

文章编号: 0253-2239(2007)09-1706-5

# 基于平均质量的悬浮颗粒物的质量密度算法\*

顾 芳 杨 娟 卞保民 贺安之

(南京理工大学 信息物理与工程系, 南京 210094)

**摘要:** 基于米氏(Mie)散射理论得到了粒子计数器测量球形颗粒物质量密度的计算公式。考虑非球形颗粒,从颗粒群粒度分布概念出发,提出了统计意义上的平均质量概念,推导了非球形颗粒物质量密度的理论公式。运用理论公式证明了粒子计数器测量非球形颗粒物质量密度计算公式的合理性,进而给出了基于平均质量的悬浮颗粒物的质量密度算法,该算法只需对两个系数进行标定。实验表明,该算法的质量密度计算值与实际值十分吻合,两者拟合直线的斜率为 0.9713,相关系数为 0.9998。该算法为实现粒子计数器在线测量悬浮颗粒物的质量密度提供了一种可行途径。

**关键词:** 光散射; 质量密度; 粒子计数器; 平均质量

中图分类号: X831.02 文献标识码: A

## Aerosol Mass Density Algorithm Based on Average Mass

Gu Fang Yang Juan Bian Baomin He Anzhi

(Department of Information Physics and Engineering, Nanjing University of Science and Technology, Nanjing 210094)

**Abstract:** Based on Mie scattering theory, the formula for calculating mass concentration of spherical particles by optical particle counter was established. Considering non-spherical particles, starting from particles size distribution, the concept of the average mass was put forward, and the theoretical formula for calculating mass density of non-spherical particles was derived. Using this theoretical formula, the rationality of the calculation formula of optical particle counter for non-spherical particles was verified. The aerosol mass density algorithm based on average mass was proposed, and only two coefficients need to be calibrated in the algorithm. The experimental results agree well with the mass density values calculated by the algorithm, the slope of fitting line is 0.9713 and the correlation coefficient is 0.9998. This algorithm offers a feasible way for the optical particle counter to measure aerosol mass density in real time.

**Key words:** light scattering; mass density; optical particle counter; average mass

## 1 引 言

颗粒物质量密度的测定方法主要有<sup>[1~4]</sup>滤膜称重法、光散射法、 $\beta$ 射线吸收法、压电晶体法及微量振荡天平法等。其中光散射法因具有测量精度高、速度快、可用于在线测量等优点而受到了广泛应用。光散射法又分为颗粒群法<sup>[5]</sup>和单粒子法,基于单粒子光散射的粒子计数法简单可靠,能同时测量悬浮颗粒物的数目浓度和质量密度。阎逢旗等<sup>[6]</sup>利用粒子计数器(OPC)对大气进行长期监测,给出了悬浮

颗粒物质量密度的经验计算公式。本文从颗粒群粒度分布概念出发,推导了非球形颗粒物质量密度的理论公式,给出了基于平均质量的悬浮颗粒物的质量密度算法。实验表明,该算法的质量密度计算值与实际值吻合较好。

## 2 粒子计数器测量系统的工作原理<sup>[7]</sup>

图 1 是粒子计数器测量系统的示意图。当单个颗粒垂直于纸面通过光敏区时,颗粒会散射入射的

\* 南京理工大学优秀博士培养基金(2006)资助课题。

作者简介: 顾 芳(1981-),女,江苏盐城人,博士研究生,主要从事颗粒测试和光学传感器技术等方面的研究。

E-mail: gfnust@yahoo.com.cn

导师简介: 贺安之(1938-),男,四川遂宁人,教授,博士生导师,主要从事激光与现代光学的教学与研究。

E-mail: haz@mail.njust.edu.cn

收稿日期: 2007-01-08; 收到修改稿日期: 2007-05-08

激光。在  $90^\circ$  采光角方向放置一块球面反射镜收集颗粒的散射光,再利用光电探测器将球面反射镜反射的散射光转换成电信号,经前置放大、多通道计数,最终得到颗粒的电压脉冲信号。若不计测量系统的本底噪声,测量的电压脉冲个数即为颗粒个数,电压脉冲信号的幅度则反映颗粒粒径的大小。

