

掺杂对随机分布团簇粒子缪勒矩阵的影响*

类成新^{1)†} 冯东太¹⁾ 吴振森²⁾

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)

(2010年10月18日收到; 2011年3月7日收到修改稿)

文章分析了不同含量的杂质对随机分布团簇粒子缪勒矩阵的影响. 利用 Bruggeman 有效介质理论得到了含有不同体积份额杂质的硅酸盐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分布团簇粒子的缪勒矩阵进行了数值计算, 给出了各个缪勒矩阵元素的散射角分布曲线, 探讨了不同含量的杂质对随机分布团簇粒子缪勒矩阵的影响. 研究表明, 掺杂对随机分布团簇粒子的缪勒矩阵存在着不同程度的影响, 并且此影响随着粒子尺度参数的变化而显著变化.

关键词: 团簇粒子, 缪勒矩阵, Bruggeman 有效介质理论, 离散偶极子近似方法

PACS: 52. 25. Tx, 42. 25. Ja, 47. 53.+ n, 87. 64, Cc

1. 引言

团簇粒子的散射特性是近年来研究的一个重要方向, 随着军事的高科技化、人们对于环境保护的越来越重视、生物医学的发展以及通信、遥感、雷达目标识别技术的发展, 团簇粒子散射特性的研究不断地被推向新的阶段. 对随机分布的团簇粒子散射特性、形成机理以及形态特性的研究, 可以达到人为的利用其有利方面, 控制、监测其不利方面的目的. 同时, 对大气团簇粒子和对尘埃粒子散射特性的研究^[1], 对认识人类赖以生存的大气环境和星际空间起到促进作用. 目前对团簇粒子散射特性的研究主要集中在单一材料组成的团簇粒子, 而实际上, 大气当中的气溶胶粒子是多种化学成分组成的混合粒子. 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^[2-5], 而团簇粒子的化学成分对其散射特性的影响, 目前未见报道. 为此, 本文从 Bruggeman 有效介质理论出发, 得到含有不同体积份额杂质的硅酸盐粒子的等效复折射率, 然后利用离散偶极子近似方法^[6-8]数值计算了含有不同体积份额杂质的随机分布团簇粒子的缪勒矩阵, 深

入探讨了掺杂对随机分布团簇粒子缪勒矩阵的影响规律.

2. 基本理论

2.1. Bruggemann 理论

Bruggemann^[9]于1936年提出的称为聚集势近似(coherent potential approximation)模型, 习惯上称 Br 理论或有效介质理论(EMT). 该理论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体适用, 而且考虑了内含物之间的相互作用, 并且更适合处理两种颗粒很小的材料随机分布相互混合, 形成聚集结构的复合材料的介电常数. Bruggemann 采用平均场理论, 导出了考虑相互作用的二相复合体系的有效复介电常数的关系式, 即

$$f \frac{\varepsilon_1 - \varepsilon}{\varepsilon_1 + 2\varepsilon} + (1 - f) \frac{\varepsilon_2 - \varepsilon}{\varepsilon_2 + 2\varepsilon} = 0, \quad (1)$$

化简为

$$\varepsilon = \frac{1}{4} \{ \varepsilon_2 + (3f - 1)(\varepsilon_1 - \varepsilon_2) \pm \{ [(3f - 1) \times (\varepsilon_1 - \varepsilon_2) + \varepsilon_2]^2 + 8\varepsilon_1\varepsilon_2 \}^{1/2} \}. \quad (2)$$

* 国家自然科学基金(批准号:60771038)资助的课题.

† E-mail: xdpostgraduate@163.com

式中, f 是材料 1 所占的体积份额, ε_1 和 ε_2 分别是材料 1 和材料 2 的介电常数, ε 为复合材料的有效复介电常数. 在光频范围内, 复合体系的复折射率 $m = n + ik$ 与对应的有效介电常数 $\varepsilon = \varepsilon' + i\varepsilon''$ 的关系为

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

其中 ε' , ε'' 分别为复介电常数的实部和虚部. 求出 ε 后, 由(3)式分离出实部 ε' 和虚部 ε'' , 可以获得复合体系的复折射率实部与虚部, 即

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

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

文中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^[10] 分别为 $1.98 + 0.2321i$, $2.045 + 0.2346i$, 硅酸盐粒子的复折射率^[11] 分别为 $1.717549 + 0.0294i$, $1.714652 + 0.0303i$, 对应的复合粒子的复折射率由(2), (4), (5)式求出, 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 所示. 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减小.

