

# 随机分布烟尘团簇粒子辐射特性研究\*

类成新<sup>1)†</sup> 吴振森<sup>2)</sup>

1) (山东理工大学理学院, 淄博 255049)

2) (西安电子科技大学理学院, 西安 710071)

(2009 年 10 月 22 日收到; 2009 年 12 月 21 日收到修改稿)

基于分形理论, 采用蒙特卡罗方法对随机分布的烟尘团簇粒子结构进行了仿真模拟, 利用离散偶极子近似 (discrete dipole approximation, DDA) 方法研究了随机分布的烟尘团簇粒子的辐射特性, 分析讨论了分形维数、原始微粒粒径和数量以及复折射率对随机分布烟尘团簇粒子辐射特性的影响. 研究表明, 在给定分形维数的情况下, 烟尘团簇粒子的辐射特性取决于原始微粒粒径、数量及复折射率; 原始微粒较小的团簇粒子, 当分形维数较小时, 吸收截面变化不明显, 但当分形维数大于 2 时, 吸收截面骤然增大, 然而, 对于具有比较大的原始微粒粒径、数量及复折射率的烟尘团簇粒子, 吸收截面随着分形维数的增大而单调递减; 随着分形维数的增大, 团簇粒子的散射截面、消光截面及单次散射反照率均单调递增; 从整体上来讲, 团簇粒子的辐射特性与等效球形粒子的辐射特性存在着比较大的差别, 并且这种差别随着分形维数的增大而减小. 该工作对研究气溶胶粒子的辐射及气候效应具有重要的科学价值.

**关键词:** 烟尘团簇粒子, 辐射特性, 离散偶极子近似方法

**PACC:** 7220D, 7820

## 1. 引 言

烟尘团簇粒子是燃料不充分燃烧或者燃烧生成的气体状污染物和粉尘混合体组成的凝聚粒子, 是烟和各种悬浮粒子的总称, 主要含有烟、碳黑、灰分以及浮游物质等成分. 烟尘粒子是大气气溶胶的重要组成部分, 主要分布在对流层, 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<sup>[1]</sup>. 气溶胶作为影响气候变化的一个重要因子, 已经引起了全世界科学界的普遍重视<sup>[2,3]</sup>. 然而由于烟尘团簇粒子结构比较复杂, 光学特性差异比较大, 因此, 针对烟尘粒子对气候变化的辐射影响的研究非常少. 为此, 本文首先根据团簇-团簇凝聚 (CCA) 模型的分形理论采用蒙特卡罗方法对随机分布的烟尘团簇粒子结构进行了仿真模拟, 然后利用离散偶极子近似 (DDA) 方法计算了所模拟的团簇粒子的衰减、吸收、散射截面、单次散射反照率、不对称因子等辐射特性参数, 给出了不

同复折射率情况下不同原始微粒粒径和数量组成的随机分布团簇粒子的辐射特性参数随其分形维数变化结果, 为进一步研究大气气溶胶对气候变化影响提供了理论依据.

## 2. 基本原理

### 2.1. 离散偶极子近似方法

离散偶极子近似方法是一种计算任意形状几何体的电磁波散射和吸收的灵活而有力的工具, 由 Purcell 和 Pennypacker<sup>[4]</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光散射特性<sup>[5,6]</sup>. 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的总和构成散射场. 若将散射体离散为  $N$  个点, 每个点的极化率为  $\alpha_j$ , 坐标为  $\mathbf{r}_j$ , 所处的电场为  $\mathbf{E}_j$ , 则该点的偶

\* 国家自然科学基金 (批准号: 60371020) 资助的课题.

† E-mail: chengxinlei@yahoo.com.cn

极矩  $\mathbf{P}_j$  为

$$\mathbf{P}_j = \alpha_j \mathbf{E}_j = \alpha_j (\mathbf{E}_{inc,j} - \sum_{l \neq j} \mathbf{A}_{jl} \mathbf{P}_l), \quad (1)$$

式中  $\mathbf{E}_j$  是入射场  $\mathbf{E}_{inc,j}$  与其他  $N-1$  个偶极子的散射场的总和, 系数  $\mathbf{A}_{jl}$  为一个  $3 \times 3$  矩阵

$$\mathbf{A}_{jl} = \frac{\exp(ikr_{jl})}{r_{jl}} \left[ k^2 (\mathbf{r}_{jl} \mathbf{r}_{jl} - \mathbf{I}_3) + \frac{ikr_{jl} - 1}{r_{jl}^2} (3\mathbf{r}_{jl} \mathbf{r}_{jl} - \mathbf{I}_3) \right], \quad (2)$$

式中,  $k = 2\pi/\lambda$ ,  $\lambda$  为入射波长;  $r_{jl} = |\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_l|$ ,  $\mathbf{r}_{jl} = (\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_l)/r_{jl}$ ,  $\mathbf{I}_3$  为  $3 \times 3$  单位矩阵.

