

随机取向内外混合凝聚粒子辐射特性

类成新¹,吴振森²,冯东太¹

- (1. 山东理工大学 理学院,山东 淄博 255049;
2. 西安电子科技大学 物理与光电工程学院,陕西 西安 710071)

摘要:采用离散偶极子近似方法对随机取向混合凝聚粒子在内外混合状态下的光学截面、单次散射反照率以及非对称因子等辐射特性参量进行了数值计算,详细讨论了混合方式、混合比等因素对混合凝聚粒子辐射特性的影响。研究表明,混合凝聚粒子的混合方式对非对称因子的影响非常大,对散射截面和单次散射反照率的影响比较大,但是对吸收和消光截面的影响不明显。随着凝聚粒子中基本粒子粒径和数量的增大,非对称因子、散射截面以及单次散射反照率受混合方式的影响变得愈加明显。此外,混合比的变化对不同混合状态下的凝聚粒子的辐射特性参量均存在不同程度的影响,并且此影响随着基本粒子粒径和数量的变化而显著变化。混合比相同情况下,所有外混合凝聚粒子的散射截面均大于内混合凝聚粒子的散射截面,而单次散射反照率却相应减小。

关键词:混合凝聚粒子; 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: P401; P422.3⁺1 **文献标志码:** A **文章编号:** 1007-2276(2013)10-2692-05

Radiative properties of internal/external mixture of agglomerates in random orientation

Lei Chengxin¹, Wu Zhensen², Feng Dongtai¹

- (1. School of Science, Shandong University of Technology, Zibo 255049, China;
2. Physics and Optoelectronic Engineering, School of Science, Xidian University, Xi'an 710071, China)

Abstract: The discrete dipole approximation method was used to compute the radiative characteristic parameters including the optical cross-sections, single-scattering albedo and asymmetrical parameter for a variety of mixed agglomerates in different mixing states at a visible wavelength 0.55 μm . It is shown that the influence of the mixing states on the asymmetrical parameter is very great, and that on the scattering cross section and single-scattering albedo is heavy, while that on the absorption and extinction cross sections is not obvious. The influence of mixing patterns on the asymmetrical parameter, scattering cross section and single-scattering albedo is becoming more obvious with the increase of the size of agglomerates. The mixture ratios has an obvious effect on the radiative characteristic quantities of agglomerates in internal and external mixing states, and the effect varies with the monomer diameters, and number of monomers in the agglomerates. The scattering cross-sections of external mixture of agglomerates are larger than those of their internally mixed counterparts, but the single-scattering albedo

收稿日期: 2013-02-08; 修订日期: 2013-03-10

基金项目: 国家自然科学基金(60771038, 61172031)

作者简介: 类成新(1976-), 男, 讲师, 硕士, 主要从事复杂目标激光散射特性方面的研究。Email: xdpostgraduate@163.com

decreases accordingly at the same mixture ratios.

Key words: mixed agglomerates; radiative properties; Bruggeman effective medium theory; discrete dipole approximation method

0 引言

气溶胶是指悬浮于大气中的颗粒,它可以来自陆地、海洋,可由自然因素如火山爆发、风对土壤的侵蚀等产生,也可由人类活动因素如工厂烟尘排放、核爆炸,火灾等过程产生。它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^[1]。由于气溶胶种类繁多,结构比较复杂,光学特性差异极大,且难测定其全球的分布,因此针对气溶胶凝聚粒子对气候变化辐射影响的研究非常少。

气溶胶的来源不同往往决定了其具有不同的化学组分,不同化学成分的气溶胶粒子具有不同的辐射特性。况且各种成分的气溶胶粒子由于大气湍流、布朗运动、风切变等因素使之必然发生混合^[2]。大气气溶胶一般由多种粒子混合而成,其混合状态主要包括:外混合和内混合两种状态。气溶胶的混合状态对其光学特性有重要影响,该研究对于利用气溶胶光学散射特性鉴别雾霾的科学研究以及卫星反演均具有重要意义。