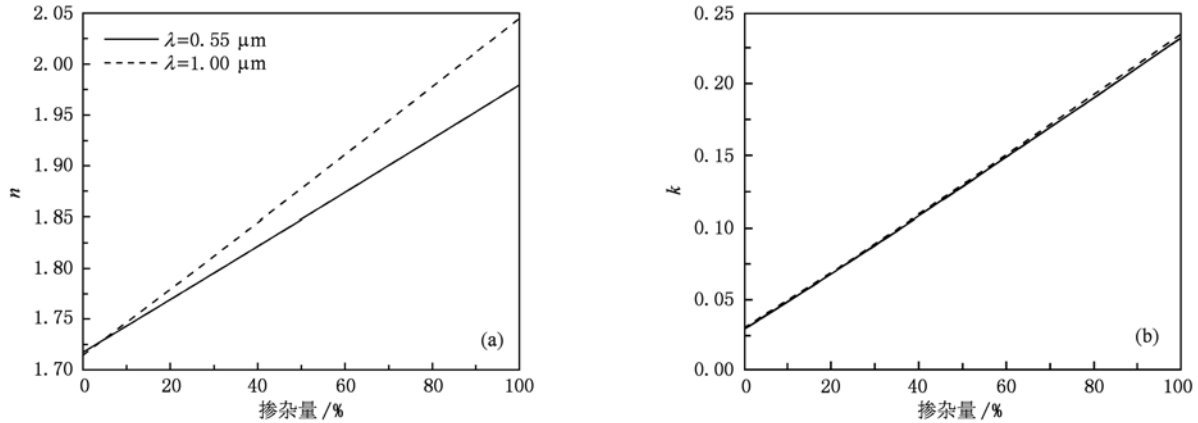


图 1 不同入射波长下含有杂质的团簇粒子的有效复折射率随掺杂量变化曲线 (a) 实部; (b) 虚部

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^[12], 其结构可表示^[13]为

$$N = k_f (R_g/2a)^{D_f}, \quad (6)$$

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. 文中表征团簇粒子分形结构的参数——分形维数和分形前向因子的取值分别为 1.8 和 5.8^[2]. 团簇粒子的尺度参数 $x = 2\pi a_{\text{eff}}/\lambda$, 其中 a_{eff} 为等体积球形粒子的半径, λ 为入射波波长.

文中所涉及的簇团粒子是基于 Jullien 等^[13] 提出的 Cluster-Cluster Aggregation 模型的基础上利用蒙特卡罗方法进行模拟的, 具体的模拟过程见文献[4].

自然界中实际的烟尘簇团粒子分布是随机的, 并且具有千变万化的结构, 所反映出的散射特性是所有形态的统计平均值. 文中将随机分布的烟尘簇团粒子所处不同位置的所有方位角求其统计平均, 从而得到缪勒矩阵元素的统计平均值, 计算公式如下^[7]:

$$\langle Q \rangle = \frac{1}{8\pi^2} \int_0^{2\pi} \int_{-1}^1 \int_0^{2\pi} Q(\beta, \Theta, \Phi) \times d\beta d(\cos\Theta) d\Phi. \quad (7)$$

式中, $\langle Q \rangle$ 为烟尘簇团粒子某缪勒矩阵元素的统计

平均值; $Q(\beta, \Theta, \Phi)$ 为系统坐标中某特定取向时烟尘簇团粒子缪勒矩阵元素值; 理论上讲, 方位角的取值应该取尽所有的值, 即 $\beta \in [0, 2\pi), \Theta \in [0, \pi), \Phi \in [0, 2\pi)$, 但是, 由于受到计算资源的限制, 只要所取的方位角的个数能够满足要求即可. Xing 等^[14] 的研究表明, 方位角的选取, $n_\beta, n_\theta, n_\phi$ 分别为 10, 7, 7 时, 即 490 个方位角在一定条件下可以满足计算要求. 本文所有计算结果均采用此方案.