若定义  $\mathbf{A}_{jj} \equiv \alpha_j^{-1}$ , 则偶极矩  $\mathbf{P}_j$  满足  $3N$  个复线性方程组

$$\sum_{l=1}^N \mathbf{A}_{jl} \mathbf{P}_l = \mathbf{E}_{inc,j}, \quad (3)$$

由(3)式可解出  $\mathbf{P}_l$ , 解出  $\mathbf{P}_l$  后即可得到烟尘团簇粒子的辐射特性参数<sup>[5]</sup>

$$C_{ext} = \frac{4\pi k}{|E_0|^2} \sum_{j=1}^N \text{Im}(\mathbf{E}_{inc,j}^* \cdot \mathbf{P}_j),$$

$$C_{abs} = \frac{4\pi k}{|E_0|^2} \sum_{j=1}^N \left\{ \text{Im}[\mathbf{P}_j \cdot (\alpha_j^{-1})^* \mathbf{P}_j^*] - \frac{2}{3} k^3 |\mathbf{P}_j|^2 \right\},$$

$$C_{sca} = C_{ext} - C_{abs},$$

$$\omega = C_{sca}/C_{ext},$$

$$g = \langle \cos\theta \rangle$$

$$= \frac{k^3}{C_{sca} |E_0|^2} \int d\Omega \mathbf{n} \cdot \mathbf{k}$$

$$\times \left| \sum_{j=1}^N [\mathbf{P}_j - \mathbf{n}(\mathbf{n} \cdot \mathbf{P}_j)] \exp(-ik\mathbf{n} \cdot \mathbf{r}_j) \right|^2. \quad (4)$$

## 2.2. 计算物理模型

烟尘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, 因此形成的烟尘团簇粒子具有十分复杂的分形结构<sup>[7]</sup>, 其结构可以用下式表示<sup>[8]</sup>:

$$N = k_f \left( \frac{R_g}{2a} \right)^{D_f}. \quad (5)$$

式中,  $N$  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,  $a$  为原始微粒半径,  $R_g$  为团簇粒子的平均回转半径. 团簇粒子的外观形貌由分形维数  $D_f$  与分形因子  $k_f$  这两个参数进行描述, 相对而言,  $D_f$  的影响较大,  $k_f$  的影响较小<sup>[9]</sup>, 因此, 本文固定分形因子的取值  $k_f = 5.8$ , 然后讨论  $D_f$  对不同原始微粒粒径及数量组成的团簇粒子分形结构以及辐射特性的影响. 当然对于同一分形维数, 可对应无限多个不同外观形貌的团簇粒子. 按理说在计算团簇粒子辐射特性时, 应该考虑对所有不同形貌团簇粒子计算结果的平均值. Liu 等<sup>[10]</sup> 研究表明如果计算所用的团簇粒子是基于 Cluster-Cluster Aggregation (CCA) 模型<sup>[8]</sup>, 在给定分形因子和分形维数情况下, 由原始微粒随机凝聚而成的, 那么所模拟出的团簇粒子的形貌具有随机性, 用该模型所计算出的团簇粒子的辐射特性足够能够体现其他所有不同形貌的烟尘团簇粒子的辐射特性. 这样在计算团簇粒子辐射特性时, 对于相同分形维数的团簇粒子, 我们只对其中的一种形貌进行了研究. 以 CCA 模型为基础, 采用蒙特卡罗方法随机模拟出的由相同原始微粒数量 ( $N = 100$ ) 组成的具有不同分形维数的烟尘团簇粒子结构模拟结果如图 1 所示. 由图 1 可以明显看出, 分形维数  $D_f$  值愈大, 团簇粒子的致密性就愈强, 整体上就愈接近于球形粒子.