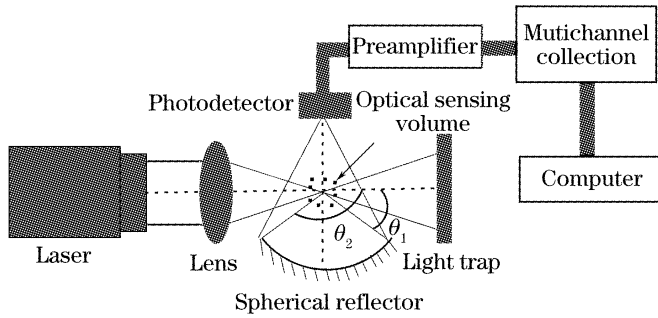


图 1 粒子计数器测量系统的示意图

Fig. 1 Schematic diagram of the measuring system of optical particle counter

### 3 测量球形颗粒物的质量密度公式<sup>[8]</sup>

悬浮颗粒物的质量密度是指单位体积气体中颗粒的总质量。一般情况下,颗粒物中的颗粒是由许多大小不同的颗粒组成,设这些颗粒都为球形且平均密度为  $\rho$ ,若已知单位体积气体内直径为  $D_i$  的颗粒有  $s(D_i)$  个,则球形颗粒物的质量密度可表示为

$$C_s = \frac{\pi}{6} \rho \sum_i s(D_i) D_i^3. \quad (1)$$

根据米氏(Mie)散射理论,若入射光为完全偏振光,球形颗粒的散射光通量  $F$  是对一定立体角  $\Omega$  内散射光强的积分<sup>[9]</sup>:

$$F = \frac{\lambda^2 I_0}{4\pi^2} \int_{\theta_1}^{\theta_2} \frac{i_1 + i_2}{2} \sin \phi \sin \theta d\theta + \frac{\lambda^2 I_0 \cos(2\phi_0)}{4\pi^2} \int_{\theta_1}^{\theta_2} \frac{i_2 - i_1}{2} \sin \phi \sin \theta d\theta, \quad (2)$$

式中  $\lambda$  为入射光波长,  $I_0$  为入射光强度,  $i_1(\theta, n_r, D, \lambda)$  和  $i_2(\theta, n_r, D, \lambda)$  为散射光的强度函数,  $n_r$  为颗粒相对周围介质的折射率,  $\theta$  和  $\phi$  分别为散射角和方位角;  $90^\circ$  采光角对应的采光角范围为  $\theta_1$  到  $\theta_2$ ,  $\theta_1 + \theta_2 = 180^\circ$ ,  $\phi_0 = 90^\circ$ ,  $\phi = 2 \arccos \left\{ \frac{\cos[(\theta_2 - \theta_1)/2]}{\sin \theta} \right\}$ 。

已知球形颗粒的平均密度为  $\rho$ ,在  $0.3 \sim 20 \mu\text{m}$  粒径范围内,根据(2)式对不同折射率球形颗粒的散射光通量  $F$  与直径  $D$  之间的关系进行了数值计算,得到  $F \propto D^2$ 。

由于粒子计数器输出的电压脉冲信号  $u$  是由颗粒散射光通量  $F$  转换得到的,因而  $u \propto D^2$ 。取  $u = AD^2$ ,其中  $A$  是比例系数,利用  $u = AD^2$  得到  $D = (u/A)^{1/2}$ 。因粒子计数器的有限电压范围被等分为  $q$  个电压通道,  $u_i$  表示第  $i$  电压通道内的中值电压,  $u_q$  表示最大中值电压,则  $D_i = (u_i/A)^{1/2}$ 。  $N(u_i)$  为粒子计数器测量的第  $i$  电压通道内的信号脉冲数(颗粒数),由(1)式可知粒子计数器测量球形颗粒物的质量密度计算公式为

$$C_s = \frac{\pi \rho}{6A^{3/2}} \sum_{i=1}^q N(u_i) u_i^{3/2} = k \sum_{i=1}^q N(v_i) v_i^{3/2}, \quad (3)$$