3. 数值结果与分析

缪勒矩阵元素是描述目标散射体散射特性的一个重要物理参量, 通过对缪勒矩阵元素的研究, 可以了解目标散射体的一切散射信息以及散射体结构的一些特性^[15]. 缪勒矩阵为一个 4×4 的实矩阵, 其 16 个元素体现了散射体的所有散射特性和极化特性. 对于随机分布且具有某种对称性的团簇粒子, 其缪勒矩阵元素总共有 8 个不为零, 其中 6 个为独立的^[16]: $M_{11}, M_{12}, M_{22}, M_{33}, M_{34}, M_{44}$, 另外 M_{22} 与 M_{11}, M_{44} 与 M_{33} 的变化规律类似, 因此文中只给出

了 $M_{11}, M_{12}, M_{33}, M_{34}$ 散射角分布曲线.

图 2 给出了不同粒径和数量组成的含有不同掺杂量的硅酸盐团簇粒子在不同入射波长情况下缪勒矩阵元 M_{11} 角分布曲线. 从图 2 可知: 不同掺杂量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, 且随着掺杂量的增加, 团簇粒子的前向和后向散射均相应增强, 前向散射增强的幅度大于后向散射的. 随着团簇粒子中基本粒子的粒径、数量的增大以及入射波长的减小, 团簇粒子的尺度参数逐渐增大, 各个散射方向的散射均相应增强, 前向散射增强的幅度大于后向散射, 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, 主要原因在于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. 以上说明入射波长、原始微粒数量、粒径以及掺杂量均对硅酸盐团簇粒子的缪勒矩阵 M_{11} 角分布产生影响. 通过 M_{11} 角分布曲线, 可以获得硅酸盐团簇粒子中所含杂质的体积份额 f 以及团簇粒子中原始微粒的粒子数量 N 以及粒径 d_p .

