)

> 吕依颖, 高珊, 徐庆君. 基于Mie散射理论的C@H_2O复合粒 子散射特性研究[J]. 发光学报, 2019, 40(3): 298-303.

- [85] Xu Jie, Ge Baozhen. Simulation and analysis of polarization properties of single particle light scattering [J]. *Acta Optica Sinica*, 2019, 39(4): 413-421. (in Chinese) 徐捷, 葛宝臻. 单颗粒光散射偏振特性的模拟和分析[J]. 光学 学报, 2019, 39(4): 413-421.
- [86] Devoe H. Optical properties of molecular aggregates. I. classical model of electronic absorption and refraction [J]. *Journal of Chemical Physics*, 1964, 41(2): 393–400.
- [87] Purcell E M, Pennypacker C R. Scattering and absorption of light by nonspherical dielectric grains [J]. *The Astrophysical Journal*, 1973, 186: 705–714.
- [88] Draine B T, Goodman J. Beyond Clausius-Mossotti-Wave propagation on a polarizable point lattice and the discrete dipole approximation [J]. *Astrophysical Journal*, 1993, 405(2): 685–697.
- [89] Draine B T. The discrete-dipole approximation and its application to interstellar graphite grains [J]. JOSA A, 1988, 333(3): 1491–1499.
- [90] Huang Chaojun, Liu Yafeng, Sun Yanqing, et al. Using the DDA method to calculate aerosol optical characteristics [J]. *Journal of Atomic and Molecular Physics*, 2009, 26(5): 945–949. (in Chinese)
 黄朝军, 刘亚锋, 孙彦清, 等. 利用DDA方法计算大气气溶胶 粒子光学特性[J]. 原子与分子物理学报, 2009, 26(5): 945–949.
- [91] Wang Hongxia, Ma Jin, Zhou Zhanrong, et al. Infrared extinction properties of randomly oriented nano-graphite ellipsoid particles [J]. *The Journal of Light SCattering*, 2010, 22(4): 339-343. (in Chinese) 工作業 現世 開始書 第二期的自然了開始的教育了的任何。

王红霞,马进,周战荣,等.随机取向纳米石墨椭球粒子的红

外消光特性[J]. 光散射学报, 2010, 22(4): 339-343.

- [92] Lei Chengxin, Wu Zhensen, Feng Dongtai. Radiative properties of internal/external mixture of agglomerates in random orientation [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2013, 42(10): 2692–2696. (in Chinese)
 类成新, 吴振森, 冯东太. 随机取向内外混合凝聚粒子辐射特性[J]. 红外与激光工程, 2013, 42(10): 2692–2696.
- [93] Liu Jianbin, Zeng Yingxin, Yang Chuping. Light scattering study of biological cells with the discrete dipole approximation
 [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2014, 43(7): 2204–2208. (in Chinese)
 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.

- [94] Song Yuehui, Lu Leilei, Li Shichun, et al. Analysis of light scattering properties of non-spherical aerosol particles [J]. *Journal of Xi 'an University of Technology*, 2017, 33(2): 233-239. (in Chinese)
 宋跃辉, 鲁雷雷, 李仕春, 等. 非球形气溶胶粒子光散射特性 的仿真分析[J]. 西安理工大学学报, 2017, 33(2): 233-239.
- [95] Hu Yihua, Huang Baokun, Gu Youlin, et al. Model construction of biological particles' average extinction efficiency factor in far infrared band [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2018, 47(10): 1004003. (in Chinese) 胡以华, 黄宝锟, 顾有林, 等. 生物颗粒远红外波段平均消光 效率因子模型构建[J]. 红外与激光工程, 2018, 47(10): 1004003.
- [96] Waterman P C. Symmetry, unitarity, and geometry in electromagnetic scattering [J]. *Physical Review D*, 1971, 3(4): 825–839.
- [97] Sang V Q, Feng Peng, Mi Deiling, et al. Research on properties of light scattering for non-spherical suspended particles in water based on T matrix model [J]. *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 2015, 35(10): 2691–2696. (in Chinese)
 Sang V Q, 冯鹏, 米德伶, 等. 利用T矩阵模型计算水体中非球形悬浮颗粒物光散射特性[J]. 光谱学与光谱分析, 2015, 35(10): 2691–2696.
- [98] Zhang Su, Peng Jie, Zhan Juntong, et al. Research of the influence of non-spherical ellipsoid particle parameter variation on polarization characteristic of light [J]. *Acta Physica Sinica*, 2016, 65(6): 064205. (in Chinese) 张肃, 彭杰, 战俊彤, 等. 非球形椭球粒子参数变化对光偏振 特性的影响[J]. 物理学报, 2016, 65(6): 064205.
- [99] Yin Jinying, Zheng Yunong, Yang Hongyan, et al. Effect of relative humidity of atmospheric aerosol on radiation properties of soot aggregate [J]. *Acta Optica Sinica*, 2017, 37(5):

0529001. (in Chinese)

殷金英,郑宇浓,杨洪艳,等.大气气溶胶相对湿度影响碳黑团聚物辐射特性分析[J].光学学报,2017,37(5):0529001.

