

光散射聚集速率测定中  $T$  矩阵方法的应用\*米利<sup>1)2)</sup> 周宏伟<sup>1)</sup> 孙祉伟<sup>1)</sup> 刘丽霞<sup>1)</sup> 徐升华<sup>1)†</sup>

1) (中国科学院微重力重点实验室, 中国科学院力学研究所, 北京 100190)

2) (山东师范大学化学化工与材料科学学院, 济南 250014)

(2012年12月5日收到; 2013年3月14日收到修改稿)

聚集速率是评估胶体体系特性及稳定性的关键参数, 静态光散射和动态光散射则是测量聚集速率的两个重要方法. 然而, 用静态光散射和动态光散射测量聚集速率时, 需要知道有关单粒子和双粒子聚集光散射特性的数据. 为此, 通常需把动、静两种方法结合, 才能消去这个数据. 以前各种近似理论曾用来解决这个问题, 但因粒子尺寸和形状的限制, 结果并不理想. 而  $T$  矩阵方法可以不受粒子大小和形状的限制计算其光散射特性. 本工作用  $T$  矩阵方法直接计算静态光散射和动态光散射所必须的粒子散射特性, 并将该法得到的聚集速率与动静态光散射结合法得到的聚集速率进行了比较, 两者结果很接近. 本工作为简化静态光散射和动态光散射测量聚集速率, 扩展其应用范围开辟了新途径.

关键词:  $T$  矩阵, 光散射法, 聚集速率

PACS: 47.57.-s, 64.70.pv, 82.70.Dd

DOI: 10.7498/aps.62.134704

## 1 引言

胶体悬浮粒子体系的稳定性及聚集过程的研究在生物技术、化工材料、磁悬浮技术, 纳米科学等很多领域具有重要的理论和实践意义<sup>[1]</sup>, 胶体分散体系的性质, 如光学、电学、力学和流体力学等都与其稳定性密切相关, 当胶体由分散态转化为聚集状态时它的很多性质都可能发生显著变化, 因而聚集行为一直是国内外胶体科学研究的热门课题.

聚集速率是表征胶体体系聚集快慢和稳定性的重要参数, 也是研究胶体聚集的动力学问题的关键数据, 它对相关理论的发展以及获得胶体颗粒之间相互作用的信息具有重要的意义<sup>[2-5]</sup>. 目前, 该参数的测量广泛使用非接触式的光学方法来进行, 包括静态光散射, 动态光散射, 浊度法等. 这三种方法分别通过测量光强(静态光散射)、流体力学半径(动态光散射)和浊度(浊度法)<sup>[5-7]</sup>随聚集时间的变化, 再结合理论计算得到的单粒子和双粒子聚

集体的光散射或消光特性来计算聚集速率的值. 相关问题的详细讨论可参见我们最近的一篇综述性文章<sup>[8]</sup>. 传统的 RGD 理论是几种理论近似中较好的一个, 但它只适用于较小的胶体颗粒, 所以对于直径较大的胶体颗粒这种方法不再适用. 我们曾论证过<sup>[9]</sup>, 在浊度法测量中, RGD 理论就被不合理地应用在大粒子体系的实验研究中<sup>[10]</sup>, 同时为了解决大粒子体系聚集速率的测量问题, 我们<sup>[9,11]</sup>曾利用  $T$  矩阵方法<sup>[12-14]</sup>精确计算了浊度测量中的光学因子, 从而有效的解决了浊度法只适用于小粒子的问题.

针对光散射方法, 为避免对理论计算的依赖 Holthoff 等<sup>[15]</sup>采用了动静结合的光散射测量方法, 该方法可以不受粒子大小的限制进行聚集速率的测量, 后来也被 Lin 等<sup>[16]</sup>和 Galletto 等<sup>[17]</sup>采用. 然而到目前为止, 静态或者动态光散射法测量仍然不能单独应用于大粒子体系聚集速率的测量中.

本工作进一步利用  $T$  矩阵方法, 通过精确计算, 直接得到静态和动态光散射方法测量中需要的

\* 国家自然科学基金(批准号: 10972217, 11172302, 11032011)和中国科学院创新工程(批准号: KJCX2-YW-L08)资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: xush@imech.ac.cn

单粒子和双粒子聚集体的光散射特性,从而能够单独使用静态或动态光散射测量得到大粒子体系的聚集速率.这一工作大幅度简化了光散射法测量大粒子体系聚集速率的实验步骤,为扩展单独使用静态或动态光散射测量的应用范围开辟了新途径.