(3) 式中  $k$  为标定系数,与质量密度有相同量纲;  $v_i = u_i/u_q$  表示第  $i$  电压通道内的相对中值电压。

### 4 基于平均质量密度理论公式

自然界中存在的颗粒形状各异,为了表征颗粒大小,定义了许多种与测量原理有关的粒径<sup>[10]</sup>,如筛分直径、体积直径、表面积直径、自由沉降直径及投影面积直径等。将非球形颗粒与体积相等的球形颗粒等效,并将球形颗粒直径定义为非球形颗粒的体积直径  $D_V$ ,一般情况下它们的散射光通量不相等。类似地如果将非球形颗粒等效成具有相同散射光通量的球形颗粒,并将球形颗粒直径定义为非球形颗粒的散射光通量直径  $D_F$ ,这两个颗粒的散射光通量相等,但是它们的体积不相等。

将单位体积气体中非球形颗粒都一一等效成具有相同体积的球形颗粒,得到的分布称之为等效体积粒度分布,用  $l(D_V)$  表示,则非球形颗粒物的总体积与等效体积颗粒物的总体积相等。同样地将单位体积气体中非球形颗粒都一一等效成具有相同散射光通量的球形颗粒,得到的分布称之为等效散射光通量粒度分布,用  $h(D_F)$  表示,则非球形颗粒物的总体积与等效散射光通量颗粒物的总体积并不一定相等。实际颗粒群的粒度分布是不连续的,但当测量的颗粒数目很大时,可以认为是连续的,那么利用等效体积粒度分布,由质量密度的定义得到非球形颗粒物的质量密度  $C_{th}$  为

$$C_{th} = C_V = \frac{\pi}{6} \rho \int_{D_{V \min}}^{D_{V \max}} l(D_V) D_V^3 dD_V, \quad (4)$$

式中  $C_V$  表示非球形颗粒物的等效体积球形颗粒物的质量密度,  $D_{V \max}$  和  $D_{V \min}$  分别是非球形颗粒物的最大和最小体积直径。

对非球形颗粒而言,等体积颗粒的散射光通量

并不相等,引入  $L(D_V, D_F)$  表示非球形颗粒物的二

元粒度分布,则  $l(D_V) = \int_{D_{F \min}(D_V)}^{D_{F \max}(D_V)} L(D_V, D_F) dD_F$ , 因

此  $C_{th}$  又可表示为

$$\begin{aligned} C_{th} &= \frac{\pi}{6} \rho \int_{D_{V \min}(D_V)}^{D_{V \max}(D_V)} D_V^3 \int_{D_{F \min}(D_V)}^{D_{F \max}(D_V)} L(D_V, D_F) dD_F dD_V = \\ &= \frac{\pi}{6} \rho \int_{D_{F \min}}^{D_{F \max}} \int_{D_{V \min}(D_F)}^{D_{V \max}(D_F)} L(D_V, D_F) D_V^3 dD_V dD_F = \\ &= \int_{D_{F \min}}^{D_{F \max}} M(D_F) dD_F = \\ &= \int_{D_{F \min}}^{D_{F \max}} h(D_F) \bar{M}(D_F) dD_F, \end{aligned} \quad (5)$$

其中

$$\begin{aligned} \bar{M}(D_F) &= \rho \bar{V}(D_F) = \frac{\pi}{6} \rho \bar{D}_V^3 = \\ &= \frac{\frac{\pi}{6} \rho \int_{D_{V \min}(D_F)}^{D_{V \max}(D_F)} L(D_V, D_F) D_V^3 dD_V}{\int_{D_{V \min}(D_F)}^{D_{V \max}(D_F)} L(D_V, D_F) dD_V}, \end{aligned} \quad (6)$$

$D_{F \max}$  和  $D_{F \min}$  分别是非球形颗粒物的最大和最小散射光通量直径,  $D_{F \max}(D_V)$  和  $D_{F \min}(D_V)$  分别是非球形颗粒物中体积直径为  $D_V$  的颗粒的最大和最小散射光通量直径,  $D_{V \max}(D_F)$  和  $D_{V \min}(D_F)$  分别是散射光通量直径为  $D_F$  的颗粒的最大和最小体积直径。  $M(D_F)$  和  $\bar{M}(D_F)$  分别表示散射光通量直径为  $D_F$  的颗粒的总质量和平均质量,  $\bar{V}(D_F)$  和  $\bar{D}_V(D_F)$  分别表示散射光通量直径为  $D_F$  的非球形颗粒的平均体积和平均体积直径。(5)式即为基于平均质量的非球形颗粒物质量密度的理论公式,公式中平均质量是对大量颗粒统计测量的基础上得到的。

