

# 不可溶性固态内核霾滴的散射及吸收特性分析

陈玲红<sup>1</sup> 蒋一奇<sup>1</sup> 孙洋洋<sup>1</sup> Gérard Grehan<sup>2</sup> 高翔<sup>1</sup> 岑可法<sup>1</sup>

<sup>1</sup>浙江大学能源清洁利用国家重点实验室, 浙江 杭州 310027

<sup>2</sup>UMR 6614/CORIA, CNRS/Université et INSA de Rouen, Saint Etienne du Rouvray, 76800, France

**摘要** 为研究大气环境不可溶性固态内核霾滴的光学性质,以纤维素、石英、聚苯乙烯、赤铁矿及碳黑5种典型凝结核为例,采用核-壳模型计算含不同种类内核霾滴的散射、吸收、消光等效率因子,重点讨论非吸收性内核、弱吸收性内核、强吸收性内核以及霾滴尺度等参数变化对霾滴光学特性的影响。研究表明,与吸收性内核霾滴相比,非吸收性内核霾滴的散射较强,PM<sub>2.5</sub>霾滴的散射与霾滴尺度参数 $y$ 、内核尺度参数 $x$ 以及内核复折射率 $m_1$ 等非线性相关;霾滴的吸收效率因子主要取决于内核相对尺度 $\beta$ 与内核复折射率。研究结果有助于进一步开展大气雾霾能见度精确评估以及高湿环境多相流复杂介质的激光测量等研究。

**关键词** 大气光学; 霾滴; 不可溶性固态内核; 核-壳模型; 散射; 吸收

中图分类号 O436.2 文献标识码 A

doi: 10.3788/CJL201542.0308001

## Analysis of Absorption and Scattering Properties of Water Host Haze Droplet with Insoluble Solid Inclusion

Chen Linghong<sup>1</sup> Jiang Yiqi<sup>1</sup> Sun Yangyang<sup>1</sup> Gérard Grehan<sup>2</sup> Gao Xiang<sup>1</sup> Cen Kefa<sup>1</sup>

<sup>1</sup>State Key Laboratory of Clean Energy Utilization, Zhejiang University, Hangzhou, Zhejiang 310027, China

<sup>2</sup>UMR 6614/CORIA, CNRS/Université et INSA de Rouen, Saint Etienne du Rouvray, 76800, France

**Abstract** The effect of a insoluble solid inclusion on optical property of a haze droplet is investigated. The efficiencies such as scattering, absorption, and extinction of a haze droplet with five nuclei including cellulose, quartz, polystyrene, hematite, and soot are calculated by using a core-shell model, respectively. Besides the haze size, the parameters including size of non-absorbent nucleus, weak-absorbent one, strong-absorbent core are discussed. The results showed that scattering of a PM<sub>2.5</sub> haze droplet with a non-absorbent nucleus is stronger than that with an absorbent one. The scattering of a PM<sub>2.5</sub> haze droplet is nonlinearly dependent on its size parameter  $y$ , the nucleus size  $x$ , and the complex refractive index  $m_1$ . Absorption of the droplet is determined by its relative diameter  $\beta$  and  $m_1$ . The above results may give guidance for further study on accurate assessment of haze visibility and laser diagnostics of multiphase flow complex medium in high humidity environment.

**Key words** atmospheric optics; haze droplet; insoluble solid inclusion; core-shell model; scattering; absorption

**OCIS codes** 120.5820; 260.2710

## 1 引言

近年来,我国多个城市出现的大气雾霾事件因交通、健康等问题日益引起人们重视。雾霾中的霾滴粒子是指粒径小于2.5  $\mu\text{m}$ 、未被活化的吸湿增长粒子,是影响大气辐射传输及大气能见度的主要因素<sup>[1-5]</sup>。Ehn等<sup>[6]</sup>指出大气中几乎所有气溶胶粒子均有成为霾滴凝结核的潜力。根据凝结核的溶解性,霾滴粒子主要可

收稿日期: 2014-08-12; 收到修改稿日期: 2014-09-24

基金项目: 国家自然科学基金(51206144)、浙江省自然科学基金(LY12E06003)、环保部公益项目(201409008-4)、高等学校学科创新引智计划(B08026)

作者简介: 陈玲红(1972—),女,博士,副教授,主要从事化石燃料燃烧机理、能源清洁利用、细微颗粒物检测与控制等方面的研究。E-mail: chenlh@zju.edu.cn

分为两类,一类为均质霾滴粒子,另一类为非均质霾滴粒子。

大气中的硫酸盐、硝酸盐、海盐及可溶性有机物等凝结核发生潮解生成饱和溶液滴,进一步吸水生长易形成均质霾滴粒子。当霾滴表面饱和水汽压与环境水汽压达到平衡时,可根据 Raoult 定律确定霾滴的稳定粒径,结合 Hanel 的盐核吸湿增长复折射率变化规律,采用米氏理论可计算出均质霾滴的光学特性<sup>[1,7-8]</sup>。

沙尘、元素碳及部分有机碳为代表的不可溶性凝结核吸湿增长可形成含有固态核心的非均质霾滴粒子。实际大气中,不溶性气溶胶与可溶性物质易以内混态形式存在,如碳黑排放过程中极易吸附同时排放的 SO<sub>2</sub>,在表面形成硫酸盐<sup>[9]</sup>。高湿环境中,可溶性物质吸湿潮解,在颗粒表面形成液膜,增大不可溶颗粒的粒径同时减小接触角,不可溶颗粒只需混合少量(约 5%)易溶性物质,便能够成为凝结核<sup>[10]</sup>。