目前,一些学者^[3-5]对内外混合气溶胶粒子的光学特性进行了研究,但他们均把气溶胶粒子看作单个均匀球或分层球形粒子来处理。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凝聚粒子,如果不考虑气溶胶粒子的实际结构,将其看作单个球形粒子来处理,在数值计算时可以大为简化,但计算结果与实际结果存在很大误差^[6]。为此,文中根据分形理论对随机取向混合凝聚粒子的空间结构采用蒙特卡罗方法进行仿真模拟,利用离散偶极子近似方法数值计算了内外两种混合方式下随机取向混合凝聚粒子的光学截面,单次散射反照率以及非对称因子等辐射特性参量,深入探讨了混合方式、混合比以及基本粒子粒径和数量对随机取向混合凝聚粒子辐射特性的影响规律。此研究为进一步深入研究多种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理论方法。

1 原理与方法

1.1 离散偶极子近似(DDA)方法

DDA 方法是由 Purcell 等^[7]于 1973 年提出,经过 Draine 等^[8]的进一步改进,逐步发展成为一种原则上可应用于任意形状及尺寸的粒子的吸收、散射及消光等光学性质进行计算的数值方法^[9]。DDA 方法的基本思想是:将连续散射物体近似为有限个可极化的点阵,每个点通过对局域电场(入射场以及其他点的辐射场)的响应获得偶极矩,散射体上所有点在远场的辐射总和构成散射场。若 $r_j(j=1, 2, \dots, N)$ 处的电场为 E_j (入射场 $E_{inc,j}$ 与其他 $N-1$ 个偶极子的散射场的总和),极化率为 α_j ,则该点的偶极矩 P_j 为:

$$P_j = \alpha_j E_j = \alpha_j (E_{inc,j} - \sum_{l \neq j} A_{jl} P_l) \quad (1)$$

系数 A_{jl} 为一个 3×3 矩阵:

$$A_{jl} = \frac{\exp(ikr_{jl})}{r_{jl}} \left[k^2 (r_{jl} r_{jl} - I_3) + \frac{ikr_{jl} - 1}{r_{jl}^2} (3r_{jl} r_{jl} - I_3) \right] \quad (2)$$

式中: $k=2\pi/\lambda$, λ 为入射波长; $r_{jl}=|r_j-r_l|$, $r_{jl}=(r_j-r_l)/r_{jl}$; I_3 为 3×3 单位矩阵。若定义 $A_{jj}=\alpha_j^{-1}$, 则偶极矩 P_j 满足 $3N$ 个复线性方程组:

$$\sum_{l=1}^N A_{jl} P_l = E_{inc,j} \quad (3)$$

由公式(3)可解出 P_l , 求得 P_l 后可以得到散射体的消光截面 C_{ext} , 吸收截面 C_{abs} , 散射截面 C_{sca} , 单次散射反照率 ω 以及非对称因子 g 分别为^[8]:

$$\begin{aligned} C_{ext} &= \frac{4\pi k}{|E_0|^2} \sum_{j=1}^N \text{Im}(E_{inc,j}^* \cdot P_j) \\ C_{abs} &= \frac{4\pi k}{|E_0|^2} \sum_{j=1}^N \left\{ \text{Im}[P_j \cdot (\alpha_j^{-1})^* P_j] - \frac{2}{3} k^3 |P_j|^2 \right\} \\ C_{sca} &= C_{ext} - C_{abs} \quad \omega = C_{sca} / C_{ext} \\ g &= \langle \cos \theta \rangle = \frac{k^3}{C_{sca} |E_0|^2} \int d\Omega n \cdot \\ & k \left| \sum_{j=1}^N [P_j - n(n \cdot P_j)] \exp(ikn \cdot r_j) \right|^2 \end{aligned} \quad (4)$$