大气中的烟尘团簇粒子空间取向是随机的, 其

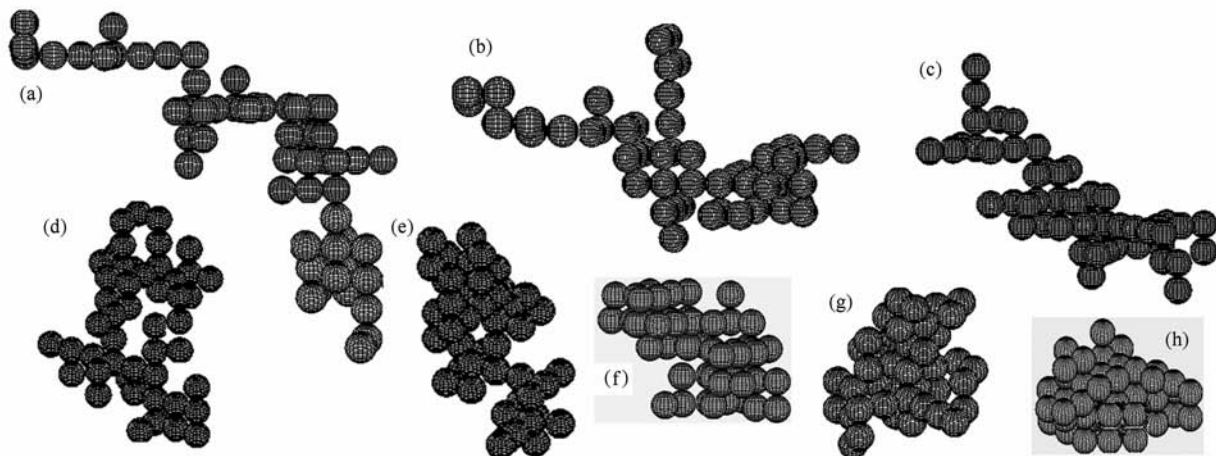


图 1 包含 100 个原始微粒且具有不同分形维数的烟尘团簇粒子 (a)–(h)  $D_f = 1.25, 1.5, 1.75, 2, 2.25, 2.5, 2.75, 3$

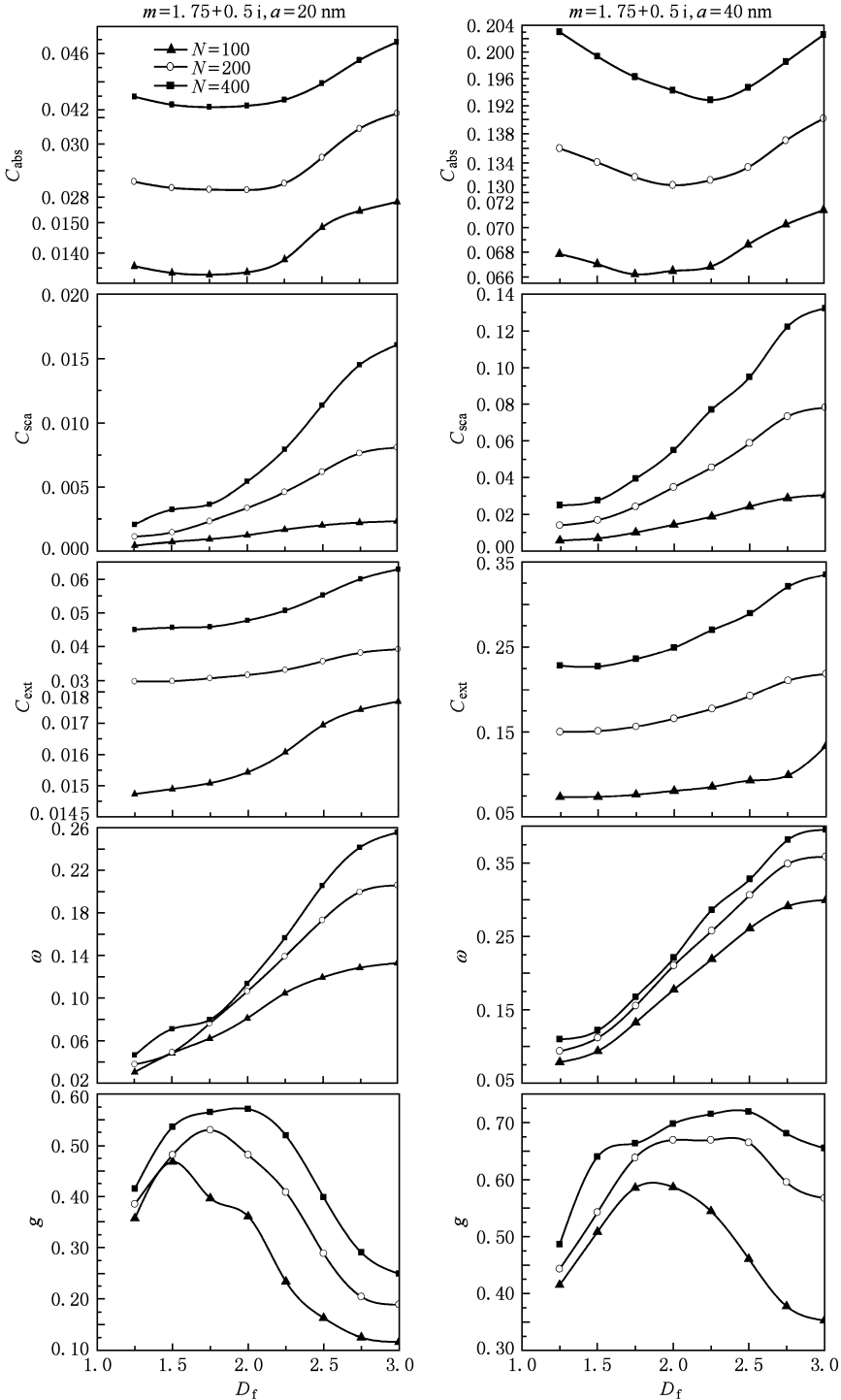
辐射特性参数采用以下公式进行计算<sup>[5,11]</sup>：

$$\langle C \rangle = \frac{1}{8\pi^2} \int_0^{2\pi} \int_{-1}^1 \int_0^{2\pi} C(\beta, \theta, \Phi) d\beta d(\cos\theta) d\Phi, \quad (6)$$

式中,  $\langle C \rangle$  为烟尘团簇粒子某辐射特性参数的统计平均值;  $C(\beta, \theta, \Phi)$  为系统坐标中某特定取向时烟尘团簇粒子的辐射特性参数值, 其中  $\beta, \theta, \Phi$  为空间方位角.