非均质霾滴粒子的光学特性受混合形式、内核的种类、物性等诸多因素的影响,胡帅等<sup>[11]</sup>采用 Aden-Kerker 模型计算了含矿质型不可溶性气溶胶内核、粒径为 4 μm 的霾滴散射特性效率因子以及 0°相函数,认为霾滴散射特性与内核相对粒径变化关系较为复杂。Pérez 等<sup>[11]</sup>采用单颗粒散射反照率法得出碳黑、沙尘等为内核的核-壳模式是大气颗粒物的主要混合形式。Liu 等<sup>[12]</sup>结合蒙特卡洛法及光线示踪法分析比较内混态与外混态的碳黑-水云滴光学特性,认为相同条件下前者吸收性较强。而 Wang 等<sup>[13]</sup>使用核-壳模型计算得出碳黑霾滴的吸收特性取决于其内核的尺度,内核直径较小时,外混态霾滴的吸收性较强于内混态,当内核直径较大时,内混态霾滴的吸收性较强。Ramachandran 等<sup>[14]</sup>采用核-壳模型分析发现碳黑内核-硫酸盐包层气溶胶的单次散射反照率主要对内核相对粒径较为敏感。Michel Flores 等<sup>[15]</sup>通过光腔衰荡光谱实验研究分析发现尺度参数小于 3 的非吸收气溶胶的消光效率因子随粒径增大而增大,增大速率与内核折射率呈正相关。

目前,含固态内核霾滴的研究主要集中于分析凝结核吸湿性、混合形式与霾滴光学特性的关系,对于霾滴尺度、内核组分及内核尺度等因素对霾滴散射及吸收特性影响的研究还未见报道。本文选取沙尘、植物纤维素、二次有机气溶胶以及碳黑等不可溶性气溶胶为内核,采用核-壳模型,分析讨论非吸收内核、弱吸收内核、强吸收内核等含有不同物性固态内核的不同尺度霾滴散射、吸收等光学特性及其影响因素。

## 2 理论模型

假设非均质霾滴粒子的内核为不溶于水的固态球形粒子,水均匀附着于内核的表面,该类霾滴可看作是由球形固态内核与水膜包层构成的双层同心球,如图 1 所示。不可溶性固态内核直径为  $D_i$ ,内核复折射率为  $m_i=n_1-ik_1$ ,附有水膜包层的霾滴直径为  $D_o$ ,水膜包层的复折射率为  $m_2=n_2-ik_2$ 。雾霾内核的复折射率不受水膜包层的影响。

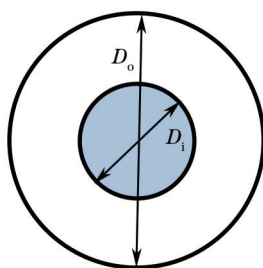


图 1 含固态内核的非均质霾滴模型

Fig.1 Model of heterogeneous haze droplet with solid inclusion

由 Forward-Scattering 理论,双层同心球霾滴的散射效率因子  $Q_{sca}$  及消光效率因子  $Q_{ext}$  可表示为

$$Q_{ext} = \frac{2}{y^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) \text{Re}(a_n + b_n), \quad (1)$$

$$Q_{sca} = \frac{2}{y^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) (|a_n|^2 + |b_n|^2), \quad (2)$$

式中霾滴的尺度参数  $y = \pi D_o / \lambda$ ,  $\lambda$  为入射波长,根据 Bohren 及 Huffman 定理<sup>[16]</sup>,双层同心球米氏系数  $a_n$  和  $b_n$  可表示为

$$a_n = \frac{(\tilde{D}_n/m_2 + n/y)\psi_n(y) - \psi_{n-1}(y)}{(\tilde{D}_n/m_2 + n/y)\xi_n(y) - \xi_{n-1}(y)}, \quad (3)$$

$$b_n = \frac{(m_2\tilde{G}_n + n/y)\psi_n(y) - \psi_{n-1}(y)}{(m_2\tilde{G}_n + n/y)\xi_n(y) - \xi_{n-1}(y)}, \quad (4)$$

其中,  $\psi_n(y) = yj_n(y)$ ,  $\chi_n(y) = -yy_n(y)$ , 以及  $\xi_n(y) = yh_n^{(1)}(y)$  均为相关 Riccati-Bessel 方程,  $j_n(y)$  及  $y_n(y)$  为球贝塞尔函数,  $h_n^{(1)}(y) = j_n(y) + iy_n(y)$  为球汉克尔函数的第一种形式,  $\tilde{D}_n$ 、 $\tilde{G}_n$ 、 $A_n$ 、 $B_n$  可表示为

$$\tilde{D}_n = \frac{D_n(m_2y) - A_n\chi_n'(m_2y)/\psi_n(m_2y)}{1 - A_n\chi_n(m_2y)/\psi_n(m_2y)}, \quad (5)$$

$$\tilde{G}_n = \frac{D_n(m_2y) - B_n\chi_n'(m_2y)/\psi_n(m_2y)}{1 - B_n\chi_n(m_2y)/\psi_n(m_2y)}, \quad (6)$$

$$A_n = \psi_n(m_2x) \frac{mD_n(m_1x) - D_n(m_2x)}{mD_n(m_1x)\chi_n(m_2x) - \chi_n'(m_2x)}, \quad (7)$$

$$B_n = \psi_n(m_2x) \frac{D_n(m_1x)/m - D_n(m_2x)}{D_n(m_1x)\chi_n(m_2x)/m - \chi_n'(m_2x)}, \quad (8)$$