## 2 聚集速率的测量方法和相关理论

### 2.1 光散射测量方法

对于单分散体系,在聚集过程的初期,可以考虑只有单体粒子以及两个单体粒子所形成的双粒子聚集体存在,因此,粒子的数密度变化可以表示为

$$\left(\frac{dN_1}{dt}\right)_{t=0} = -k_{11}N_1^2, \quad (1)$$

$$\left(\frac{dN_2}{dt}\right)_{t=0} = k_{11}N_1/2, \quad (2)$$

其中  $N_1$  和  $N_2$  分别代表体系中单粒子和双粒子聚集体的数密度,  $t$  是聚集时间,  $k_{11}$  是胶体聚集行为中需要测量的聚集速率.无论是静态光散射、动态光散射还是动静态结合的光散射测量方法,在聚集速率的测量过程中都需要用到以上两个公式,具体情况分析如下.

#### 2.1.1 静态光散射

静态光散射测量聚集速率主要是通过测量散射光强随聚集时间  $t$  的变化来计算得到.对于初始为单分散状态的较稀的胶体体系,其在波矢  $q$  位置的散射光强  $I(q,t)$  为

$$I(q,t) = \sum_{Z=1}^{\infty} I_z(q)N_z(t), \quad (3)$$

其中  $N_z(t)$  是  $Z$  聚体的粒子数密度,  $I_z(q)$  是散射强度,  $q = (4\pi n/\lambda) \sin(\theta/2)$  是波矢,  $\lambda$  是光在介质中的波长,  $\theta$  是散射角,  $n$  是水的折射率.在初始阶段的聚集过程,体系中只存在单体粒子以及两个单体粒子聚集形成的双粒子聚集体,因此有

$$\frac{I(q,t)}{I(q,0)} = 1 + \left[\frac{I_2(q)}{2I_1(q)} - 1\right] k_{11}N_0t + \dots, \quad (4)$$

其中的  $k_{11}$  是聚集速率,  $N_0$  是起始粒子数密度,  $I(q,0) = I_1(q)N_0$ .结合(1)—(4)式可得到

$$k_{11} = \frac{d(I(q,t)/I(q,0))/dt}{N_0 \left[\frac{I_2(q)}{2I_1(q)} - 1\right]}. \quad (5)$$

(5) 式中的分子可通过静态光散射测量得到,为了从(5)式得到聚集速率  $k_{11}$ ,还必须要通过理论计算  $\left[\frac{I_2(q)}{2I_1(q)} - 1\right]$  的值.

针对粒子尺寸(相对于入射光波长)较小的情况,相关的理论计算常采用 RGD 理论近似来处理. Rayleigh-Gans-Debye (RGD) 理论是一种常用的一种处理光散射的方法,它的物理基础是假定一个颗粒包含一系列互不影响的 Rayleigh 散射单元,因为这一假定,其适用条件为  $|m-1| \ll 1$ ,  $|2\alpha(m-1)| \ll 1$ .其中  $\alpha = 2\pi a/\lambda$  为尺寸因子,  $a$  为粒子半径,  $\lambda$  为波长;  $m = n_2/n_1$  为相对折射率,其中  $n_2$  和  $n_1$  分别为颗粒和介质的折射率.文献中已给出,通过 RGD 理论计算得到的  $\left[\frac{I_2(q)}{2I_1(q)} - 1\right]$  的值为  $\frac{\sin(2aq)}{2aq}$ <sup>[18]</sup>.

尽管在实际应用中, RGD 理论的适用范围一般比理论给出的适用条件要稍微大一些,但对于本文所讨论的粒子尺寸较大的情况, RGD 理论不再适用.我们采用  $T$  矩阵方法,可以精确地计算大粒子的  $I_1(q)$  和  $I_2(q)$  的值,再利用实验测得的散射光强随时间的变化率  $dI(q,t)/dt$  和  $N_0$  的值结合(5)式得到聚集速率  $k_{11}$  的值.  $T$  矩阵计算方法将在 2.2 部分介绍.

#### 2.1.2 动态光散射

动态光散射法是通过测量流体力学半径随时间  $t$  的变化率计算得到聚集速率.根据 Einstein-Stokes 公式,流体的力学半径与扩散系数之间的关系为

$$r_h = \frac{k_B T}{6\pi\eta D}, \quad (6)$$

其中  $k_B$  波尔兹曼常量,  $T$  温度,  $\eta$  为黏度.