## 5 基于平均质量的浓度算法

质量密度计算公式(3)是在颗粒为球形条件下推出的,若被测颗粒为非球形,则  $v_i$  的指数不一定是 1.5。引入待定系数  $\alpha$ ,用(7)式表示非球形颗粒物质量密度的计算公式:

$$C = k \sum_{i=1}^q N(v_i) v_i^\alpha, \quad (7)$$

下面来证明(7)式的积分形式与(5)式是等价的。实际粒子计数器的电压通道数  $q = 2048$ ,近似认为电

压通道数  $q \rightarrow \infty$ ,那么(7)式可写成积分形式:

$$C = k \int_{v_{\min}}^{v_{\max}} n(v) v^\alpha dv, \quad (8)$$

(8)式中  $v$  表示相对电压脉冲信号,  $n(v)$  表示相对电压等于  $v$  的脉冲信号数,则  $n(v) dv$  表示相对电压在  $v$  到  $v + dv$  区间的脉冲信号数。将(8)式两边微分得:

$$\frac{dC}{n(v) dv} = k v^\alpha, \quad (9)$$

(9)式的左边表示颗粒物中相对电压脉冲信号在  $v$  到  $v + dv$  区间的颗粒的平均质量,用  $\bar{M}(v)$  表示,所以有下式成立:

$$\bar{M}(v) = k v^\alpha, \quad (10)$$

因为颗粒的散射光通量  $F$  被转换成电压脉冲信号为  $v$ ,即散射光通量直径  $D_F$  与  $v$  对应,所以(10)式与(6)式是等价的。将(10)式代入(8)式得

$$C = \int_{v_{\min}}^{v_{\max}} n(v) \bar{M}(v) dv, \quad (11)$$

将(11)式与(5)式对比可知,两个表达式是等价的,说明用球形颗粒物的质量密度计算公式发展的(7)式来计算非球形颗粒物的质量密度是合理的。

为了得到(7)式中的系数  $k$  和  $\alpha$ ,通过对颗粒物质量密度的多次测量,采用最小二乘法将粒子计数器的测量值与实际值  $C_{TSI}$  进行拟合,取最佳  $\alpha$  值使测量值与实际值的误差最小,求解公式如下:

$$\frac{d}{d\alpha} \left[ \sum_{t=1}^T \left( \frac{C_t}{C_{\max}} - \frac{C_{TSI,t}}{C_{TSI,\max}} \right)^2 \right] = 0, \quad (12)$$

(12)式中  $T$  表示测量的次数;  $C_{TSI,t}$  表示第  $t$  次测量时颗粒物质量密度的实际值,  $C_{TSI,\max}$  表示  $T$  次测量中颗粒物质量密度的最大值;  $C_t$  表示粒子计数器第  $t$  次测量时的质量密度值,  $C_{\max}$  表示颗粒物质量密度的实际值最大时粒子计数器的测量值。

再对  $T$  次测量的  $k_t$  取平均,得到标定系数  $k$ :

$$k = \frac{1}{T} \sum_{t=1}^T k_t, \quad (13)$$

其中  $k_t = C_{TSI,t} / \left[ \sum_{i=1}^q N_t(v_i) v_i^\alpha \right]$ ,  $N_t(v_i)$  为粒子计数器第  $t$  次测量时  $i$  电压通道内的脉冲信号数。

## 6 实验测试结果

### 6.1 测试仪器及实验

实验的测试对象为烟尘,使用的仪器主要包括粒子计数器、美国 TSI 公司智能防爆粉尘仪 SIDEPAK

AM510。其中, SIDEPAK AM510 采用 90° 直角接受颗粒散射光, 利用内置气泵将颗粒吸入光学室内, 再由光的散射量来测量粉尘的浓度。该仪器测量的粉尘质量密度范围为 0.001~20 mg/m<sup>3</sup>, 采样流量为 1.7 L/min, 可实时显示粉尘浓度并存储数据。实验前需用清洁空气检查粒子计数器和 SIDEPAK AM510 的清零状态。