### 3. 结果与分析

计算中烟尘团簇粒子的原始微粒半径  $a$  分别取为 20, 40 nm; 数量  $N$  分别取为 100, 200, 400; 为了衡量复折射率对随机分布烟尘团簇粒子辐射特性的影响, 取烟尘团簇粒子的复折射率为  $m = 1.75 + 0.5i$ <sup>[12]</sup>,  $2 + i$ <sup>[13]</sup>, 入射波长均为 0.628  $\mu\text{m}$ . 图 2 示



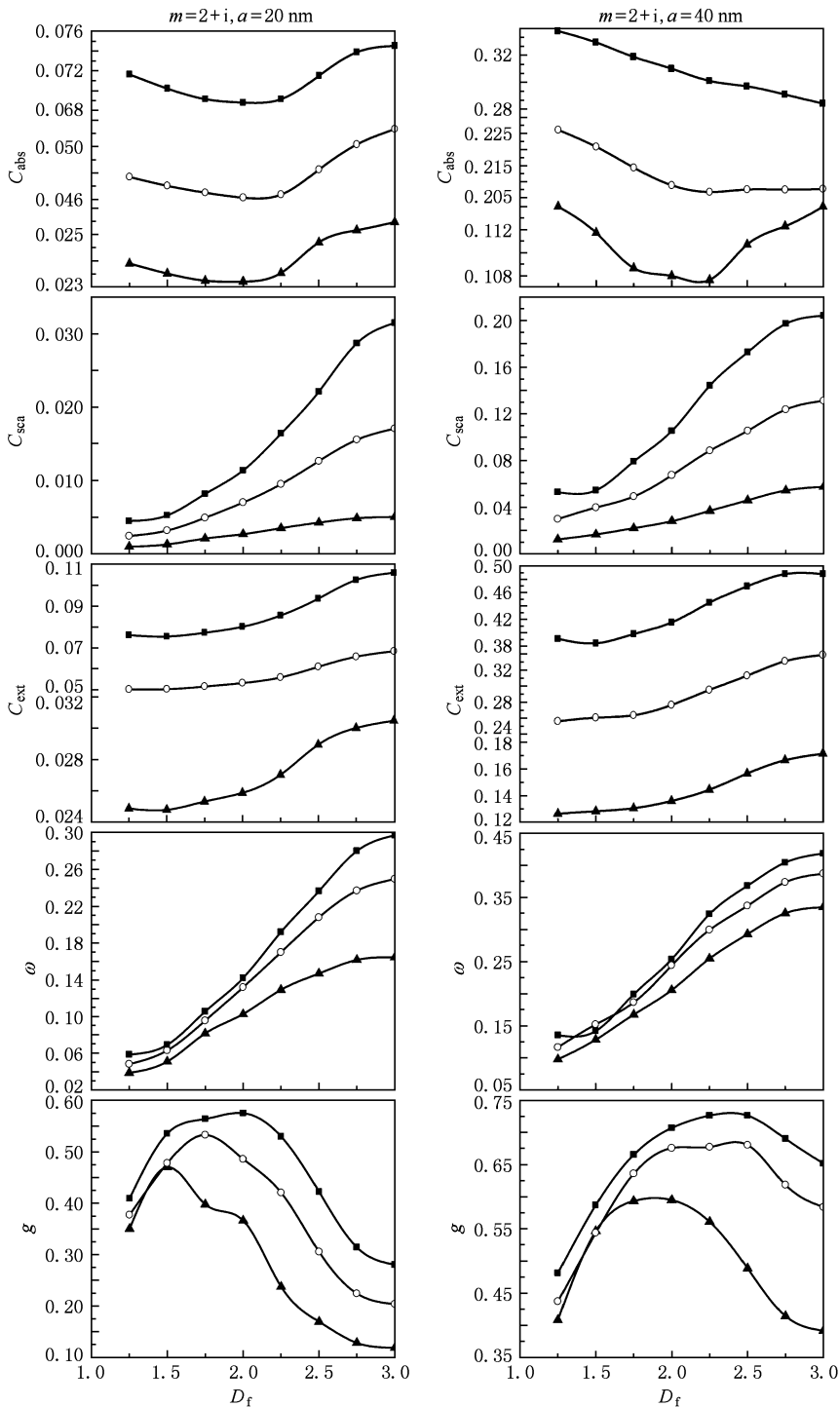