其中, 内核尺度参数  $x = \pi D_i/\lambda$ ,  $m = m_1/m_2$ ,  $D_n = \psi_n(mx)/\psi_n(mx)$ 。

吸收效率因子  $Q_{\text{abs}}$  为

$$Q_{\text{abs}} = Q_{\text{ext}} - Q_{\text{sca}}. \quad (9)$$

### 3 结果与讨论

#### 3.1 模型验证

不可溶性固态内核霾滴的光学特性与内核尺度、水膜厚度等参数有关, 定义内核相对尺度  $\beta$  为固态内核在整个霾滴粒子中所占的相对比例, 即

$$\beta = \frac{D_i}{D_o}. \quad (10)$$

当  $\beta=0$  时霾滴为不含内核的纯水粒子,  $\beta=1$  时为无水膜包层的纯固态内核粒子。

采用核-壳模型计算含碳黑内核的霾滴消光截面  $C_{\text{ext}} = \frac{\pi D_o^2}{4} Q_{\text{ext}}$  随内核相对直径  $\beta$  的变化, 结果如图 2 所示, 内核尺度参数不变, 随着  $\beta$  的增大, 即随着水膜厚度的逐渐减小, 霾滴消光截面单调线下降, 该结果与文献[17]几乎相同。

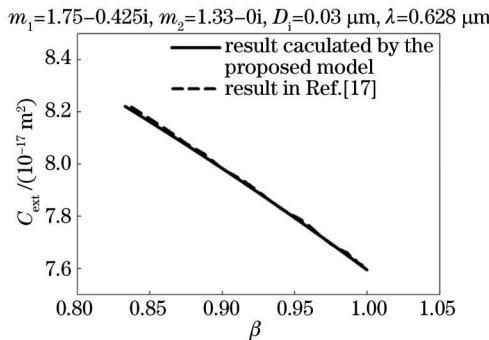


图 2 不同模型计算所得碳黑霾滴的消光截面对比

Fig.2 Comparison of of extinction section of the haze drops by different models

#### 3.2 霾滴光学特性分析

纤维素、石英、聚苯乙烯、赤铁矿、碳黑 5 种固态内核的复折射率如表 1 所示, 由表中折射率的虚部可知, 石英、纤维素及聚苯乙烯为非吸收性粒子, 赤铁矿为弱吸收性粒子, 碳黑为强吸收性粒子。将含固态核心霾

滴  $Q_{sca}$ ,  $Q_{abs}$  及  $Q_{ext}$  看作与内核相对尺度  $\beta$  相关的函数,水膜折射率  $m_2=1.33-0i$ ,采用核-壳模型分别计算 6 种霾滴尺度参数下 ( $y=2.95, 4.43, 5.90, 8.85, 11.80, 14.76$ , 在  $\lambda =0.532 \mu\text{m}$  时, 分别对应  $D_0=0.5, 0.75, 1, 1.5, 2, 2.5 \mu\text{m}$ ), 上述各组内核霾滴  $Q_{sca}$ ,  $Q_{abs}$  与  $Q_{ext}$  随  $\beta$  的变化曲线。

表 1 内核折射率

Table 1 Refractive index of core

| Core component | Refractive index ( $\lambda =0.532 \mu\text{m}$ ) | Reference |
|----------------|---|-----------|
| Cellulose      | 1.47-0i   | [18]      |
| Quartz         | 1.56-0i   | [19]      |
| Polystyrene    | 1.6-0i  | [18]      |
| Hematite       | 3.1-0.09i   | [1]       |
| Soot           | 1.83-0.71i  | [20]      |

### 3.2.1 散射效率因子

固态内核霾滴的散射效率因子  $Q_{sca}$  的计算结果如图 3 所示。由图 3 可知,相同条件下,非吸收内核霾滴  $Q_{sca}$  普遍强于吸收内核霾滴。

