

## Opis optycznych właściwości nakładających się cząsteczek za pomocą fraktali

**Streszczenie.** Celem pracy jest próba podania odpowiedzi na pytanie czy na podstawie właściwości optycznych agregatów fraktalnych sadzy można określić sposób połączeń cząsteczek wchodzących w ich skład. Pod uwagę brane są współczynniki sprawności (ekstynkcji  $Q_{ext}$ , rozpraszania  $Q_{sca}$ , absorpcji  $Q_{abs}$ ) oraz diagramy światła rozproszonego. Na podstawie otrzymanych wyników wnioskujemy, że w przypadku małych struktur same diagramy światła rozproszonego mogą być niewystarczające do określenia połączeń międzycząsteczkowych. Współczynniki sprawności zmieniają się wraz z długością fali  $\lambda$  oraz współczynnikiem przenikania się cząsteczek  $C$ . Ponadto okazuje się możliwe stworzenie modelu agregatu negując wartość  $C$ , jednakże w tym wypadku struktura musi składać się ze względnie małej liczby cząsteczek  $N_p$ .

**Słowa kluczowe:** agregaty fraktalne, cząsteczki sadzy, rozpraszanie światła

## The use of fractals to describe the optical properties of overlapping particles

**Abstract.** The aim of this paper is to determine whether the optical properties of soot fractal-like aggregates are sufficient to determine the type of connections between primary particles. The extinction  $Q_{ext}$ , scattering  $Q_{sca}$ , absorption  $Q_{abs}$  efficiencies as well as light scattering diagrams are examined and discussed. The efficiencies change along with the laser wavelength  $\lambda$  and/or the overlap level  $C$ . Therefore, they might be of great importance for the studied topic. We also conclude that light scattering diagrams for small soot aggregates, generated under laboratory conditions, are not sufficient for determining the overlapping of primary particles. This rule apply when the radius of gyration  $R_g$  of aggregates composed of overlapping particles ( $C>0$ ) and  $R_g$  of aggregates made up of particles in point contact ( $C=0$ ) are exact. Additionally, it might be possible to create an aggregate model and neglect  $C$  completely. However, such structure should be composed of relatively small number of primary particles  $N_p$ .

**Keywords:** fractal aggregates, soot particles, light scattering

### Wstęp

Cząsteczki (np. sadzy) mają tendencję do łączenia się ze sobą w co prowadzi do powstania większych struktur zwanych agregatami. Wykazują one cechy będące niezależne od swojej wielkości. Określone są one dwoma parametrami morfologicznym, mianowicie wymiarem fraktalnym ( $D_f$ ) oraz współczynnikiem skalującym ( $K_f$ ). Przy ich wykorzystaniu struktura może zostać opisana następującą zależnością [1]

$$N_p = K_f \left( \frac{R_g}{r} \right)^{D_f} \quad (1)$$

w której  $R_g$  oznacza promień bezwładności agregatu zbudowanego z  $N_p$  cząsteczek o jednakowym promieniu  $r$ . Przytoczony wzór ma zastosowanie gdy cząsteczki przedstawiane są jako sfery znajdujące się w kontakcie punktowym a wszelkie połączenia między nimi (np. przenikanie) są negowane. Takie uproszczenie ma wiele zalet, między innymi pozwala na wykorzystanie algorytmów symulacji rozpraszania światła będących nieraz kilkadziesiąt razy szybszych od ich odpowiedników wymaganych dla bardziej zaawansowanych połączeń. Niestety, nie jest to wierne odwzorowanie rzeczywistości w której kontakt punktowy w zasadzie nie występuje. Pod wpływem procesu starzenia agregaty mogą zmienić się w bardziej zwarte struktury. Również zjawisko spiekania nie pozostaje bez wpływu na połączenia międzycząsteczkowe. Jego początkowe fazy mogą zostać aproksymowane przy pomocy przenikających się sfer [2].

### Model agregatu wykorzystany w symulacjach

Na potrzeby prezentacji wygenerowany został model agregatu sadzy złożonego z  $N_p=139$  sferycznych cząste-

czek o promieniu  $r=26\text{nm}$  znajdujących się w kontakcie punktowym. Pozostałe parametry wynosiły odpowiednio: wymiar fraktalny  $D_f=2,4$ , współczynnik skalujący  $K_f=0,67$ , promień bezwładności  $R_g=240\text{nm}$  i zespolony współczynnik załamania światła  $m=1,85+0,71i$ .