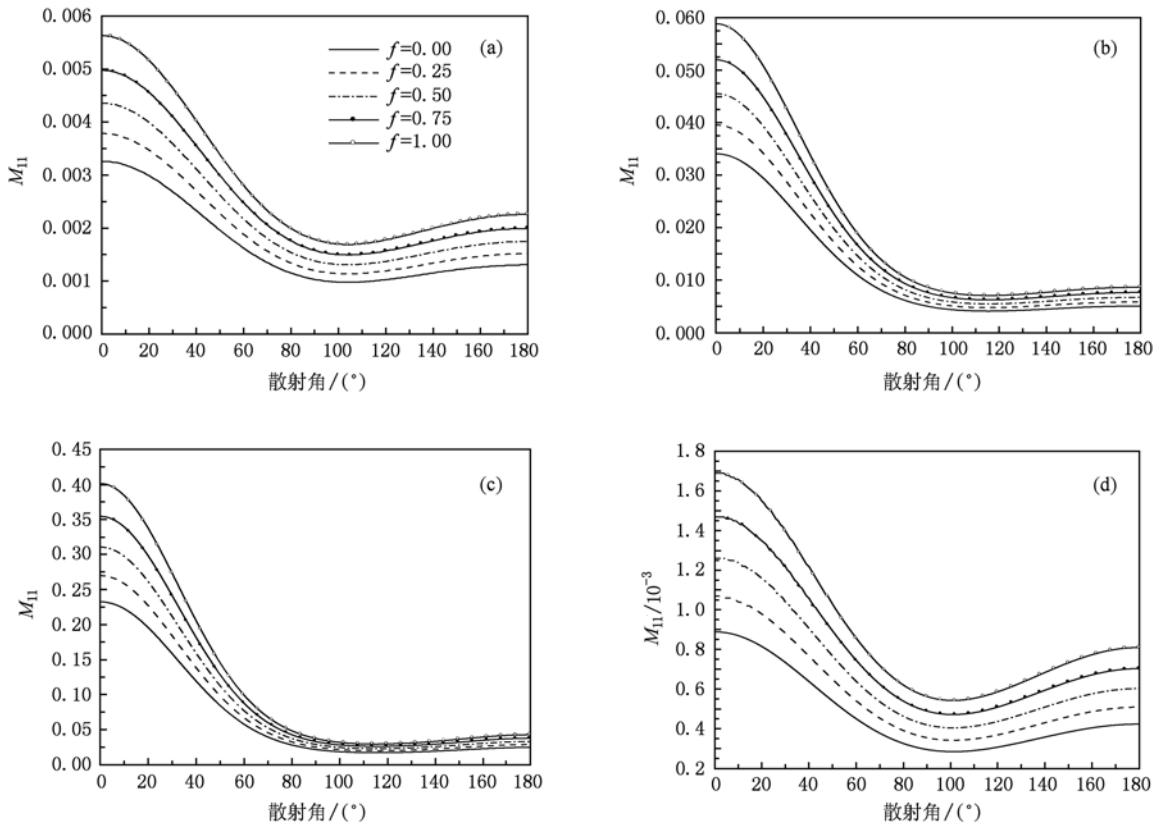


图 2 不同入射波长下不同大小且含不同掺杂量的团簇粒子 M_{11} 角分布曲线 (a), (b), (c) $\lambda = 0.55 \mu\text{m}$, d_p 分别为 20, 20, 40 nm, N 分别为 25, 50, 25; (d) $\lambda = 1.0 \mu\text{m}$, $d_p = 20 \text{ nm}$, $N = 50$

为了进一步说明问题,取图 2 所示的 M_{11} 角分布曲线下面所围面积定义为总散射强度. 不同入射波长下,不同粒子数量和粒径组成含有不同体积份额杂质的硅酸盐团簇粒子的总散射强度随掺杂量变化关系,如图 3 所示. 从图 3 可以非常清楚地看到,不同入射波长情况下,不同粒子数量和粒径组成含有不同体积份额杂质的硅酸盐团簇粒子的总散射强度随掺杂量的增大而线性增加;随着团簇粒子尺度参数的增大,其散射会加强,因此总散射强度随掺杂量的增大而线性增加的趋势越明显. 通过总散射强度与掺杂量之间的线性关系,可以确定出团簇粒子中的杂质含量. 此外,通过总散射强度与团簇粒子中原始微粒数量以及粒径之间的关系,可以确定原始微粒的数量和粒径,此点在文献[2]中有详细的论述.

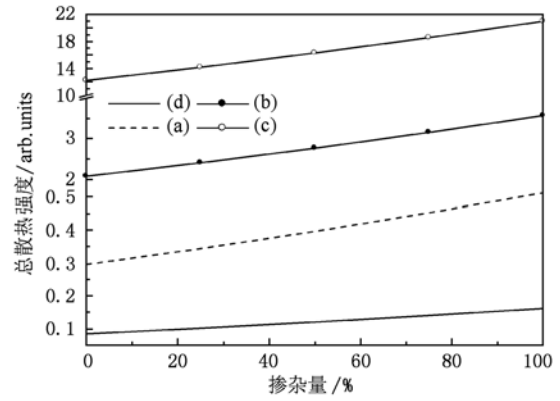


图 3 不同尺度参数团簇粒子总散射强度随掺杂量变化曲线

不同粒径和数量组成的含有不同掺杂量的硅酸盐团簇粒子在不同入射波长情况下缪勒矩阵元 M_{12} 角分布曲线如图 4 所示.