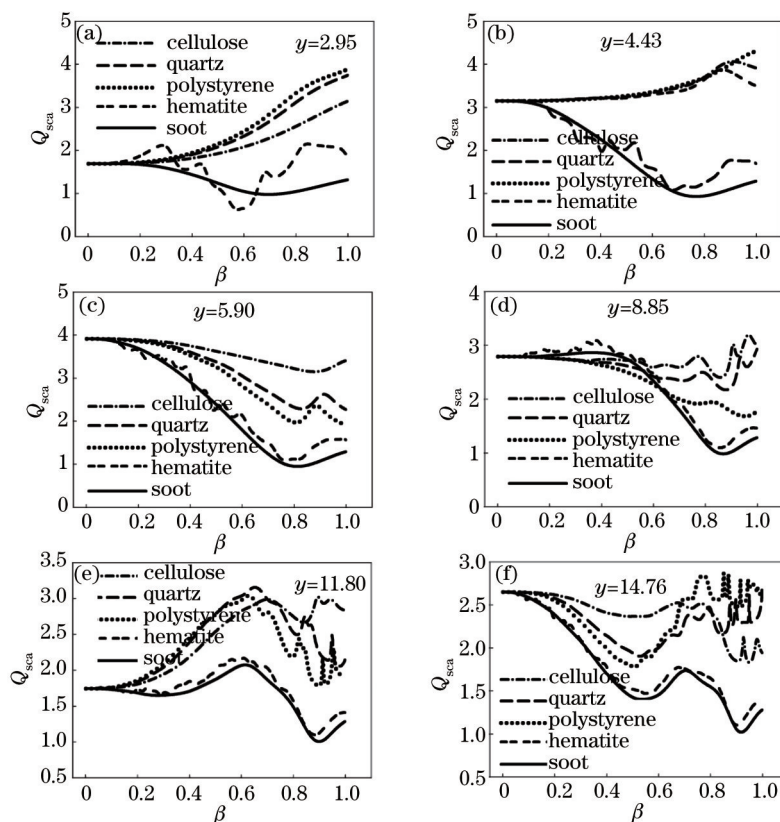


图 3 5 种固态内核霾滴的散射效率因子  $Q_{sca}$  计算结果

Fig.3 Calculated results of scattering efficiency factor  $Q_{sca}$  with five kinds of haze drop size parameter

随  $\beta$  增加  $Q_{sca}$  变化较复杂,内核组分及霾滴外径对  $Q_{sca}$  的变化特征均有显著影响。对于含非吸收性内核的霾滴,在  $\beta$  增大初期,  $Q_{sca}$  呈现一段单调变化,上述 6 种霾滴尺度参数  $y$  下,  $Q_{sca}$  单调变化结束时对应的  $\beta$  分别为 1, 0.9, 0.8, 0.7, 0.6 及 0.5。且在该区间内,  $Q_{sca}$  变化速率从高到低分别为纤维素、石英、聚苯乙烯内核霾滴,即内核折射率实部越大,  $Q_{sca}$  变化越快,该结果与 Michel<sup>[15]</sup> 实验得到的结论相似。同时,如图 3(e)、(f) 所示,对于  $y=11.80$  及  $y=14.76$  的霾滴,当  $\beta$  分别大于 0.8 及 0.65 时,对应内核尺度参数  $x$  分别为 9.44 及 9.59,  $Q_{sca}$  发生强烈米氏振荡。

吸收性内核霾滴  $Q_{sca}$  随  $\beta$  的变化特性较相似,相同  $y$  下,赤铁矿霾滴及碳黑霾滴  $Q_{sca}$  随  $\beta$  的变化曲线趋势基本一致。当  $y < 4.43$  时,前者曲线存在明显振荡,这可能与内核的复折射率实部值有关,随着  $y$  的增大,



振荡逐渐减小,上述两种霾滴  $Q_{sca}$  随  $\beta$  的变化曲线逐渐趋于重合。为确定  $y$  大于何值时,内核折射率对  $Q_{sca}$  的影响可被忽略,定义某  $\beta$  区间  $(\beta_i, \beta_j)$  内赤铁矿霾滴与碳黑霾滴  $Q_{sca}$  比值的平均值  $\bar{R}_{sca}$  为

$$\bar{R}_{sca} = \frac{1}{\beta_j - \beta_i} \int_{\beta_i}^{\beta_j} \frac{Q_{sca, hematite}(\beta)}{Q_{sca, soot}(\beta)} d\beta, \quad 0 \leq \beta_i \leq \beta_j \leq 1. \quad (11)$$

表2列举了上述6种霾滴粒径的  $\bar{R}_{sca}$ 。由表2可知,当  $\beta$  处于0~0.2时,  $\bar{R}_{sca}$  均非常接近1,霾滴  $Q_{sca}$  几乎与同等粒径的均质水滴相同,内核存在对其影响可被忽略。随着  $\beta$  的增大,内核对霾滴  $Q_{sca}$  的影响逐渐增强,  $\bar{R}_{sca}$  逐渐偏离1,并在  $\beta$  处于0.8~1区间内时达到最大值。随着  $y$  的增大,两种霾滴的  $Q_{sca}$  曲线趋于重合,  $\bar{R}_{sca}$  均值偏离1的程度总体上逐渐减小。 $\beta$  在整个变化区间(0~1)内且  $y \geq 5.90$  时或  $\beta$  在5个子区间(如表2所示)内且  $y \geq 11.80$  时,  $\bar{R}_{sca}$  满足  $0.9 < \bar{R}_{sca} < 1.1$ 。分析  $Q_{sca}$  过程中可将赤铁矿及碳黑看作同一种吸收内核,忽略其折射率的差异。

表2 不同  $\beta$  区间内的  $\bar{R}_{sca}$   
Table 2  $\bar{R}_{sca}$  in different  $\beta$  sections

| $y$   | Kernel relative size $\beta$ |         |         |         |       |       |
|-------|------------------------------|---------|---------|---------|-------|-------|
|       | 0~0.2                        | 0.2~0.4 | 0.4~0.6 | 0.6~0.8 | 0.8~1 | 0~1   |
| 2.95  | 1.027                        | 1.184   | 0.898   | 1.303   | 1.764 | 1.235 |
| 4.43  | 1.010                        | 0.939   | 1.114   | 1.173   | 1.466 | 1.140 |
| 5.90  | 0.992                        | 1.021   | 1.025   | 1.143   | 1.301 | 1.097 |
| 8.85  | 1.015                        | 1.038   | 1.038   | 1.061   | 1.155 | 1.061 |
| 11.80 | 1.004                        | 1.040   | 1.056   | 1.049   | 1.098 | 1.049 |
| 14.76 | 1.000                        | 1.013   | 1.043   | 1.047   | 1.078 | 1.036 |