图2 不同烟尘团簇粒子的辐射特性参数随其分形维数变化曲线

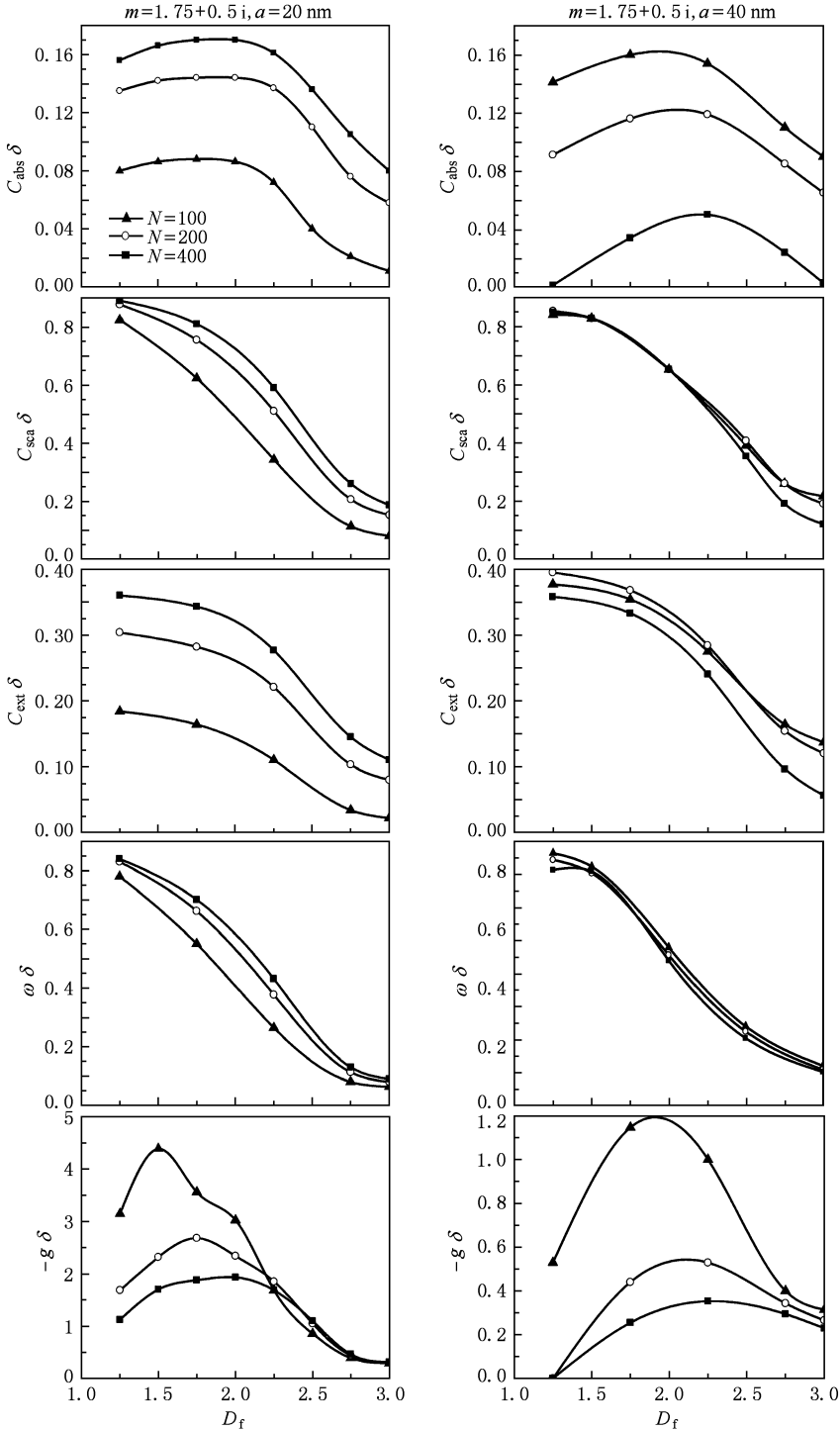
出不同随机分布烟尘团簇粒子的辐射特性参数随其分形维数变化规律。

由图2知,对于原始微粒半径较小( $a = 20 \text{ nm}$ )的团簇粒子,当分形维数 $D_f < 2$ 时,吸收截面 $C_{\text{abs}}$ 变化不明显,但当 $D_f > 2$ 时, $C_{\text{abs}}$ 随 $D_f$ 的增大而迅速增大.原因在于 $D_f < 2$ 时,团簇粒子呈现链状(如图1