### Symulacje dla stałej długości fali

Do przeprowadzenia symulacji wykorzystany został program DDScat [3] bazujący na metodzie dyskretnej aproksymacji dipolowej (DDA). Na długość fali  $\lambda=600\text{nm}$  przypadło ok. 60 elementów objętościowych (dipoli). Zmiana współczynnika przenikania  $C$  polegała na modyfikacji odległości środków cząsteczek od środka masy układu, przy czym dla  $C=0$  cząsteczki znajdowały się w kontakcie punktowym a dla  $C=1$  ich środki były umiejscowione w jednym punkcie (agregat zamieniał się w kulę). Przy jednoczesnym zwiększaniu  $C$  zachowana była odpowiednio objętość struktury, jej powierzchnia lub promień cząsteczek z których była zbudowana

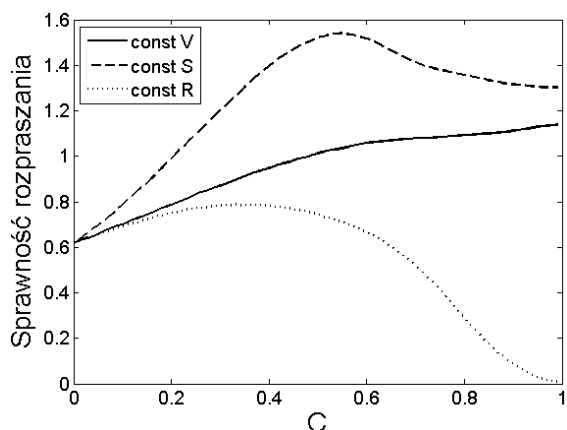
### Sprawność rozpraszania światła

Rysunek 1 przedstawia współczynnik sprawności rozpraszania światła w zależności od  $C$ . Widać na nim, że badana wartość zmienia się w każdym analizowanym przypadku. Największe jednak różnice zachodzą gdy promień cząsteczek  $r$  jest stały.

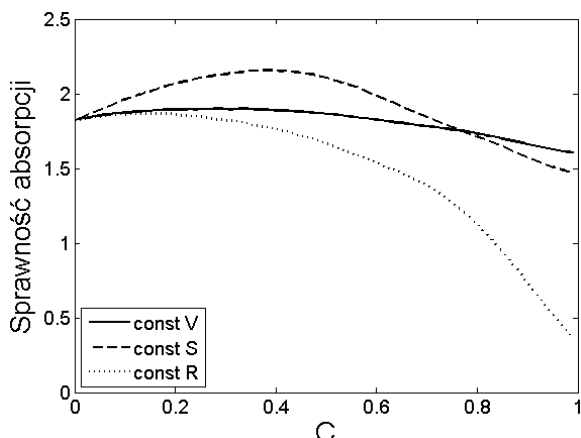
### Sprawność rozpraszania światła

Rysunek 2 przedstawia współczynnik sprawności absorpcji światła w funkcji  $C$ . Analogicznie jak w poprzednim przypadku badana wartość ulega zmianie w zależności od współczynnika przenikania się cząsteczek  $C$ . Różnica jest najmniej widoczna przy zachowaniu jednakowej objętości

struktury co może świadczyć o tym, że jest to kluczowy element charakteryzujący właściwości absorpcyjne agregatów sadzy.



Rys. 1. Zmiana współczynnika sprawności rozpraszania światła w zależności od stopnia przenikania się cząsteczek C.  
Fig. 1. The light scattering efficiency as a function of the overlap coefficient C.



Rys. 2. Zmiana współczynnika sprawności absorpcji światła w zależności od stopnia przenikania się cząsteczek C.  
Fig. 2. The light absorption efficiency as a function of the overlap coefficient C.

## Symulacje dla zmiennej długości fali

W kolejnych sytuacjach długość fali  $\lambda$  zmieniała się od 400nm do 800nm (pasmo światła widzialnego) z krokiem 4nm. W tym zakresie zespolony współczynnik załamania światła  $m$  dla sadzy może być uznany za stały. Rysunek 3 przedstawia zmiany sprawności ekstynkcji w zależności od  $\lambda$ . Badany agregat charakteryzuje się stałą objętością dla wszystkich stopni przenikania się cząsteczek.

$C=0$  przedstawia powszechnie wykorzystywane modele agregatów fraktalnych (kontakt punktowy), natomiast  $C=0,25$  opisuje rzeczywisty stopień przenikania się cząsteczek sadzy, wyznaczony na podstawie analizy TEM [4].  $C=1$  przedstawia kulę o objętości równej objętości analizowanego agregatu - jest to kolejne uproszczenie wykorzystywane w symulacjach. Wszystkie trzy funkcje są różne i dowodzą, że sposób połączeń międzycząsteczkowy ma wyraźny wpływ na właściwości optyczne agregatów.