在聚集的初期阶段,只考虑体系中的单体粒子以及双粒子聚集体,可以得到其平均流体力学半径  $r_h(t)$  的表达式为

$$\frac{1}{r_h(t)} = \frac{I_1(q)N_1(t)/r_{h,1} + I_2(q)N_2(t)/r_{h,2}}{I_1(q)N_1(t) + I_2(q)N_2(t)}. \quad (7)$$

类似于静态光散射情况的分析,可得到平均流体力学半径变化率与聚集速率  $k_{11}$  的关系为

$$k_{11} = \frac{[d(r_h(t)/r_h(0))/dt]_0}{(1 - r_{h,1}/r_{h,2})[I_2(q)/2I_1(q)]N_0}, \quad (8)$$

式中的  $r_{h,1}$  和  $r_{h,2}$  分别代表单个粒子和双粒子聚集体的流体力学半径,通过计算低雷诺数流

体中两个球形颗粒的流体力学作用, 可得到  $r_{h,1}$  和  $r_{h,2}$  的关系, 当双粒子无法自由旋转运动的时, 则  $r_{h,2} \cong 1.38r_{h,1}$  如果双粒子可以自由旋转, 则有  $r_{h,2} \cong 1.35r_{h,1}^{[15,19,20]}$ .

和静态光散射类似, (8) 式中的  $\frac{I_2(q)}{2I_1(q)}$  一项也需要通过理论计算得到. 同样地, RGD 理论适用于小粒子体系, 而对于直径较大的颗粒, 在研究中我们也是利用  $\mathbf{T}$  矩阵方法计算得到  $I_1(q)$  和  $I_2(q)$  的值, 再利用实验测得的流体力学半径随时间的变化率  $dr(t)/dt$  和  $N_0$  的值结合 (8) 式得到聚集速率  $k_{11}$  的值.

### 2.1.3 动静态结合光散射法

为了避免散射光强的理论计算, Holthoff 等<sup>[15]</sup> 提出将 (5) 和 (8) 式结合起来, 消去  $I_1(q)$  和  $I_2(q)$ , 这样可以得到

$$k_{11}N_0 = \frac{r_{h,2}}{r_{h,2} - r_{h,1}} \left[ \frac{dr_h(t)/dt}{r_h(0)} \right] - \left[ \frac{dI(q,t)/dt}{I(q,0)} \right]. \quad (9)$$

该公式避免了单粒子和双粒子聚集体散射光强的计算, 因而可以适用于大粒子体系, 但是必须要同时利用静态光散射测得的散射光强随时间的变化和动态光散射测得的流体力学半径随时间的变化才能得到  $k_{11}$  的值, 因此实验测量过程要比单独的静态或者动态光散射更为复杂.

在本文中, 我们将静态、动态光散射分别结合  $\mathbf{T}$  矩阵方法测量得到的聚集速率与动静态结合的光散射方法进行对比, 以验证  $\mathbf{T}$  矩阵方法在静态、动态光散射测量中的适用性.

## 2.2 $\mathbf{T}$ 矩阵方法

为了利用静态光散射 (5) 式和动态光散射 (8) 式来得到聚集速率, 需要精确计算  $I_1(q)$  和  $I_2(q)$  的值. 光的强度和偏振态可由 Stokes 矢量  $(I, Q, U, V)^T$  来描述, 其中  $I$  为光强,  $Q$  和  $U$  表示线偏振方向和强度,  $V$  为圆偏振分量. 在光散射测量中, 入射光的 Stokes 矢量为已知的, 而散射平面上的入射光与散射光的 Stokes 矢量的各参数可通过散射矩阵  $\mathbf{F}$  联系起来<sup>[12]</sup>, 因而为了计算  $I_1(q)$  和  $I_2(q)$ , 关键的问题根据入射光的强度和偏振情况来计算单个粒

子和双粒子聚集体的散射矩阵, 以得到它们对给定入射光散射后在不同角度的 Stokes 矢量.