(a)–(c)),原始微粒间的距离比较大,相互间的电磁作用比较弱,随着 $D_f$ 的增大,团簇粒子的致密性增加,原始微粒相互间的电磁作用逐渐加强.当 $a$ 较大,复折射率较小(如 $a = 40 \text{ nm}$ ,  $m = 1.75 + 0.5i$ )时, $C_{\text{abs}}$ 随 $D_f$ 的增大先减小,不同团簇粒子的 $C_{\text{abs}}$ 最小值几乎均在 $D_f = 2$ 处取得,此后 $C_{\text{abs}}$ 随 $D_f$ 的增大

而急剧增大. 造成  $C_{\text{abs}}$  减小的原因在于,  $D_f$  较小时, 原始微粒相互间的电磁作用相对较弱, 原始微粒主要对入射电磁波进行吸收而对原始微粒间的多重散射波吸收较少, 随着  $D_f$  的增大, 团簇粒子变得较致密, 直接吸收电磁波能量的原始微粒数量减少, 从而造成团簇粒子的  $C_{\text{abs}}$  变小. 另外, 对于  $a, N$  以及复折射率均比较大的团簇粒子 (如  $a = 40 \text{ nm}$ ,  $N = 200$  或  $400$ ,  $m = 2 + i$ ), 其吸收截面  $C_{\text{abs}}$  随  $D_f$  的增大

而单调递减, 笔者认为造成此结果的原因可能是, 团簇粒子外层的原始微粒遮挡住了内层粒子, 直接影响内层粒子对电磁波的吸收. 另外随着  $D_f$  的增大, 不同烟尘团簇粒子的散射截面  $C_{\text{abs}}$ 、消光截面  $C_{\text{ext}}$ 、单次散射反照率  $\omega$  均单调递增. 随着  $D_f$  的增大, 团簇粒子越来越接近球体, 其致密性增强, 原始微粒相互间的多重散射逐渐加强, 从而造成团簇粒子的散射截面逐渐增大, 同时促使其消光截面和