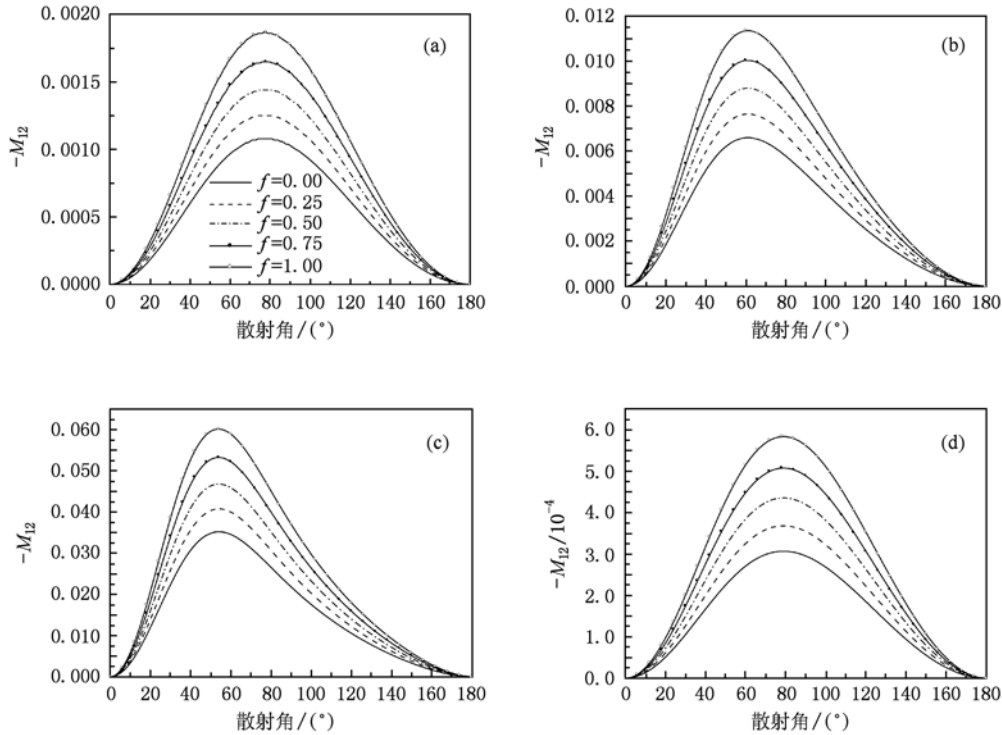


图 4 不同入射波长下不同大小且含不同掺杂量的团簇粒子 M_{12} 角分布曲线 (a),(b),(c) $\lambda = 0.55 \mu\text{m}$, d_p 分别为 20, 20, 40 nm, N 分别为 25, 50, 25; (d) $\lambda = 1.0 \mu\text{m}$, $d_p = 20 \text{ nm}$, $N = 50$

由图 4 可以发现:掺杂对团簇粒子的缪勒矩阵元 M_{12} 角分布的影响主要分布在侧向散射方向上,并且团簇粒子的 M_{12} 的值随着掺杂量的增加而增大且在峰值点处增大的幅度最大,而在前向、后向散射方向掺杂对团簇粒子 M_{12} 的影响非常小. 对于给定大小不同掺杂量的团簇粒子,其缪勒矩阵元 M_{12}

的峰值点均在相同散射角处取得,也就是说, M_{12} 的峰值点所对应的散射角与掺杂量无关. 图 4(a) 和 (b) 比较知,原始微粒数量 N 增大, M_{12} 的峰值幅度增大,同时峰值向小散射角度方向移动;图 4(a) 和 (c) 比较, d_p 增大, M_{12} 的峰值幅度同样增大,并且峰值前移现象更明显;图 4(d) 和 (b) 比较,入射波长

的减小同样造成 M_{12} 的峰值幅度增大,同时峰值前移的现象. 例如图 4(d),不同掺杂的团簇粒子的勒矩阵元 M_{12} 的峰值点均出现在散射角为 79° 处,图 4(a)–(c)中, M_{12} 的峰值点则分别出现在散射角为 $78^\circ, 60^\circ, 54^\circ$ 处. 产生上述现象的原因是 N 和 d_p 的增大以及入射波长的减小均造成团簇粒子的尺度参数增大,各个散射方向的散射均相应增强,不过前向散射增强的幅度大于后向散射. 相对而言, d_p 的增大引起团簇粒子尺度参数增大的幅度要大于 N 的影响,因此由 d_p 的变化而引起的 M_{12} 的角分布曲线的变化要明显于 N 的变化所产生的影响. 通过 M_{12} 峰值点所对应的散射角与原始微粒数量 N 以及粒径 d_p 之间的关系,可以确定 N 和 d_p 的值^[2]. 与前面类似,通过研究 M_{12} 角分布曲线下面所围面积与掺杂量之间的关系,可以确定团簇粒子中所含杂质的体积份额,即掺杂量.

图 5 给出了不同粒径和数量组成的含有不同掺

杂量的硅酸盐团簇粒子在不同入射波长情况下缪勒矩阵元 M_{33} 角分布曲线. 由于 M_{33} 描述的是 $+45^\circ$ 和 -45° 度线极化波的散射特征,因此含有不同掺杂量的团簇粒子的所有缪勒矩阵元 M_{33} 角分布曲线均在散射角为 90° 处相交于一点,在该交点处的团簇粒子的 M_{33} 不受杂质掺杂量多少的影响,在交点两侧,掺杂量对团簇粒子 M_{33} 的影响规律恰恰相反. 在散射角小于 90° 范围内,团簇粒子的 M_{33} 的值随着掺杂量的增加而增大,并且越靠近前向散射方向增大的幅度也就越大,相反,在散射角大于 90° 区域内,团簇粒子的 M_{33} 的值随着掺杂量的增加而减小并且越接近后向散射方向此现象就越明显. 此外,随着团簇粒子尺度参数的增大,掺杂量对团簇粒子缪勒矩阵元 M_{33} 在散射角大于 90° 区域内的影响明显减弱,这是因为粒子尺度参数增大,前向散射增强幅度大于后向散射增强幅度,掺杂量的变化对后向散射的影响相对较弱.