[100] Zheng Lijuan, Cheng Tianhai, Wu Yu. Effect of aggregated black carbon aging on infrared absorption and longWave radiative forcing [J]. *Acta Physica Sinica*, 2017, 66(16): 169201. (in Chinese)
郑利娟, 程天海, 吴俣. 黑碳团簇气溶胶混合生长的红外吸收

特性及长波辐射效应[J]. 物理学报, 2017, 66(16): 169201.

[101] Mi Li, Zhou Hongwei, Sun Zhiwei, et al. The use of T -matrix method for determining coagulation rate of colloidal particles in light scattering measurement [J]. *Acta Physica Sinica*, 2013, 62(13): 377–383. (in Chinese)
米利,周宏伟,孙祉伟,等. 光散射聚集速率测定中T矩阵方

本村, 周宏市, 弥霍市, 寻. 九散剂 乘渠逐半两定于1定件, 法的应用[J]. 物理学报, 2013, 62(13): 377−383.

- [102] Spurr R, Wang J, Zeng J, et al. Linearized T-matrix and Mie scattering computations [J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 2012, 113: 425–439.
- [103] Zhao Taifei, Leng Yuxin, Zhao Siting, et al. Research on ultraviolet scattering characteristics of haze particles [J]. *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 2018, 38(3): 837–843. (in Chinese)

赵太飞, 冷昱欣, 赵思婷, 等. 雾霾粒子的紫外光散射特性研 究[J]. 光谱学与光谱分析, 2018, 38(3): 837-843.

- [104] Yee K S. Numerical solution of initial boundary value problems involving Maxwell equations in isotropic media [J]. *IEEE Transactions on Antennas and Propagation*, 1966, 14(3): 302–307.
- [105] Sun W B, Loeb N G, Fu Q. Finite-difference time-domain solution of lightscattering and absorption by particles in an absorbing medium [J]. *Applied Optics*, 2002, 41(27): 5728–5743.
- [106] Wang Weijuan. Analysis of complex shape of nanoparticles

extinction properties using FDTD method[D]. Xi'an: Xidian University, 2014. (in Chinese)

王维娟.复杂形状纳米粒子消光特性的FDTD分析[D].西安: 西安电子科技大学,2014.

- [107] Liu Jianxiao, Zhang Junliang, Su Mingmin. Finite-difference time domain method for the analysis of radar scattering characteristic of metal target coated with anisotropic ferrite [J]. *Acta Physica Sinica*, 2014, 63(13): 137501. (in Chinese) 刘建晓, 张郡亮, 苏明敏. 基于时域有限差分法的各向异性铁 氧体圆柱电磁散射分析[J]. 物理学报, 2014, 63(13): 137501.
- [108] Zhang Xiaofeng, Zhou Wei. Analysis of Ag nanosphere and array's LSPR phenomena based on DDA and FDTD method
 [J]. *Chinese Medical Equipment Journal*, 2014, 35(5): 1-5. (in Chinese)
 张晓锋, 周伟. 基于DDA和FDTD算法的银纳米球及其阵列
 LSPR现象分析[J]. 医疗卫生装备, 2014, 35(5): 1-5.
- [109] Wang Shitong, Yang Yongying, Zhao Limin, et al. Numerical simulation research on scattering light imaging of surface defects of optical components [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2015, 42(7): 0708005. (in Chinese)
 王世通,杨甬英,赵丽敏,等. 光学元件表面缺陷散射光成像数值模拟研究[J]. 中国激光, 2015, 42(7): 0708005.
- [110] Yang Lixia, Li Lingling, Zhu Ting, et al. Terahertz electromagnetic characteristics of one-dimensional graphenephotonic crystal by FDTD method [J]. *Chinese Journal of Radio Science*, 2016, 31(2): 262–268. (in Chinese) 杨利霞, 李玲玲, 朱婷, 等. 基于石墨烯一维太赫兹光子晶体 电磁特性研究[J]. 电波科学学报, 2016, 31(2): 262–268.
- [111] Wan Dong, Wang Hao, Gao Lanmei, et al. Light scattering from cancer cells in different phases of cell cycle [J]. *Laser Journal*, 2019, 40(11): 25–28. (in Chinese) 宛栋, 王浩, 高兰妹, 等. 细胞周期不同时相的肿瘤细胞光散 射特性[J]. 激光杂志, 2019, 40(11): 25–28.