大气中混合凝聚粒子中原始粒子的凝聚过程是

随机的,实际的凝聚粒子具有千变万化的结构,所反映出的辐射特性是所有形态的统计平均值。为此笔者将随机取向的混合凝聚粒子所处不同位置的所有方位角求其统计平均,从而得到辐射特性参量的统计平均值^[8]:

$$\langle Q \rangle = \frac{1}{8\pi^2} \int_0^{2\pi} \int_{-1}^1 \int_0^{2\pi} Q(\beta, \theta, \phi) d\beta d(\cos\theta) d\phi \quad (5)$$

式中: $\langle Q \rangle$ 为混合凝聚粒子各种取向的辐射参量的统计平均值; $Q(\beta, \theta, \phi)$ 为系统坐标中某特定取向的混合凝聚粒子辐射参量,其中 β, θ, ϕ 为空间方位角。

1.2 物理模型

文中物理模型是以 Cluster-Cluster Aggregation (CCA)模型^[10]为基础,采用蒙特卡罗方法进行模拟的具有分形结构的随机取向的凝聚粒子。该模型原始微粒数目与分形维数之间的关系 $N=k_f(R_g/d_p)^{D_f}$, D_f 为分形维数, k_f 为前向因子,两者都是常数,文中取值分别为 $D_f=1.8, k_f=5.8$ 。

随机取向凝聚粒子中基本粒子的混合方式主要有外混合和内混合两种。研究表明,内混合状态的气溶胶一般可以找到适合的等效折射率来计算其光学特性^[3]。因此,根据 Bruggeman 有效介质理论^[11]给出凝聚粒子中每个基本粒子的等效复折射率,然后利用离散偶极子近似方法计算混合凝聚粒子的辐射特性参量;而外混合状态的气溶胶粒子用等效折射率计算将产生较大的误差^[4]。因此,文中根据每个基本粒子实际的大小以及复折射率,采用离散偶极子近似方法研究外混合凝聚粒子的辐射特性。内混合凝聚粒子中黑碳的含量根据基本粒子中所占的比例得到,而外混合凝聚粒子中成份含量通过不同成份所占的基本粒子的个数得到。

基于分形理论采用蒙特卡洛方法所模拟的含有不同混合比的外混合凝聚粒子的空间结构如图 1 所示。

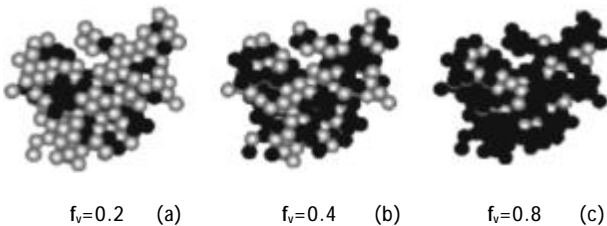


图 1 由 150 个基本粒子组成的外混合凝聚粒子的空间结构

Fig.1 Space structure of external mixed agglomerates with composed of 150 basic particales