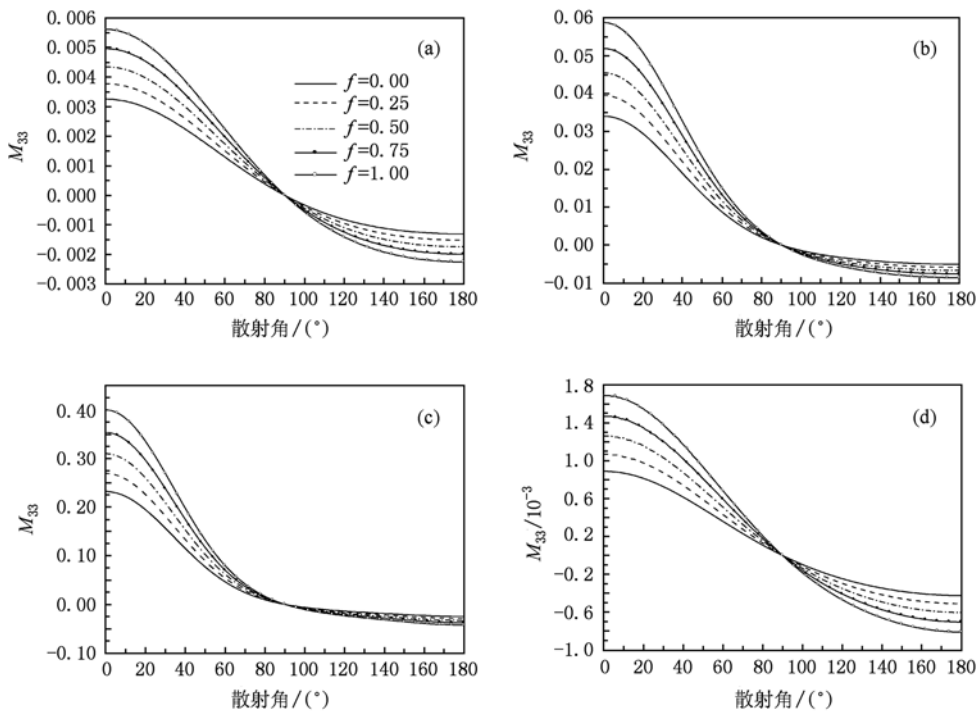


图 5 不同入射波长下不同大小且含不同掺杂量的团簇粒子 M_{33} 角分布曲线 (a),(b),(c) $\lambda = 0.55 \mu\text{m}$, d_p 分别为 20, 20, 40 nm, N 分别为 25, 50, 25; (d) $\lambda = 1.0 \mu\text{m}$, $d_p = 20 \text{ nm}$, $N = 50$

为了深入研究 M_{33} 与团簇粒子中原始微粒数量、粒径以及掺杂量之间的关系,定义 M_{33} 的不对称比率 ε 为前向散射曲线下所围面积与后向散射曲线下面积的比值,得到的如图 5 所示的 4 类不同尺度参数的团簇粒子的 ε 与掺杂量的关系如图 6 所示.

由图 6 可以发现, ε 与掺杂量的关系为近似线性关系. 通过此关系,可以确定团簇粒子中所含杂质的体积份额. 此外,通过 ε 与 N 和 d_p 的关系同样可以确定团簇粒子中原始微粒的数量以及粒径^[2].