在本文中, 我们采用了  $\mathbf{T}$  矩阵方法<sup>[9,12-14]</sup> 来计算散射矩阵, 在  $\mathbf{T}$  矩阵方法中, 入射场和散射场都可以按照球矢量波函数展开为

$$\mathbf{E}^{\text{inc}}(\mathbf{r}) = \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{m=-n}^n [a_{mn} \text{Rg} \mathbf{M}_{mn}(kr) + b_{mn} \text{Rg} \mathbf{N}_{mn}(kr)], \quad (10)$$

$$\mathbf{E}^{\text{sca}}(\mathbf{r}) = \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{m=-n}^n [p_{mn} \mathbf{M}_{mn}(kr) + q_{mn} \mathbf{N}_{mn}(kr)], \quad (11)$$

其中  $k = 2\pi/\lambda$ . 散射场的系数  $\mathbf{p} = [p_{mn}, q_{mn}]$  与入射场的系数  $\mathbf{a} = [a_{mn}, b_{mn}]$  之间通过传输矩阵 ( $\mathbf{T}$  矩阵) 相联系, 可表示为

$$p_{mn} = \sum_{n'=1}^{\infty} \sum_{m'=-n'}^{n'} [T_{mnm'n'}^{11} a_{m'n'} + T_{mnm'n'}^{12} b_{m'n'}], \quad (12)$$

$$q_{mn} = \sum_{n'=1}^{\infty} \sum_{m'=-n'}^{n'} [T_{mnm'n'}^{21} a_{m'n'} + T_{mnm'n'}^{22} b_{m'n'}], \quad (13)$$

即

$$\begin{bmatrix} \mathbf{p} \\ \mathbf{q} \end{bmatrix} = \mathbf{T} \begin{bmatrix} \mathbf{a} \\ \mathbf{b} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \mathbf{T}^{11} & \mathbf{T}^{12} \\ \mathbf{T}^{21} & \mathbf{T}^{22} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \mathbf{a} \\ \mathbf{b} \end{bmatrix}. \quad (14)$$

通过  $\mathbf{T}$  矩阵来计算散射矩阵的具体步骤见文献 [12] 的第 136—137 页, 由于涉及步骤和公式较多, 本文中不再赘述. 这样一来, 为计算  $I_1(q)$  和  $I_2(q)$  的值, 就需要求得单个球形粒子以及两个球形粒子聚集体的  $\mathbf{T}$  矩阵.  $N$  个球形粒子的聚集体的  $\mathbf{T}$  矩阵的具体求法, 是将总的散射场写成所有球形粒子散射场的和, 再通过将各粒子散射场的球矢量波函数进行局部展开、求和以及坐标系转化, 来得到单个粒子和两个粒子聚集体的  $\mathbf{T}$  矩阵. 由于推导过程较长, 本文中仅简单介绍这一基本计算过程, 相关推导中的具体细节可参考文献 [12].

与 RGD 理论相比, 在利用  $\mathbf{T}$  矩阵方法计算散射矩阵的过程中没有加入近似<sup>[9,12-14]</sup>, 因此可以不受粒子尺寸的限制来精确计算  $I_1(q)$  和  $I_2(q)$  的值.

应用  $\mathbf{T}$  矩阵计算时, 入射光的波长, 单粒子尺寸, 介质和粒子的折射率都是必须的参数. 由于

折射率一般会随入射光波长的改变而发生细微的变化,为了精确起见,我们对水(介质)和聚苯乙烯(PS胶体粒子)在不同波长下的折射率采用经验公式<sup>[11,21,22]</sup>进行计算.

### 3 实验测量过程

本实验用到的聚苯乙烯颗粒是Duke公司3500系列的产品,颗粒半径 $R = 250 \text{ nm}$ ,记为PS250,多分散度小于1.05,密度为 $1.05 \text{ g/cm}^3$ ,固含量是1%.

在实验之前,所用的样品瓶都用铬酸浸泡,以免混入表面活性剂(表面活性剂会非常明显的影响胶体分散体系的稳定性).光散射实验使用的样品瓶为标准样品瓶,即20 ml的一次性闪烁瓶,并保证光度计入射光斑完全在乳液体积范围内.我们先配制一定数密度的PS250胶体体系,其分散介质为高纯水,电导率低于 $0.5 \mu\text{S/cm}$ ,另外再按照要求配制一定浓度的电解质(氯化钠)溶液.

所有的实验都在 $25 \pm 1 \text{ }^\circ\text{C}$ 下进行,在进行聚集速率测试时,我们将配好的胶体溶液与电解质溶液按照1:1的比例均匀混合,放入光散射光路进行测量,混合后的体系中粒子数密度为 $5 \times 10^{13} \text{ pm}^{-3}$ ,体系的离子浓度则高于临界聚集浓度(CCC)因此胶体的聚集为快聚集过程.