2 结果与分析

图 2 给出入射波长 λ 为 $0.55 \mu\text{m}$ 情况下,不同类型随机取向混合凝聚粒子在内外混合方式下的辐射特性参量,即吸收 C_{abs} 、散射 C_{sca} 和消光截面 C_{ext} , 单次散射反照率 ω 以及非对称因子 g 随黑碳体积比变化规律。入射波长为 $0.55 \mu\text{m}$, 对应的黑碳和硅酸盐气溶胶粒子的复折射率分别为 $1.98+0.232 \text{ i}$ ^[12] 和 $1.717 \ 549+0.029 \ 4 \text{ i}$ ^[13]。凝聚粒子中基本粒子的数量 N 取 50、100、150, 粒径 dp 分别为 20 nm(图 2 左栏)和 40 nm(图 2 右栏)。由图 2 可以发现,内外混合方式下相同类型凝聚粒子的吸收截面和消光截面的值均非常接近,这说明混合方式对混合凝聚粒子的吸收、消光截面影响不明显。混合方式对混合凝聚粒子的散射截面和单次散射反照率的影响较明显,对非对称因子的影响非常显著,并且混合方式对这些辐射参量的影响随着凝聚粒子基本粒子的数量和粒子的增大而变得更加显著。说明混合凝聚粒子的尺度参数越大,混合方式对其辐射特性的影响愈明显。两种混合方式下,混合凝聚粒子的吸收、散射和消光截面均随着黑碳粒子体积比的增大而近似线性增加,原因是随着混合凝聚粒子中黑碳粒子体积比的增大,其等效复折射率逐渐增大。随着黑碳体积比的增加,混合凝聚粒子的吸收效应增强,内外混合方式下随机取向凝聚粒子的单次散射反射率均相应减小。混合方式对混合凝聚粒子的非对称因子的影响非常明显,随着黑碳体积比的增大,内混合凝聚粒子的非对称因子呈近似线性变化趋势,而外混合凝聚粒子的非对称因子先减小后增大。与内混合方式相比,外混合的非对称因子对黑碳体积比更加敏感。内混合凝聚粒子中每个基本粒子成分随着黑碳体积比的变化都是均匀变化,所反映出的凝聚粒子的散射特性变化较均匀,非对称因子变化较均匀;而对于外混合凝聚粒子,随着黑碳体积比的增大,基本粒子中黑碳粒子的数量增大,混合凝聚粒子的均匀性变化较大,基本粒子间的电磁作用变化起伏较大,因此造成外混合凝聚粒子的非对称因子对黑碳体积比变化较内混合凝聚粒子的显著。从图 2 还可以得到,在黑碳体积比为 0 和 1 情况下,两种混合方式下混合凝聚粒子均是由单一成分构成的,因此凝聚粒子的辐