图 7 给出了不同粒径和数量组成的含有不同掺

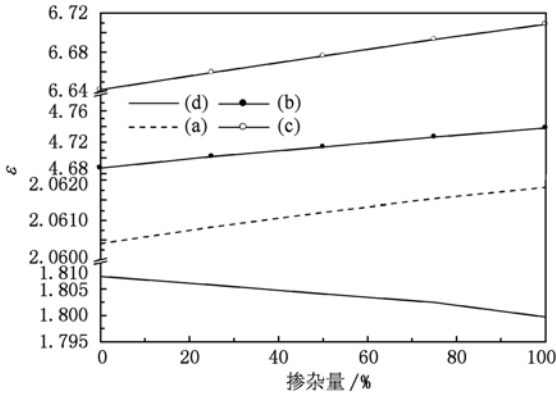


图6 不同尺度参数团簇粒子 M_{33} 的不对称比率 ε 随掺杂量变化曲线 (a), (b), (c) $\lambda = 0.55 \mu\text{m}$, d_p 分别为 20, 20, 40 nm, N 分别为 25, 50, 25; (d) $\lambda = 1.0 \mu\text{m}$, $d_p = 20 \text{ nm}$, $N = 50$

杂质的硅酸盐团簇粒子在不同入射波长情况下缪勒矩阵元 M_{34} 角分布曲线. 从图 7(a), (b), (d) 可以发现, 团簇粒子尺度参数较小时, M_{34} 的角分布曲线出现了双模状态(存在极大值和极小值). 在极小值处, 团簇粒子的缪勒矩阵 M_{34} 随着掺杂量的增大而减小, 在极大值处结论却相反. 与图 4 相同之处, 对于给定大小不同掺杂量的团簇粒子, 其缪勒矩阵元 M_{34} 的极值点所对应的散射角与掺杂量无关; 随着原始微粒数量 N 增大以及入射波长减小, M_{34} 的峰值幅度增大, 同时峰值向小散射角度方向移动. 当粒子尺度参数较大时, M_{34} 的角分布曲线的双模状态消失变化为单模状态. 具有双模状态特征的 M_{34} 的角分布曲线在侧散射方向相交于一点, 在该交点处的团簇粒子的 M_{34} 不受杂质掺杂量多少的影

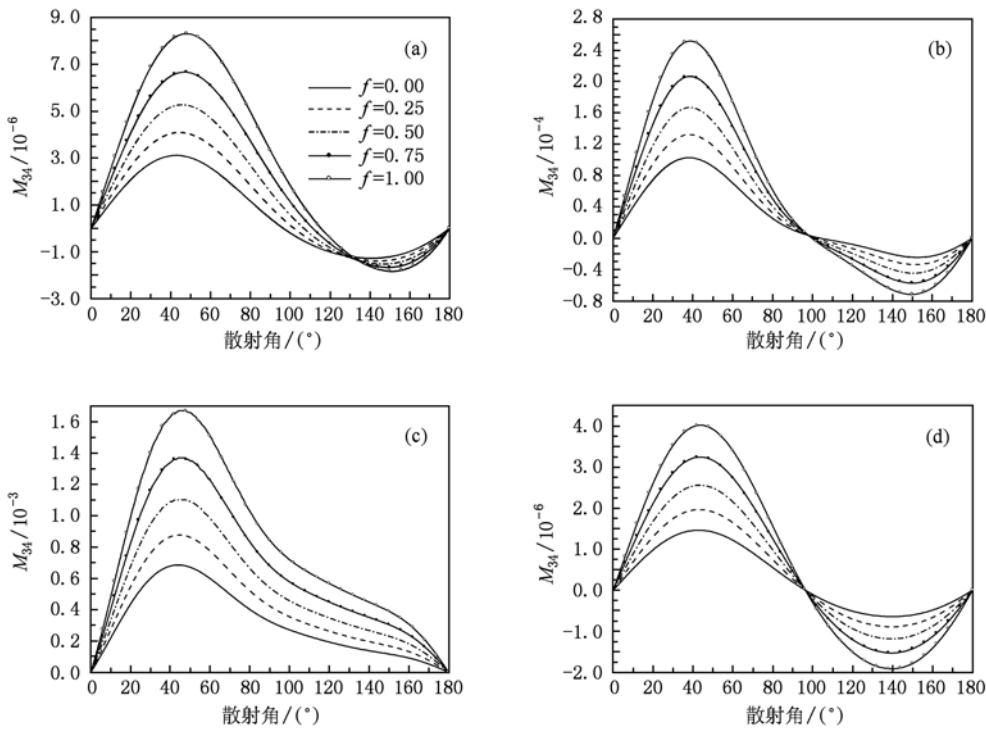


图7 不同入射波长下不同大小且含不同掺杂量的团簇粒子 M_{34} 角分布曲线 (a), (b), (c) $\lambda = 0.55 \mu\text{m}$, d_p 分别为 20, 20, 40 nm, N 分别为 25, 50, 25; (d) $\lambda = 1.0 \mu\text{m}$, $d_p = 20 \text{ nm}$, $N = 50$

响, 此外该交点所处的位置随着原始微粒数量的增大而前移, 入射波长的变化对此影响不大. 根据 M_{34} 的角分布曲线的分布特点, 同样可以确定出原始微粒的数量、粒径以及掺杂量.