我们进行光散射法测量所用的激光光散射仪是Brookhaven公司生产的BI-200SM广角激光光散射仪,光源是150 mW的氩离子激光器,波长是532 nm,发出的激光为垂直偏振.实验得到的散射光强、流体力学半径都由光散射设备所带的软件进行记录和处理.

在光散射实验中,每次实验取前300 s的数据,每个实验点重复5次取平均值.对于静态光散射法测量时间为600 s,系统每1 s采集一个数据.对于动态光散射法测量时间也为600 s,由于在计算流体力学半径时,需要自相关函数的计算,所以每14 s采集一次数据,间隔时间为3 s

### 4 结果与讨论

在静态光散射法测量中,根据仪器记录的颗粒的光强 $I$ 随时间的变化,通过线性拟合得到某个特定角度下的光强随时间的变化率 $dI(q,t)/dt$ ,在此

我们选了几个典型的角度,如图1所示.在动态光散射法测量中,根据仪器记录的颗粒的有效粒径随时间的变化,通过线性拟合得到某个的角度下流体力学半径随时间的变化率 $dr(t)/dt$ ,我们也选了几个典型的角度,如图2所示.

利用实验测量得到的结果,我们结合 $T$ 矩阵方法计算出同一角度的单粒子和双粒子对的散射光强 $I_1(q)$ 和 $I_2(q)$ ,再分别利用(5)式和(8)式计算得到相应的聚集速率 $k_{11}$ .在动态光散射测量中,除 $I_1(q)$ 和 $I_2(q)$ 外,还需要知道 $r_{h,1}/r_{h,2}$ 的值,参考文献[15],我们将聚集的颗粒看作是無法自由旋转运动的双粒子,从而有 $r_{h,2} \cong 1.38r_{h,1}$ .

为了验证本文提出的应用 $T$ 矩阵方法来进行静态和动态光散射测量的可靠性,我们还将(5)和(8)式得到的结果与(9)式(即动静态结合的光散射的结果)进行了对比,在应用(9)式时,同样我们取 $r_{h,2} \cong 1.38r_{h,1}$ .同时为了验证 $T$ 矩阵方法相对于传统的RGD理论方法在进行大粒子聚集速率测量方面的优越性,我们还将测量结果与RGD理论的结果进行了对比.

这几种方法的实验结果的比较见图3和图4.从图3可以看出,在静态光散射的测量结果中,采用RGD理论处理得到的聚集速率的值,在不同的角度差别很大,甚至出现了毫无物理意义的负值,即便对于正值的结果,其数值与图4中的静态动态结合(SLS+DLS)的结果相比也有数量级上的差别.对于动态光散射法,图4中采用RGD理论处理虽然与图3中的结果相比误差要小,但不同角度仍然可以达到约1倍的差别,与静态动态结合(SLS+DLS)的结果相比也相差很大.因此,对于本文中使用的的大粒子体系,若采用RGD理论,无论是静态光散射还是动态光散射,在不同角度下,其计算得出的聚集速率的结果差别都非常大,对于一个给定的体系,其聚集速率应是体系本身的固有参数,不应该随着测试角度的变化而变化,根据这一原则,即可说明RGD方法已完全不能适用于本文中较大粒子体系的聚集速率的测量.由于动态光散射测量的是流体力学半径随时间的变化, $dr(t)/dt$ 在不同角度都为正,见图2.而静态光散射测量的是光强随时间的变化,因而 $dI(q,t)/dt$ 可能为负数,见图1中的 $30^\circ$ 和 $90^\circ$ 角的结果,由于聚集速率 $k_{11}$ 应当为

正, 因此从 (5) 式可以看出,  $dI(q,t)/dt$  为负就说明两粒子聚集体的散射光强反而比分开的情况要小, 即  $2I_1(q) > I_2(q)$ . 而在这些角度, 采用 RGD 理论得到的聚集速率为负 (见图 3), 说明它不仅从定量上计算大粒子的光强分布有很大误差, 即使是从定性上, 也不能准确预测  $I_1(q)$  和  $I_2(q)$  之间的相对大小.