在 0.001~2 mg/m<sup>3</sup> 的质量密度范围内, 用粒子计数器和 SIDEPAK AM510 同时测量烟尘, 测量周期为 1 min。SIDEPAK AM510 给出的是质量密度值 C<sub>TSP</sub>, 粒子计数器给出的是烟尘在一个周期内的电压脉冲信号幅度分布。利用示波器记录颗粒的散

射光脉冲信号, 脉冲信号的半峰全宽约为 10 μs。采样速度一定时, 可以估算出粒子计数器测量的颗粒数上限为 10000 颗/s。实验中烟尘浓度在 2 mg/m<sup>3</sup> 时, 粒子计数器每分钟的计数值约为 60 万, 在粒子计数器测量的颗粒数上限内。

6.2 实验结果与分析

根据粒子计数器和 SIDEPAK AM510 两台仪器的测量值, 利用(12)式求得 α=3.86, 再由(13)式求得 30 次测量的平均值 k=0.4508×10<sup>-6</sup>, 相对标准偏差为 3.3%, 而 α=1.5 时, 求得 k=0.2881×10<sup>-5</sup>, 具体见表 1。可以看出, 不同质量密度时, 标定系数 k<sub>i</sub> 基本一致, 所以取平均值 k 进行质量密度计算。

表 1 不同质量密度烟尘的 k<sub>i</sub> 值

Table 1 k<sub>i</sub> value for smoke with various mass density

C <sub>TSP</sub> /(mg/m <sup>3</sup> )	k <sub>i</sub> /(10 <sup>-6</sup> mg/m <sup>3</sup> )	C <sub>TSP</sub> /(mg/m <sup>3</sup> )	k <sub>i</sub> /(10 <sup>-6</sup> mg/m <sup>3</sup> )	C <sub>TSP</sub> /(mg/m <sup>3</sup> )	k <sub>i</sub> /(10 <sup>-6</sup> mg/m <sup>3</sup> )
0.080	0.4164	0.463	0.4380	1.444	0.4567
0.097	0.4490	0.482	0.4654	1.510	0.4689
0.113	0.4150	0.614	0.4347	1.542	0.4645
0.163	0.4284	0.736	0.4564	1.625	0.4694
0.210	0.4354	0.786	0.4610	1.701	0.4607
0.204	0.4275	0.807	0.4483	1.759	0.4644
0.269	0.4490	0.956	0.4567	1.892	0.4613
0.316	0.4406	1.093	0.4517	1.952	0.4569
0.382	0.4645	1.156	0.4444	2.074	0.4623
0.401	0.4607	1.243	0.4589	2.124	0.4578
Calibration constant k (α=3.86)				0.4508×10 <sup>-6</sup>	
Relative standard deviation of k (α=3.86)				3.3%	
Calibration constant k (α=1.5)				0.2881×10 <sup>-5</sup>	

将 α 和 k 代入(10)式求解被测颗粒物的平均质量函数  $\bar{M}(v)$ 。图 2 显示了烟尘颗粒的平均质量分布, 可以看出, 颗粒的电压脉冲信号幅度与平均质量有一一对应关系。且平均质量函数  $\bar{M}(v)$  的表达式表明, 颗粒物的平均质量分布与质量密度大小无关, 只与 α 和 k 有关。也就是说, 一旦 α 和 k 已知,