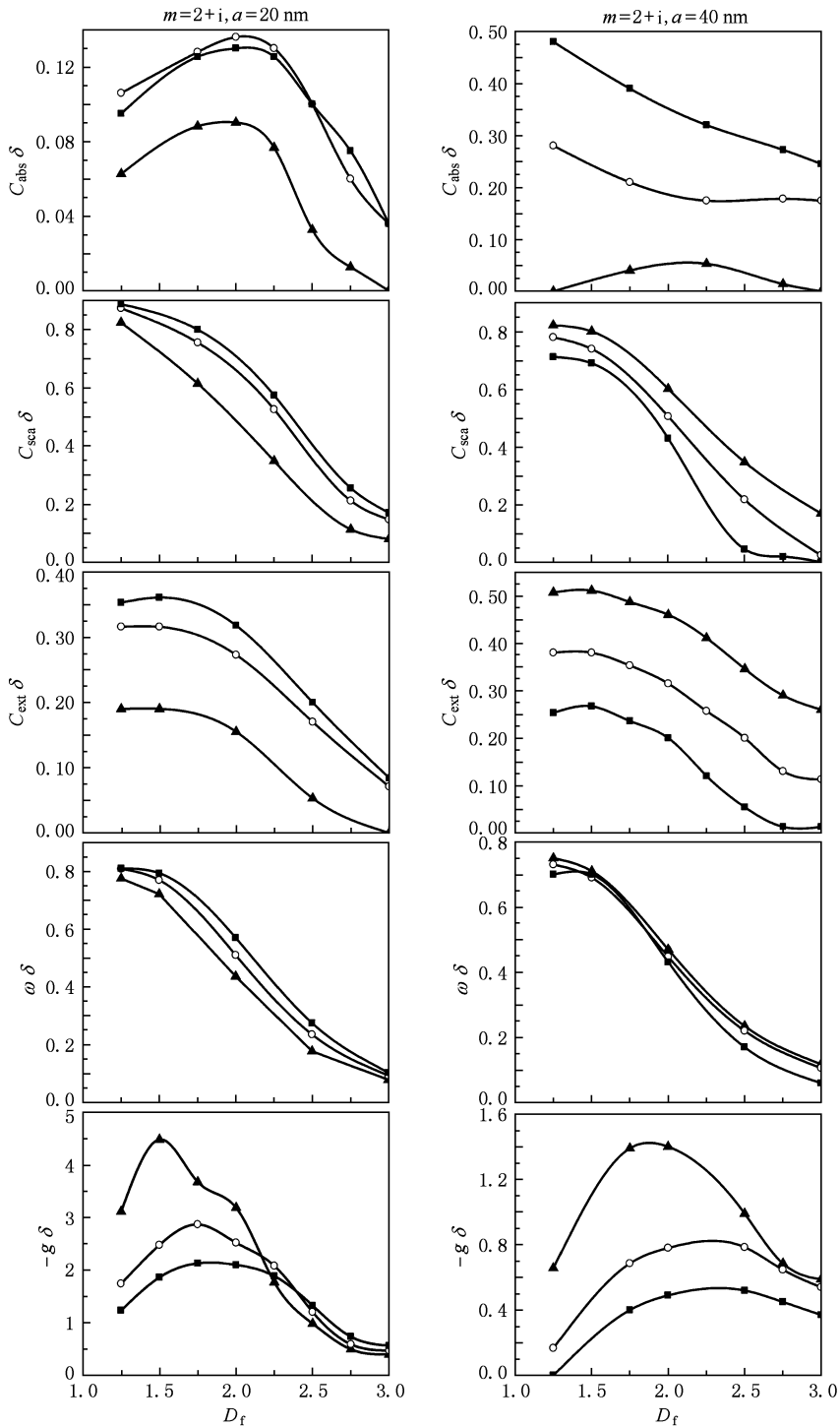


图3 烟尘团簇粒子与等效球形粒子的辐射特性参数相对偏差随分形维数变化曲线

单次散射反照率均相应增加. 不同烟尘团簇粒子的不对称因子  $g$  均随着  $D_f$  的增大先增大后减小, 这是因为随着  $D_f$  的增大, 团簇粒子接近球体, 前向散射和后向散射趋于对称. 另外, 图 2 还反映, 团簇粒子的不对称因子取决于粒子的大小和形态结构, 而与其复折率关系不大; 在给定  $D_f$  的情况下, 团簇粒

子的辐射特性取决于原始微粒粒径、数量以及粒子的复折率.

从图 1 得知, 随着分形维数  $D_f$  的增大, 团簇粒子的形态逐渐接近于球体. 在研究团簇粒子辐射时人们往往用球形粒子来替代, 这样势必会带来误差. 为表明团簇粒子分形维数、原始微粒粒径及数量变化

时,烟尘团簇粒子与其等效球形粒子(等体积球形粒子)的辐射特性的差别,特引入参数相对偏差

$$\delta = (C_1 - C_2)/C_1. \quad (7)$$

其中,脚标 1 和 2 分别表示等效球形粒子与烟尘团簇粒子的辐射特性, $C$  表示某辐射特性参数.团簇粒子与等效球形粒子的辐射特性参数相对偏差随分形维数变化规律如图 3 所示.从图 3 可发现,不同团簇粒子的散射截面、消光截面以及单次散射反照率与用等效球形粒子的相对偏差  $\delta$  均随着  $D_f$  的增大而明显减小,并且原始微粒较小时(如  $a = 20 \text{ nm}$ ),上述三者的  $\delta$  随  $D_f$  变化规律大致相同.由于团簇粒子的吸收特性随分形维数的变化规律相对较复杂(如图 2 所示),因此,随着  $D_f$  的增大,团簇粒子与等效球形粒子的吸收截面的相对偏差  $\delta$  的变化趋势并非一成不变.对于原始微粒较小的弱吸收团簇粒子(如  $m = 1.75 + 0.5i, a = 20 \text{ nm}$ ), $\delta$  值开始变化不大,当  $D_f > 2$  时, $\delta$  值迅速减小;对于原始微粒较小的强吸收或者原始微粒较大的弱吸收团簇粒子( $a = 20 \text{ nm}, m = 2 + i$  或者  $a = 40 \text{ nm}, m = 1.75 + 0.5i$ ), $\delta$  值均随着  $D_f$  的增大而先增大后减小,并且强吸收团簇粒子的变化趋势较明显.另外,对于  $a, N$  以及复折射率均比较大的团簇粒子(如  $a = 40 \text{ nm}, N = 200$  或  $400, m = 2 + i$ ),其吸收截面与等效球形粒子的相对偏差  $\delta$  随  $D_f$  的增大而呈现递减趋势.团簇粒子的不对称因子均大于等效球形粒子的不对称因子,这是由于团簇粒子表面的粗糙度造成的.团簇粒子与等效球形粒子的不对称因子的相对偏差  $\delta$  均随着  $D_f$  的增大而先增大后减小,并且  $\delta$  的变化规律仅取决于团簇粒子的大小和形态结构,而与其复折射率关系不大.图 3 还反映出,在给定分形维数  $D_f$  的情况下,团簇粒子的辐射特性与等效球形粒子的辐射特性的差距受原始微粒粒径、数量以及粒子的复折射率的影响.总之,团簇粒子的辐射特性与等效球形粒子的辐射特性存在着比较大的差别,并且这种差别随着分形维数的增大而减小.