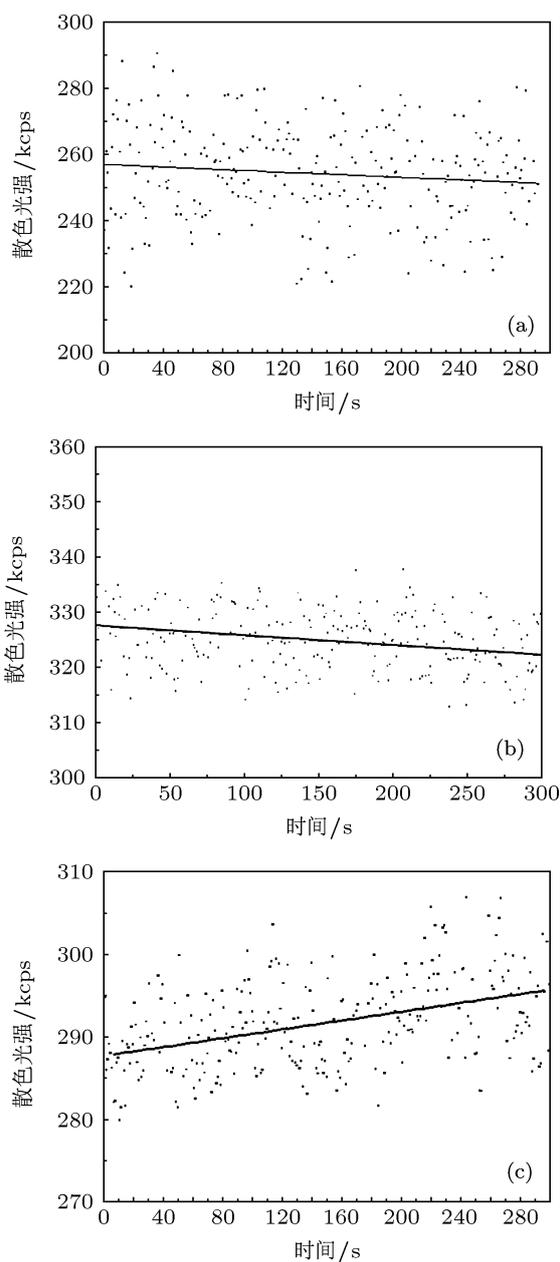


图 1 (a) 静态光散射法实验中  $30^\circ$  角下测量的光强随时间的变化; (b) 静态光散射法实验中  $90^\circ$  角下光强随时间的变化; (c) 静态光散射法实验中  $110^\circ$  角下光强随时间的变化

与 RGD 理论的结果相比, 采用本文提出的  $T$  矩阵方法, 无论是静态光散射还是动态光散射, 均可以在不同的角度得到相当一致的聚集速率的值,

如图 4 所示. 特别是采用静态光散射方法不仅没有出现负值的情况, 而且对于 RGD 理论出现负值的角度, 其计算得到的结果也与其他角度的结果很接近. 另外, 静态光散射和动态光散射的测定结果也非常接近, 这说明, 采用  $T$  矩阵方法, 静态和动态光散射都可以用来较精确地测定较大粒子体系的聚集速率.