4. 结论

本文利用离散偶极子近似方法对含有不同体

积份额杂质的团簇粒子的缪勒矩阵进行了数值计算, 给出了各个缪勒矩阵元素的角分布曲线, 探讨了不同含量的杂质对随机分布团簇粒子缪勒矩阵的影响. 研究表明: 掺杂对随机分布团簇粒子的缪勒矩阵存在着不同程度的影响, 并且此影响随着粒子尺度参数的变化而显著变化. 通过测定团簇粒子的缪勒矩阵元素 ($M_{11}, M_{12}, M_{33}, M_{34}$) 的散射角分布谱图, 可以确定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比例,从而为进一步深入研究多种化学成分构成的具有分形结构

的团簇粒子的散射特性提供了一种行之有效的理论方法.

- [1] Holler S, Auger J C, Stout B, Pan Y, Bottiger J R, Chang R K, Videen G 2000 *Appl. Opt.* **39** 6873
- [2] 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]
- [3] Lei C X, Liu H F, Zhang H F 2010 *Acta Opt. Sin.* **30** 876 (in Chinese) [类成新、刘汉法、张化福 2010 光学学报 **30** 876]
- [4] Lei C X, Wu Z S 2010 *Chin. J. Comp. Phy.* **27** 593 (in Chinese) [类成新、吴振森 2010 计算物理 **27** 593]
- [5] Lei C X, Wu Z S 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 5692 (in Chinese) [类成新、吴振森 2010 物理学报 **59** 5692]
- [6] Purcell E M, Pennypacker C R 1973 *The Astrophys. J.* **186** 705
- [7] Draine B T 1988 *The Astrophys. J.* **333** 848
- [8] Draine B T, Flatau P J 1994 *J. Opt. Soc. of Amer. A* **11** 1491
- [9] Bruggeman D A G 1935 *Ann. Phys. (Leipzig)* **24** 636
- [10] Rouleau F, Martin P G 1991 *The Astrophys. J.* **377** 526
- [11] Draine B T 1985 *The Astrophys. J. Suppl. Ser.* **57** 587
- [12] Dobbins R A, Megaridis C M 1987 *Langmuir* **3** 254
- [13] Jullien R, Botet R 1987 *Aggregation and Fractal Aggregates* (Singapore: World Scientific Publishing) p46
- [14] Xing Z F, Hanner M S 1997 *Astron. and Astrophys.* **324** 805
- [15] Bohren C F and Huffman D R 1983 *Absorption and scattering of light by small particles* (New York: Wiley) p65
- [16] van de Hulst H C 1981 *Light scattering by small particles* (New York: Dover) p46

Influence of impurity on Mueller matrices of randomly distributed cluster agglomerates *

Lei Cheng-Xin^{1)†} Feng Dong-Tai¹⁾ Wu Zhen-Sen²⁾

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

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

(Received 18 October 2010; revised manuscript received 7 March 2011)

Abstract

The effects of impurity on the Mueller matrices of randomly distributed cluster agglomerates are analyzed. The equivalent complex refractive indices of silicate particle containing different volume fractions of amorphous carbon are obtained by the Bruggeman effective medium theory. Mueller-matrix elements of randomly distributed cluster agglomerates containing various chemical compositions are calculated by the discrete dipole approximation (DDA) method, and the profiles of Mueller-matrix elements are presented. The influence of the impurity on the Mueller matrices of randomly distributed cluster agglomerates is discussed. The results show that the influence of impurity on the Mueller matrices of randomly distributed cluster agglomerates is quite large, and it varies with the size parameters of the randomly distributed cluster agglomerates.

Keywords: cluster agglomerates, Mueller matrices, Bruggeman effective medium theory, discrete dipole approximation method

PACS: 52.25.Tx, 42.25.Ja, 47.53.+n, 87.64.Cc

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 60771038).

† E-mail: xdpostgraduate@163.com