#### 4. 结 论

气溶胶对地气系统的能量平衡有不可低估的

影响,由于部分烟尘气溶胶粒子是人类活动造成的,可以预测随着人类活动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数化是一个很复杂的问题.本文利用离散偶极子近似方法研究了由蒙特卡罗方法模拟的具有不同分形维数随机分布的烟尘团簇粒子的辐射特性,给出了不同复折射率情况下不同原始微粒粒径及数量组成的随机分布的烟尘团簇粒子的辐射特性参数与其分形维数的数值关系.研究结果表明,团簇粒子分形维数的变化对其辐射特性影响非常大;即使对于原始微粒间距比较大(分形维数比较小)的链状团簇粒子,其中原始微粒相互间的多重散射对团簇粒子的辐射特性影响比较大,并且随着分形维数的增大,原始微粒间的多重散射随之增强;吸收截面随分形维数的变化规律受原始微粒粒径、数量以及复折射率的影响比较大,相比较而言,它们之间的关系较复杂;不对称因子仅仅取决于粒子的大小和形态结构,而与复折射率关系不大;在给定分形维数的情况下,团簇粒子的辐射特性取决于原始微粒粒径、数量以及粒子的复折射率.

另外,团簇粒子的辐射特性与等效球形粒子的值差别比较大,从整体上来讲,两者之间的差别随着团簇粒子分形维数的增大而相应减小.因此,我们在研究烟尘气溶胶对气候变化产生的影响时,必须考虑烟尘气溶胶粒子的复杂结构,不能一味地用等效球形粒子来等效具有分形结构的团簇粒子.受计算量的限制,我们只研究了原始微粒粒径均匀分布的情况下,团簇粒子分形维数对其辐射特性的影响.进一步深入研究随机分布团簇粒子的辐射特性还需考虑微粒粒径随机分布的情况,本文研究为进一步深入地研究大气气溶胶粒子的辐射特性以及对气候变化产生的影响提供了一种行之有效的理论方法.

感谢美国普林斯顿大学的 B. T. Draine 教授给本文作者提供的 DDA 程序.

- [1] Haywood J M, Roberts D L, Slingo A, Edwards J M, Shine K P 1997 *J. Climate* **10** 1562
- [2] Schult I, Cooke W F, Feichter J 1997 *Journal of Geophysical Research* **102** 107
- [3] Menon S, Hansen J, Nazarenko L, Luo Y F 2002 *Science* **297** 2250
- [4] Purcell E M, Pennypacker C R 1973 *Astrophys. J.* **186** 705
- [5] Draine B T 1988 *Astrophys. J.* **333** 848
- [6] Draine B T, Flatau P J 1994 *Journal of the Optical Society of America A* **11** 1491
- [7] Dobbins R A, Megaridis C M 1987 *Langmuir* **3** 254
- [8] Jullien R, Botet R 1987 *Aggregation and Fractal Aggregates* (Singapore: World Scientific Publishing) p46
- [9] Mulholland G W, Bohren C F, Fuller K A 1994 *Langmuir* **10** 2533
- [10] Liu L, Mishchenko M I 2007 *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* **106** 262
- [11] Lei C X, Zhang H F, Liu H F 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 7168 (in Chinese) [类成新、张化福、刘汉法 2009 物理学报 **58** 7168]
- [12] d'Almeida G A, Koepke P, Shettle E P 1991 *Atmospheric Aerosols: Global Climatology and Radiative Characteristics* (Virginia: Hampton A Deepak) p291
- [13] Fuller K A, Malm W C, Kreidenweis S M 1999 *J. Geophys. Res.* **104** 15941

## A study of radiative properties of randomly distributed soot aggregates \*

Lei Cheng-Xin<sup>1)†</sup> Wu Zhen-Sen<sup>2)</sup>

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

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

(Received 22 October 2009; revised manuscript received 21 December 2009)

### Abstract

Based on fractal theory, the Monte Carlo method is used to simulate the structures of fractal soot aggregates in random distribution. The radiative properties of randomly distributed soot aggregates are studied using the discrete dipole approximation (DDA), and the effects of the fractal dimension, the monomer diameters, the number of monomers in the soot aggregates and the refractive index on the radiative properties of aggregated soot particles are analyzed. The results show that the radiative properties of randomly distributed soot aggregates of a given fractal dimension are complex functions of the monomer diameters, the number of monomers in the aggregates, and the refractive index. For small values of the monomer diameters, the absorption cross section of soot aggregates tends to be relatively constant when the fractal dimension is small, but increases rapidly when the fractal dimension exceeds two. However, a monotonical reduction in light absorption with the increase of the fractal dimension is observed for soot aggregates with sufficiently large monomer diameters, number of monomers, and refractive index. The scattering cross section, extinction cross section and single-scattering albedo increase monotonically with the increase of the fractal dimension. In a word, the results for soot aggregates differ profoundly from those calculated for the equivalent spherical particles, and the discrepancies between them change little with the increase of the fractal dimension. This research is of scientific value in studying the radiative properties of aerosols and their climatic effects.

**Keywords:** soot aggregates, radiative properties, discrete dipole approximation method

**PACC:** 7220D, 7820

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 60371020).

† E-mail: chengxinlei@yahoo.com.cn