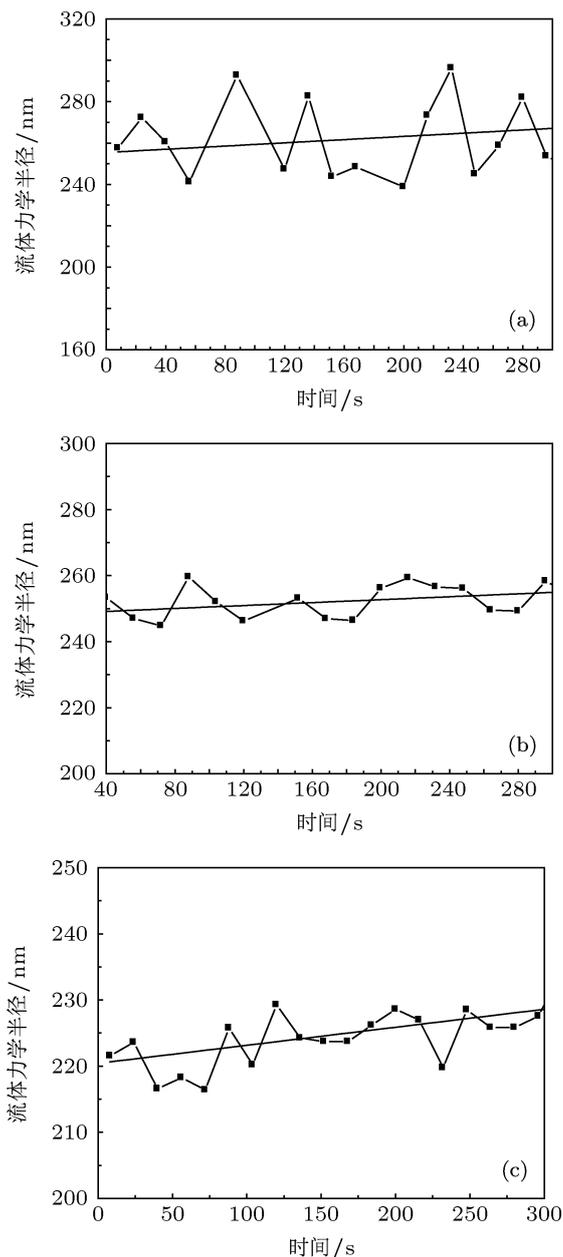


图 2 (a) 动态光散射法实验中  $30^\circ$  角下测量的流体力学半径随时间的变化; (b) 动态光散射法实验中  $90^\circ$  角下流体力学半径随时间的变化; (c) 动态光散射法实验中  $110^\circ$  角下流体力学半径随时间的变化

此外还可以看到, 用我们的方法, 无论是动态光散射还是静态光散射的测量, 其结果都与动、静

态结合方法测量的结果相当一致,这也从侧面验证了我们利用  $T$  矩阵方法得到的静态和动态光散射测定途径是可行而有效的.

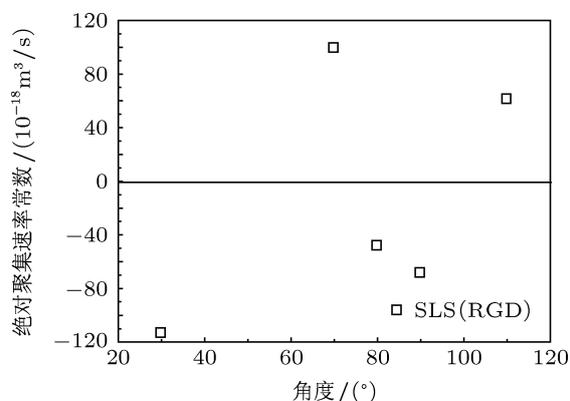


图3 根据不同角度下静态光散射法测量结果,采用RGD理论得到的聚集速率

## 5 结论

本文以直径为 500 nm 的聚苯乙烯胶体粒子体系为代表,对比研究了利用光散射测定聚集速率的不同处理方法,并利用  $T$  矩阵方法计算出了光散射法中所需要的单粒子和双粒子聚集集体光散射特性的关键数据,实现了单独使用动态或静态光散射即可完成聚集速率的测量,通过与动、静态结合方法

测量结果的比较,证实了我们方法的可行性和有效性.对于动态或者静态光散射法测量聚集速率来说,本文的工作突破了粒子大小的限制,从而扩大了光散射测量聚集速率的应用范围.与动、静态结合的方法相比,利用本文提出的方法可以避免使用动、静态结合方法的繁琐测量过程,也降低了对实验设备的要求.因此,这一工作为简化静态光散射和动态光散射方法对聚集速率的测量过程,和扩展相关方法的应用范围开辟了新的途径.

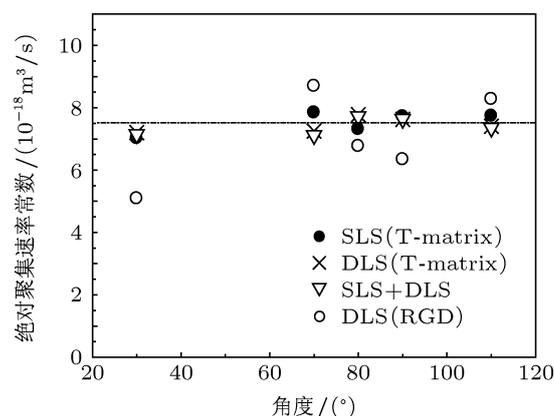


图4 根据静态和动态光散射测量结果,利用不同的处理方法得到的聚集速率.其中SLS指的是静态光散射测量方法,DLS指的是动态光散射测量方法,SLS+DLS指的是动、静态结合的测量方法.括号中的  $T$ -matrix 指的是将测量结果用  $T$  矩阵方法处理得到的聚集速率,而RGD指的是采用RGD方法处理得到的结果