射特性参量均相等;黑碳体积比相同情况下,所有外混合凝聚粒子的散射截面均大于内混合凝聚粒子的,对应的单次散射反照率相应减小。

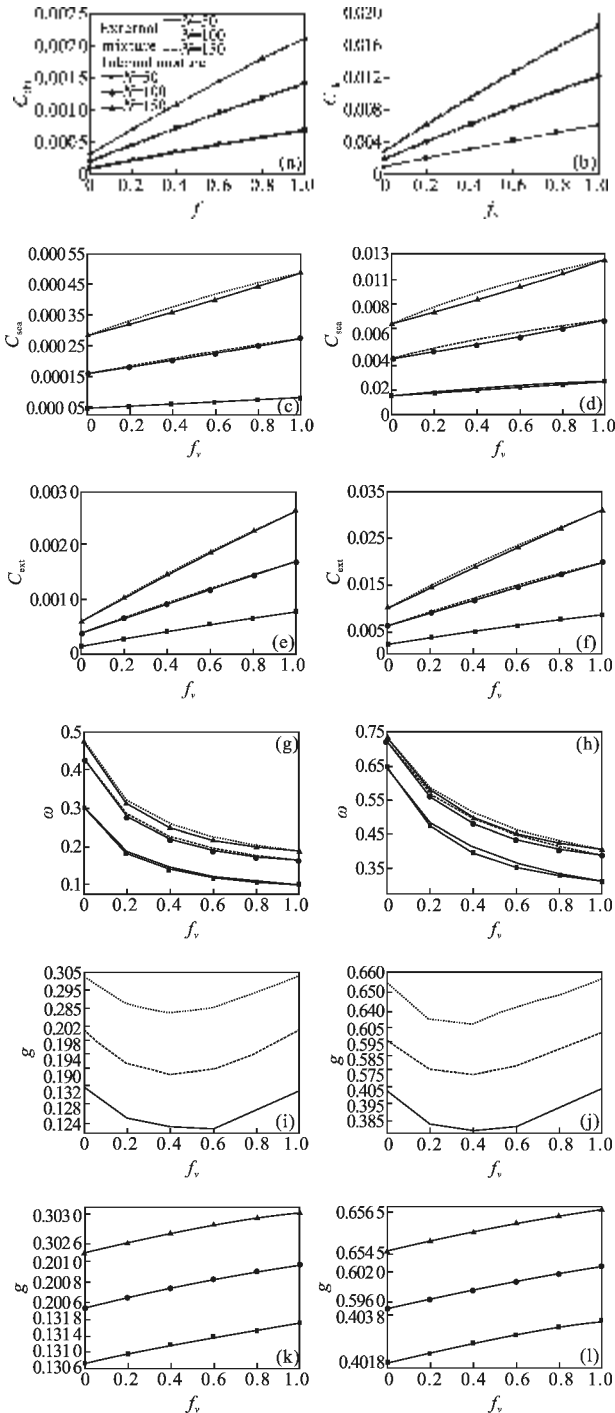


图 2 不同类型随机分布混合凝聚粒子辐射参量随黑碳体积比的变化曲线

Fig.2 Radiative characteristic quantities of randomly distributed agglomerates in internal and external mixing states vs different size parameters

3 结论

文中采用离散偶极子近似方法对随机取向混合凝聚粒子在内外混合状态下的光学截面(吸收、散射、消光截面)、单次散射反照率以及非对称因子等辐射特性参量进行了数值计算,深入探讨了混合方式、容积含量、基本粒子粒径以及数量对混合凝聚粒子辐射特性的影响。研究表明,混合凝聚粒子的混合方式对非对称因子的影响非常大,对散射截面和单次散射反照率的影响比较大,而对吸收和消光截面的影响不明显。随着凝聚粒子基本粒子的数量和粒径的增大,混合方式对非对称因子、散射截面以及单次散射反照率的影响愈加显著。随着黑碳粒子体积比的增大,内外混合方式下随机取向混合凝聚粒子的吸收、散射和消光截面均近似线性增加,单次散射反照率随之减小,而内混合凝聚粒子的非对称因子呈近似线性变化趋势,外混合凝聚粒子的非对称因子先减小后增大。黑碳体积比相同情况下,所有外混合凝聚粒子的散射截面均大于内混合凝聚粒子的散射截面,对应的单次散射反照率相应减小。通过文中研究结果可以反演随机取向凝聚粒子的组成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成分构成的具有复杂结构的气溶胶凝聚粒子的辐射特性以及对气候变化产生的影响提供了一种可行的计算方法。

参考文献:

[1] Haywood J M, Roberts D L, Slingo A, et al. General circulation model calculations of the direct radiative forcing by anthropogenic sulfate and fossil-fuel soot aerosol [J]. *J Clim*, 1997, 10(7): 1562-1577.

[2] Lesins G, Chylek P, Lohmann U. A study of internal and external mixing scenarios and its effect on aerosol optical properties and direct radiative forcing [J]. *Journal of Geophysical Research*, 2002, 107(D10): 4094-4105.

[3] Huang Honglian, Huang Yinbo, Rao Ruizhong. Equivalence of light scattering by strong absorbing aerosol particles in internal mixing state [J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2007, 19(7): 1066-1070. (in Chinese)

- 黄红莲, 黄印博, 饶瑞中. 内混合强吸收气溶胶粒子光散射的等效性[J]. 强激光与粒子束, 2007, 19(7): 1066-1070.
- [4] Rao Ruizhong. Equivalence of light scattering by external mixture of atmospheric aerosol particles [J]. Acta Optica Sinica, 1996, 16(8): 1099-1108. (in Chinese)
饶瑞中. 外混合气溶胶粒子光散射的等效性 [J]. 光学学报, 1996, 16(8): 1099-1108.
- [5] Xu bo, Huang Yinbo, Fan Chengyu, et al. Analysis of equivalent optical properties of heterogeneous aerosols in stratosphere [J]. Infrared and Laser Engineering, 2012, 41(6): 1587-1592. (in Chinese)
徐博, 黄印博, 范承玉, 等. 平流层非均匀气溶胶粒子等效光学特性的数值分析 [J]. 红外与激光工程, 2012, 41(6): 1587-1592.
- [6] Bazell D, Dwek E. The effects of compositional in homogeneities and fractal dimension on the optical properties of astrophysical dust[J]. Astrophysical Journal, 1990, 360(9): 142-150.
- [7] Purcell E M, Pennypacker C R. Scattering and absorption by non-spherical dielectric grains [J]. Astrophys J, 1973, 186: 705-714.
- [8] Draine B T. The discrete-dipole approximation and its application to interstellar graphite grains [J]. Astrophys J, 1988, 333: 848-872.
- [9] Liu Yafeng, Huang Chaojun, Lou Benzhuo. Numerical calculation of aerosol optical properties based on infrared band [J]. Infrared and Laser Engineering, 2012, 41(6): 1605-1609. (in Chinese)
刘亚锋, 黄朝军, 娄本浊. 红外波段气溶胶粒子光学特性的数值计算[J]. 红外与激光工程, 2012, 41(6): 1605-1609.
- [10] Jullien R, Botet R. Aggregation and Fractal Aggregates[M]. Singapore: World Scientific Publishing Co., 1987: 46-50.
- [11] Choy T C. Effective Medium Theory: Principles and Applications[M]. Oxford: Oxford University Press, 1999: 10.
- [12] 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.
- [13] Draine B T. Tabulated optical properties of graphite and silicate grains [J]. The Astrophysical Journal Supplement Series, 1985, 57: 587-594.