### 3.2.2 吸收效率因子

赤铁矿霾滴及碳黑霾滴的吸收效率因子  $Q_{abs}$  随  $\beta$  的变化曲线分别如图4(a)与图4(b)所示。由图4可知,不同霾滴尺度参数  $y$  下,上述两种内核霾滴  $Q_{abs}$  随  $\beta$  的变化趋势较为相似,基本均随  $\beta$  的增大呈上升趋势。差异主要体现在:1) 赤铁矿霾滴  $Q_{abs}$  的振荡现象比碳黑霾滴明显,这可能与内核的复折射率有关;2) 相同条件下相较于赤铁矿霾滴,碳黑霾滴  $Q_{abs}$  更高,这可能由于两者折射率虚部的差异;3) 对于碳黑霾滴,相同  $\beta$  下的  $Q_{abs}$  于  $y$  呈负相关。

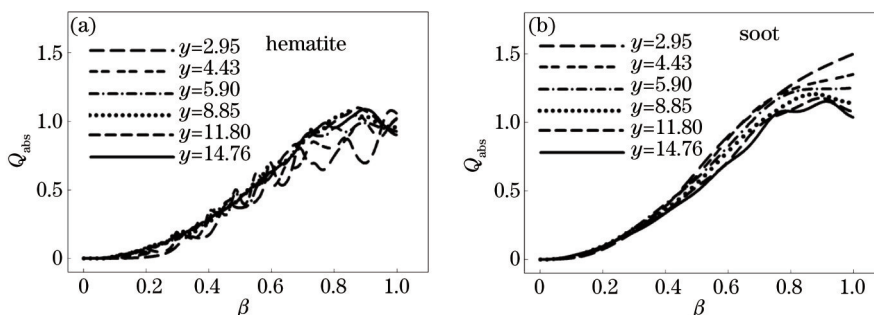


图4 不同霾滴尺度参数下  $Q_{abs}$  与  $\beta$  的关系。(a) 赤铁矿内核;(b) 碳黑内核

Fig.4 Relationship between  $Q_{abs}$  and  $\beta$  with different haze drop size parameters. (a) Hematite core; (b) soot core

当  $y$  增大到一定值以后,两种霾滴  $Q_{abs}$  随  $\beta$  的变化曲线趋向于一致,  $Q_{abs}$  随  $\beta$  的变化逐渐趋向于  $y=14.76$  时的曲线。以  $y=14.76$  时霾滴  $Q_{abs}$  为基准,计算其他尺度霾滴  $Q_{abs}$  对  $2.5 \mu m$  霾滴  $Q_{abs}$  的相对偏差  $\varepsilon_i$  :

$$\varepsilon_i = \frac{Q_{abs,i} - Q_{abs,6}}{Q_{abs,6}}, \quad (12)$$

式中  $i=1\sim 6$ ,  $Q_{abs,i}$  分别对应  $y=2.95, 4.43, 5.90, 8.85, 11.80$  和  $14.76$  这6种尺度霾滴的吸收效率因子。

为说明  $y$  满足何值,其对  $Q_{abs}$  的影响可被忽略,统计了  $\beta$  在0~1区间内相对偏差  $\varepsilon_i$  的均值  $\bar{\varepsilon}_i$  及标准差  $\sigma_i$ 。同时,由于当霾滴的内核尺度参数  $x$  接近0时,霾滴的  $Q_{abs}$  几乎为零,较小绝对偏差就会引起较大的相对偏差,导致  $\varepsilon_i$  较大波动,又统计  $Q_{abs} > 0.1$  (即赤铁矿霾滴取  $\beta > 0.3$ , 碳黑霾滴取  $\beta > 0.2$ ) 时,相对偏差的平均值  $\bar{\varepsilon}_i$  及标准差  $\sigma_i$ , 结果如表3所示。

表 3  $Q_{\text{abs}}$  平均相对偏差  $\bar{\varepsilon}_i$  及标准差  $\sigma_i$

Table 3 Mean relative deviation  $\bar{\varepsilon}_i$  and standard deviation  $\sigma_i$  of  $Q_{\text{abs}}$

| Parameter             | Hematite core droplet |               | Soot core droplet |               |
|-----------------------|-----------------------|---------------|-------------------|---------------|
|                       | $\beta > 0$           | $\beta > 0.3$ | $\beta > 0$       | $\beta > 0.2$ |
| $\bar{\varepsilon}_1$ | -0.378                | -0.179        | 0.027             | 0.192         |
| $\bar{\varepsilon}_2$ | -0.247                | -0.065        | 0.034             | 0.179         |
| $\bar{\varepsilon}_3$ | -0.158                | -0.033        | 0.063             | 0.150         |
| $\bar{\varepsilon}_4$ | -0.076                | -0.003        | 0.029             | 0.089         |
| $\bar{\varepsilon}_5$ | -0.037                | -0.005        | 0.005             | 0.035         |
| $\sigma_1$            | 0.336                 | 0.148         | 0.338             | 0.116         |
| $\sigma_2$            | 0.331                 | 0.132         | 0.301             | 0.060         |
| $\sigma_3$            | 0.275                 | 0.075         | 0.187             | 0.048         |
| $\sigma_4$            | 0.226                 | 0.056         | 0.146             | 0.034         |
| $\sigma_5$            | 0.161                 | 0.038         | 0.094             | 0.023         |