- [1] Arora A K, Tata B V R 1998 *Advances in Colloid and Interface Science* **49** 97
- [2] Vincent B 1992 *Adv. in Colloid Interface Sci.* **42** 279
- [3] Sun Z W, Xu S H, Dai G L, Li Y M, Lou L R, Liu Q S, Zhu R Z 2003 *J. Chem. Phys.* **119** 2399
- [4] Sun Z W, Xu S H, Liu J, Li Y, Lou L R, Xie J C 2005 *J. Chem. Phys.* **122** 184904
- [5] Elimelech M, Gregory J, Jia X, Williams R A 1995 *Particle Deposition & Aggregation* (1st. Edn.) (Oxford: Butterworth-Heinemann) p441
- [6] Yu W L, Matijevic E, Borkovec M 2002 *Langmuir* **18** 7853
- [7] Kim A Y, Berg J C 2000 *J. Colloid Interface Sci.* **229** 607
- [8] Xu S H, Sun Z W 2011 *Soft Matter* 11298–11308
- [9] Sun Z W, J L, Xu S H 2006 *Langmuir* **22** 4946
- [10] Folkersma R, van Diemen A J G, Stein H N 1998 *J. Colloid Interface Sci.* **206** 482
- [11] Xu S H, J L, Sun Z W 2006 *J. Colloid Interface Sci.* **304** 107
- [12] Mishchenko M I, Travis L D, Lacis A A 2002 *Scattering Absorption, and Emission of Light by Small Particles* (Cambridge University Press: 1st. Ed.) (Cambridge, U.K) p439
- [13] Quirantes A, Delgado A 2003 *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer.* **78** 179
- [14] Mackowski D W 1994 *J. Opt. Soc. Am. A* **11** 2851
- [15] Holthoff H, Egelhaaf S U, Borkovec M, Schurtenberger P, Sticher H 1996 *Langmuir* **12** 5541
- [16] Lin W, Galletto P, Borkovec M 2004 *Langmuir* **20** 7465
- [17] Galletto P, Lin W, Borkovec M 2005 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **7** 1464
- [18] Mulholland G W, Bohren C F, Fuller K A 1994 *Langmuir* **10** 2533
- [19] Holthoff H, Borkovec M, Schurtenberger P 1997 *Phys. Rev. E* **6945** 6953
- [20] John H, Howard B 1983 *Low Reynolds Number Hydrodynamics: With Special Applications To Particulate Media* (1st. Edn.) (Netherland: Springer) p543
- [21] Matthaus W 1974 *Beitr Meereskd* **33** 73
- [22] Nikolov I D, Ivanov C D 2000 *Appl. Opt.* **39** 2067

# The use of $T$ -matrix method for determining coagulation rate of colloidal particles in light scattering measurement\*

Mi Li<sup>1)2)</sup> Zhou Hong-Wei<sup>1)</sup> Sun Zhi-Wei<sup>1)</sup> Liu Li-Xia<sup>1)</sup> Xu Sheng-Hua<sup>1)†</sup>

1) (Key Laboratory of Microgravity, Institute of Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China)

2) (College of Chemistry, Chemical Engineering and Material Science, Shandong Normal University, Jinan 250014, China)

(Received 5 December 2012; revised manuscript received 14 March 2013)

## Abstract

The coagulation rate is an important parameter for colloids, which is very useful for evaluating the colloidal stability. Both static light scattering and dynamic light scattering are commonly used methods for measuring the coagulation rate. By using these methods, the light scattering properties of single particles and aggregates of two particles are needed. Therefore, one may need both the static and dynamic light scattering data to avoid the calculation of the relevant scattering properties. Usually, when only static or dynamic light scattering data are available, various approximations are used to solve the problems related to the light scattering properties of particles and aggregates. However, due to the limitation of size and shape of colloidal particles in these approximations, the results were not always satisfactory. Since the  $T$ -matrix method can be used to precisely calculate the characteristic of light scattering without approximation of particle size or shape, we use this method in the determination of coagulation rate in static or dynamic light scattering measurement in this study. The comparison of our results with those measured by simultaneous static and dynamic light scattering method confirms that the  $T$ -matrix method is suitable for the light scattering measurement of coagulation rate. Therefore, this study simplifies the coagulation rate measurement by light scattering methods and extends their applications.

**Keywords:**  $T$ -matrix, light scattering, coagulation rate

**PACS:** 47.57.-s, 64.70.pv, 82.70.Dd

**DOI:** 10.7498/aps.62.134704

---

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 10972217, 11172302, 11032011), and the Knowledge Innovation Program of the Chinese Academy of Sciences (Grant No. KJCX2-YW-L08).

† Corresponding author. E-mail: xush@imech.ac.cn