## Diagramy światła rozproszonego

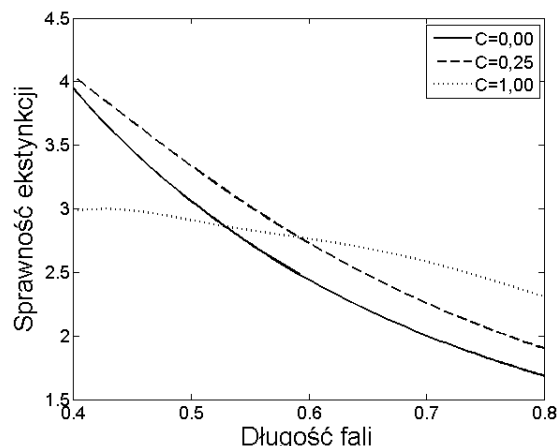
Cechy morfologiczne agregatów o niezerowym współczynniku  $C$  różnią się od tych zbudowanych z cząsteczek będących w kontakcie punktowym. Największe zmiany obserwowane są dla parametru  $K_f$ . Brasil, wraz ze swoim

zespołem, ustalił, że w przypadku sadzy zmienia się on według zależności [5]

$$K_f = K_{f0} e^{2.2 \cdot C} \quad (2)$$

w której  $K_{f0}$  jest pierwotną wartością współczynnika skalującego (dla cząsteczek znajdujących się w kontakcie punktowym). Z tego powodu, w przypadku  $C > 0$ , wskazane jest aby modele struktur tworzone były w oparciu o  $K_{f0}$ , a podczas procesu agregacji cząsteczki w określony sposób nachodziły na siebie. Przedstawiony algorytm umożliwia generowanie agregatów o parametrach fraktalnych bardziej zbliżonych do rzeczywistych.

Okazało się, że dla małych agregatów sadzy, wygenerowanych w warunkach laboratoryjnych, możliwe jest przyjęcie uproszczenia  $C=0$  oraz pominięcie zmian wartości  $K_f$ . Dodatkowym warunkiem jest zachowanie promienia bezwładności  $R_g$ . Diagramy światła rozproszonego uzyskane dla obu typów struktur są niemal identyczne. Wnioskujemy zatem, że w przypadku małych agregatów określenie połączeń międzycząsteczkowych wyłącznie na podstawie analizy diagramów światła rozproszonego jest bardzo utrudnione, lub wręcz niemożliwe.



Rys. 3. Zmiana współczynnika sprawności ekstynkcji światła w zależności od długości fali  $\lambda$ .  
Fig. 3. The light extinction efficiency as a function of the laser wavelength  $\lambda$ .

## Literatura

- [1] Sorensen C.M., Light scattering by fractal aggregates: A review, *Aerosol Science and Technology*, 35 (2001), nr 2, 648-687.
- [2] Schmidt H.J., Tejwani S., Artelt C., Peukert W., Monte carlo simulation of aggregate morphology for simultaneous agglomeration and sintering, *Journal of Nanoparticle Research*, 6 (2004), nr 6, 613-626.
- [3] Draine B.T., Flatau P.J., Discrete-dipole approximation for scattering calculations, *Journal of the Optical Society of America A*, 11 (1994), nr 4, 1491-1499.
- [4] Oltmann H., Reimann J., Will S., Wide-angle light scattering (WALS) for soot aggregates characterization, *Combustion and Flame*, 157 (2010), nr 3, 516-522.
- [5] Brasil A.M., Farias T.L., Carvalho G., Koylu U.O., Numerical characterization of the morphology of aggregated particles, *Journal of Aerosol Science*, 32 (2001), nr 4, 489-508.

**Autorzy:** mgr inż. Krzysztof Skorupski, Politechnika Wroclawska, Katedra Metrologii Elektronicznej i Fotonicznej, ul. B. Prusa 53/55, 50-317 Wrocław, E-mail: krzysztof.skorupski@pwr.wroc.pl;  
prof. dr hab. inż. Janusz Mroczka, Politechnika Wroclawska, Katedra Metrologii Elektronicznej i Fotonicznej, ul. B. Prusa 53/55, 50-317 Wrocław, E-mail: janusz.mroczka@pwr.wroc.pl;