若将平均相对偏差  $\bar{\varepsilon}_i$  小于 10% 作为霾滴粒径  $D_0$  对  $Q_{\text{abs}}$  影响可被忽略的必要条件。当  $\beta > 0$  时, 赤铁矿和碳黑霾滴对应的  $y$  分别为 8.85 及 2.95, 但此时两种霾滴的  $\sigma_i$  均较大, 说明此时相对偏差波动剧烈, 用此区间内的  $\bar{\varepsilon}_i$  分析  $D_0$  对  $Q_{\text{abs}}$  的影响存在较大不确定性。当满足  $Q_{\text{abs}} > 0.1$  后, 平均相对偏差  $\bar{\varepsilon}_i$  对应的  $\sigma_i$  明显减小, 赤铁矿和碳黑霾滴  $y$  分别为 5.90 及 8.85 时, 两种霾滴相对偏差的平均值及标准差均小于 10%, 可认为此时霾滴尺度参数  $y$  对  $Q_{\text{abs}}$  随  $\beta$  变化的影响可被忽略。

同时, 为确定满足什么条件时, 内核折射率对  $Q_{\text{abs}}$  的影响可被忽略, 定义  $R_{\text{abs}}$  为赤铁矿霾滴与碳黑霾滴  $Q_{\text{sca}}$  的比值, 即

$$R_{\text{abs}} = \frac{Q_{\text{abs, hematite}}}{Q_{\text{abs, soot}}} \quad (13)$$

图 5 为选取的 6 种  $y$  的  $R_{\text{abs}}$  随  $\beta$  的变化曲线。随着  $\beta$  增大,  $R_{\text{abs}}$  均呈现先从 0 振荡上升, 后趋于定值的趋势。从图 5 中看出, 6 种霾滴尺度参数  $y$  下  $R_{\text{abs}}$  趋向于定值时的  $\beta$  分别约为 1, 0.7, 0.6, 0.4, 0.3 及 0.25, 对应  $x$  约在 3~3.5 范围内, 说明当  $x > 3$  时, 赤铁矿霾滴及碳黑霾滴  $Q_{\text{abs}}$  的比值开始趋向于定值。同时, 当  $y$  增大到 8.85 后,  $R_{\text{abs}}$  的稳定值趋向于 1。即当霾滴尺度  $y > 8.85$  且内核尺度  $x > 3$  时, 分析  $Q_{\text{abs}}$  过程中可将赤铁矿及碳黑看作同一种吸收内核, 忽略其折射率  $m_i$  差异。

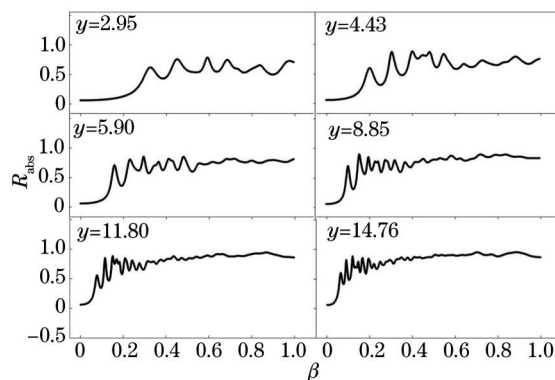


图 5 不同霾滴尺度的  $R_{\text{abs}}$

Fig.5  $R_{\text{abs}}$  with different haze drop size parameters

综上, 当  $y > 8.85$  且  $x > 3$  时, 含吸收性内核霾滴的吸收效率因子  $Q_{\text{abs}}$  对霾滴尺度  $y$  与内核折射率  $m_i$  均不敏感, 其主要受内核相对粒径  $\beta$  的影响。

### 3.2.3 消光效率因子

消光效率因子  $Q_{\text{ext}}$  随  $\beta$  的变化曲线如图 6 所示, 与  $Q_{\text{sca}}$  类似, 其变化特征受到内核组分、内核尺度及霾滴尺度的共同影响。