.....
(上接第 2686 页)

- [4] Wang Dongmei, Zhang Tao, Yan Feng. Research on range-gated Laser active illuminating technology [J]. Control and Automation Publication Group, 2006, 7(1): 48-50. (in Chinese)
王冬梅, 张涛, 闫丰. 基于距离选通的激光主动照明技术的研究[J]. 微计算机信息, 2006, 7(1): 48-50.
- [5] Dai Dede, Sun Huayan, Han Yi. Image quality assessment of laser active imaging system [J]. Laser and Infrared, 2009, 40(9): 986-990. (in Chinese)
戴得德, 孙华燕, 韩意, 等. 激光主动成像系统目标图像质量评价参数研究[J]. 激光与红外, 2009, 40(9): 986-990.
- [6] He Yue, Shen Xuanjing, Zeng Zheng. Effective noise reduction fuzzy C-means algorithm for image segmentation [J]. Computer Engineering and Applications, 2011, 47(29): 211-213. (in Chinese)
何月, 申铨京, 曾铮. 一种有效抑制噪声的模糊 C 均值图像分割算法[J]. 计算机工程与应用, 2011, 47(29): 211-213.
- [7] Alan Weechung Liew, Hong Yan. An adaptive spatial fuzzy clustering algorithm for 3-D MR image segmentation [J]. IEEE Transactions on Medical Imaging, 2003, 22(9): 1063-1075.
- [8] Meng Limin, Song Yuqing, Zhu Feng. Research on fuzzy C-means clustering algorithm based on spatial weighted and its application [J]. Application Research of Computers, 2010, 10: 3968-3970. (in Chinese)
孟丽敏, 宋余庆, 朱峰. 基于空间邻域加权的模糊 C_均值聚类及其应用研究[J]. 计算机应用研究, 2010, 10: 3968-3970.
- [9] Shan Lijie. Target extraction method based on sub-block feature [J]. Infrared and Laser Engineering, 2004, 33(6): 597-599. (in Chinese)
单丽杰. 基于子图像特征的目标提取方法[J]. 红外与激光工程, 2004, 33(6): 597-599.
- [10] Wang Haiyang, Pan Delu, Xia Deshen. A fast algorithm for two-dimensional Otsu adaptive threshold algorithm [J]. Acta Automatica Sinica, 2007, 33(9): 101-106. (in Chinese)
汪海洋, 潘德炉, 夏德深. 二维 Otsu 自适应阈值选取算法的快速实现[J]. 自动化学报, 2007, 33(9): 101-106.
- [11] Otsu N. A threshold selection method from gray-level histograms [J]. IEEE Transactions on Systems, Man and Cybernetics, 1979, 9(1):62-66.
- [12] Richard L. Espinola, Ove Steinvall, Magnus Elmquist. Modeling of 1.5 μm range gated imaging for small surface vessel identification[C]//SPIE, 2010, 7835.