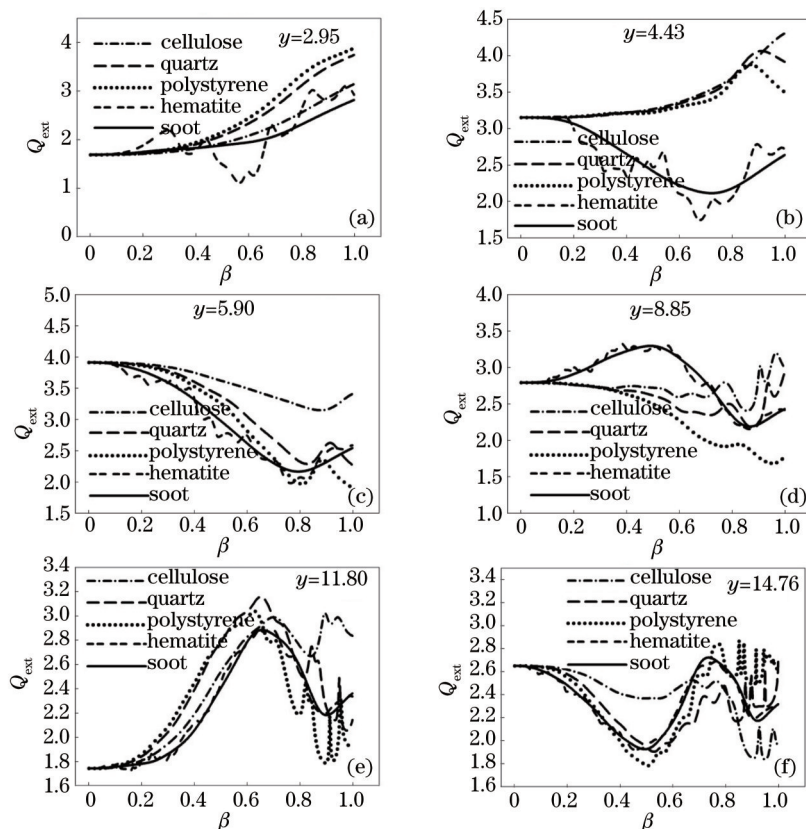


图6 5种固态内核霾滴的消光效率因子  $Q_{ext}$  计算结果

Fig.6 Calculated results of extinction efficiency factor  $Q_{ext}$  with five different kinds of haze drop size parameter

由图6可知,霾滴的  $Q_{ext}$  随着  $\beta$  增加开始均出现一段类似水平线,这说明内核粒径较小时,霾滴的消光特性与同等粒径的均质水滴相同,即内核对霾滴的影响可被忽略;随着内核粒径的进一步增大,  $Q_{ext}$  发生变化,不同内核组分有所差异。取霾滴  $Q_{ext}$  改变1%时  $\beta$  的最小值 ( $\beta_{min}$ ) 体现霾滴内核的散射与吸收作用,表4列出了不同内核种类、不同尺度霾滴的  $\beta_{min}$ ,由表4可知,  $\beta_{min}$  主要集中在0.1~0.3,非吸收内核霾滴的  $\beta_{min}$  几乎是吸收内核霾滴的两倍。内核尺度参数  $x$  以及霾滴尺度参数  $y$  对  $\beta_{min}$  影响则不明显。

表4  $Q_{ext}$  改变1%时的  $\beta_{min}$

Table 4  $\beta_{min}$  when  $Q_{ext}$  has 1% change

| Size parameter | Kernel relative size $\beta_{min}$ |        |             |          |       |
|----------------|------------------------------------|--------|-------------|----------|-------|
|                | Cellulose                          | Quartz | Polystyrene | Hematite | Soot  |
| $y$            |                                    |        |             |          |       |
| 2.95           | 0.199                              | 0.169  | 0.160       | 0.097    | 0.120 |
| 4.43           | 0.317                              | 0.285  | 0.275       | 0.183    | 0.157 |
| 5.90           | 0.235                              | 0.195  | 0.181       | 0.095    | 0.115 |
| 8.85           | 0.189                              | 0.195  | 0.210       | 0.101    | 0.101 |
| 11.80          | 0.129                              | 0.111  | 0.105       | 0.118    | 0.117 |
| 14.76          | 0.193                              | 0.155  | 0.141       | 0.056    | 0.079 |

## 4 结 论

大气不可溶性固态内核霾滴粒子的光学特性主要受其混合形式、内核种类、物性等诸多因素的影响,采用核-壳模型计算纤维素、石英、聚苯乙烯、赤铁矿及碳黑5种固态核心霾滴的散射、吸收及消光特性,分析了非吸收内核、弱吸收内核、强吸收内核的尺度参数  $x$ , 相对尺度  $\beta$ , 以及霾滴尺度参数  $y$  等参数对含固态内核  $PM_{2.5}$  霾滴光学特性的影响,主要结论如下:

1) 霾滴散射效率因子  $Q_{sca}$  与其内核尺度、内核折射率及霾滴尺度等明显相关。对于含非吸收内核霾滴,在内核增大初期,  $Q_{sca}$  出现一段单调变化,且内核折射率实部越大,  $Q_{sca}$  变化速率越大;当内核尺度参数  $x > 9.5$

时,  $Q_{\text{sca}}$  出现米氏振荡现象; 吸收内核霾滴  $Q_{\text{sca}}$  随  $\beta$  的变化特性较为相似, 当  $y \geq 11.80$  时, 分析霾滴  $Q_{\text{sca}}$  过程中可将赤铁矿及碳黑看作同一种吸收内核, 忽略内核折射率  $m_1$  的差异。

2) 霾滴吸收效率因子  $Q_{\text{abs}}$  与其内核尺度、内核折射率及霾滴尺度等有关, 其中内核相对尺度  $\beta$  为主要影响参数, 对于赤铁矿及碳黑霾滴, 当  $y > 8.85$  且  $x > 3$  时,  $m_1$  与  $y$  对  $Q_{\text{abs}}$  的影响可被忽略。

3) 内核相对尺度  $\beta$  存在阈值, 对于非吸收内核和吸收性内核的霾滴,  $\beta$  分别超过 0.2 和 0.1 时, 内核对霾滴消光特性有影响。

针对单个含固态内核霾滴的光学特性进行了分析, 多尺度、多物性霾滴混合系统的光学特性今后继续加以研究。

### 参 考 文 献

- 1 Hu Shuai, Gao Taichang, Liu Lei, *et al.*. Analysis of the influence of condensation nuclei on the scattering property of haze drops[J]. *The Journal of Light Scattering*, 2013, 25(4): 338–346.  
胡 帅, 高太长, 刘 磊, 等. 不同凝结核 对霾滴的散射特性影响分析[J]. *光散射学报*, 2013, 25(4): 338–346.
- 2 Bo Guangyu, Liu Dong, Wu Decheng, *et al.*. Two-wavelength lidar for observation of aerosol optical and hygroscopic properties in fog and haze days[J]. *Chinese J Lasers*, 2014, 41(1): 011301.  
伯广宇, 刘 东, 吴德成, 等. 双波长激光雷达探测典型雾霾气溶胶的光学和吸湿性质[J]. *中国激光*, 2014, 41(1): 011301.
- 3 Gong Chunwen, Li Xuebin, Li Jianyu, *et al.*. New method of aerosol extinction coefficient measurement[J]. *Acta Optica Sinica*, 2014, 34(1): 0101001.  
宫纯文, 李学彬, 李建玉, 等. 大气气溶胶消光系数测量新方法[J]. *光学学报*, 2014, 34(1): 0101001.
- 4 Sheng Peixuan. *Atmospheric Physics*[M]. Beijing: Peking University Press, 2003. 310–319.  
盛裴轩. *大气物理学*[M]. 北京: 北京大学出版社, 2003. 310–319.
- 5 Pan Zhenyan, Chen Linghong, Wu Yingchun, *et al.*. Study on measuring carbon particles from coal combustion in hydrogen flame using laser-induced radiation method[J]. *Chinese J Lasers*, 2013, 40(4): 0408003.  
潘振艳, 陈玲红, 吴迎春, 等. 激光诱导辐射法测定燃煤氢气火焰中碳粒子的研究[J]. *中国激光*, 2013, 40(4): 0408003.
- 6 M Ehn, T Petäjä, H Aufmhoff, *et al.*. Hygroscopic properties of ultrafine aerosol particles in the boreal forest: diurnal variation, solubility and the influence of sulfuric acid[J]. *Atmos Chem Phys*, 2007, 7(1): 211–222.
- 7 G Hänel. *The Physical Chemistry of Atmospheric Particles: Hygroscopic Aerosol*[M]. Hampton: A Deepak Publishing, 1984. 1–20.
- 8 Hu Dawei. *Laboratory Simulation of Hygroscopic and Optical Properties of Atmospheric Sub-Micron Particles*[D]. Shanghai: Fudan University, 2012. 6–9.  
胡大伟. *大气中亚微米颗粒物吸湿性及光学特性的实验室模拟研究*[D]. 上海: 复旦大学, 2012. 6–9.
- 9 K S Johnson, B Zuberi, L T Molina, *et al.*. Processing of soot in an urban environment: case study from the Mexico City Metropolitan Area[J]. *Atmos Chem Phys*, 2005, 5(11): 3033–3043.
- 10 E F Mikhailov, S S Vlasenko, I A Podgorny, *et al.*. Optical properties of soot-water drop agglomerates: An experimental study[J]. *J Geophys Res*, 2006, 111(D7): 1–16.
- 11 J C Péré, M Mallet, B Bessagnet, *et al.*. Evidence of the aerosol core-shell mixing state over Europe during the heat wave of summer 2003 by using CHIMERE simulations and AERONET inversions[J]. *Geophys Res Lett*, 2009, 36(9): 1–5.
- 12 L Liu, M I Mishchenko, S Menon, *et al.*. The effect of black carbon on scattering and absorption of solar radiation by cloud droplets [J]. *J Quant Spectrosc Ra*, 2002, 74(2): 195–204.
- 13 Wang Haihua, Sun Xianming. Multiple scattering of light by water cloud droplets with external and internal mixing of black carbon aerosols[J]. *Chin Phy B*, 2012, 21(5): 054204.
- 14 S Ramachandran, R Srivastava. Influences of external vs. core-shell mixing on aerosol optical properties at various relative humidities[J]. *Environ Sci: Process Impacts*, 2013, 15(5): 1070–1077.
- 15 J Michel Flores, R Z Bar-Or, N Bluvshstein, *et al.*. Absorbing aerosols at high relative humidity: linking hygroscopic growth to optical properties[J]. *Atmos Chem Phys*, 2012, 12(12): 5511–5521.
- 16 C F Bohren, D R Huffman. *Absorption and Scattering of Light by Small Particles*[M]. Germany: John Wiley & Sons, 2008. 57–129.
- 17 C Liu, R L Panetta, P Yang. The influence of water coating on the optical scattering properties of fractal soot aggregates[J]. *Aerosol Sci Tech*, 2012, 46(1): 31–43.
- 18 N Sultanova, S Kasarova, I Nikolov. Dispersion properties of optical polymers[J]. *Acta Phys Pol A*, 2009, 116(4): 585–587.
- 19 T Radhakrishnan. Further studies on the temperature variation of the refractive index of crystals[J]. *Proc the Indian Academy of Sciences-Section A*, 1951, 33(1): 22–34.
- 20 H J Hageman, W Gudat, C Kunz. Optical constants from the far infrared to the x-ray region: Mg, Al, Cu, Ag, Au, Bi, C and Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>[J]. *J Opt Soci Am*, 1974, 65(6): 742–744.

栏目编辑: 史 敏