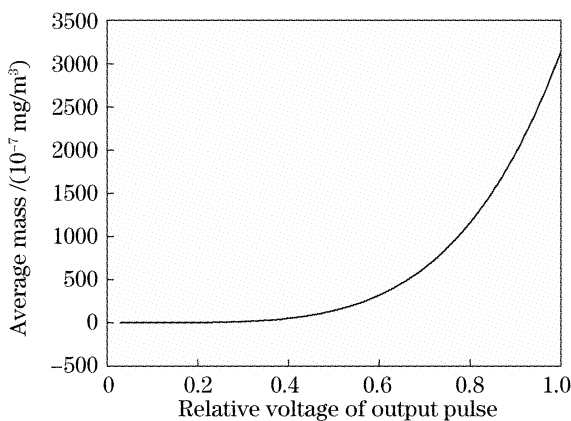


图 2 烟尘的平均质量分布

Fig. 2 Average mass distribution of smoke

$\bar{M}(v)$  分布就被确定。因此只需利用粒子计数器测量颗粒物在一个周期内的电压脉冲信号幅度分布, 就可计算出颗粒物的质量密度。

将 α 和 k 代入到(7)式中即可求出粒子计数器测量的烟尘质量密度 C。图 3 是粒子计数器和

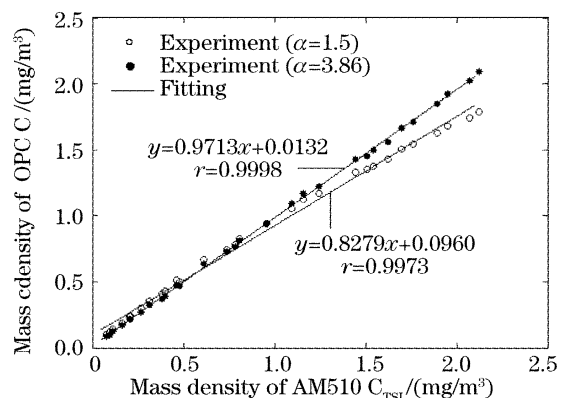


图 3 SIDEPAK AM510 测量值与粒子计数器测量值的关系图

Fig. 3 Plot of measured mass concentration by SIDEPAK AM510 versus measured mass concentration by OPC

SIDEPAK AM510 两台仪器测量值的关系图,  $o$  表示  $\alpha=1.5$  时两台仪器测量值确定的数据点,  $\bullet$  表示  $\alpha=3.86$  时两台仪器测量值确定的数据点。从这些数据点的分布可以看出两台仪器测量值存在明显的线性关系, 故用最小二乘法进行线性拟合, 拟合直线方程及相关系数如图 3 所示。  $\alpha=3.86$  时拟合直线的斜率为 0.9713, 相关系数为 0.9998, 表明平均质量算法的质量密度值  $C$  与实际烟尘质量密度  $C_{\text{TSI}}$  基本一致; 而  $\alpha=1.5$  时拟合直线的斜率为 0.8279, 相关系数为 0.9973, 表明  $C_s$  基本都小于  $C_{\text{TSI}}$ 。所以, 球形颗粒物质量密度计算公式(3)不能直接用于计算非球形颗粒物的质量密度, 而基于平均质量的非球形颗粒物的质量密度算法具有更高的测量精度, 可以直接用于计算非球形颗粒物的质量密度。

此外, 由米氏散射理论知, 颗粒的散射光通量与被测颗粒的折射率有关, 所以颗粒的折射率会影响粒子计数器输出的脉冲信号; 颗粒群的质量密度与颗粒密度有关, 而且环境湿度对颗粒物质量密度的测量也有较大影响, 尤其是相对湿度大于 60% 时<sup>[11]</sup>。如果被测颗粒与标定颗粒的特性(折射率、密度等)存在较大差异, 还需对仪器重新标定。

## 7 结 论

考虑非球形颗粒, 从颗粒群粒度分布概念出发, 提出了统计意义上的平均质量概念, 给出了基于平均质量的悬浮颗粒物质量密度的算法, 并且从理论和实验两个方面证实了该算法的合理性, 基于该算法利用粒子计数器在线测量颗粒物的质量密度是可行的。

## 参 考 文 献

1 Alexander Gmitterko, Stanislav Slosarcik, Miroslav Dovica. Algorithm of nonrespirable dust fraction suppression using an optical transducer of dust mass concentration [J]. *IEEE*

*Transactions on Instrumentation and Measurement*, 1998, **47**(5): 1228~1233

2 Han Daowen, Liu Wenqing, Liu Jianguo *et al.*. Retrieval method for aerosol mass concentration vertical distribution[J]. *Chin. J. Lasers*, 2006, **33**(11): 1567~1573 (in Chinese)  
韩道文, 刘文清, 刘建国 等. 气溶胶质量浓度空间垂直分布的反演方法[J]. *中国激光*, 2006, **33**(11): 1567~1573

3 W. Chueinta, P. K. Hopke. Beta gauge for aerosol mass measurement[J]. *Aerosol Science and Technology*, 2001, **35**(4): 840~843

4 Anne Soutar, Monika Watt, John W. Cherrie *et al.*. Comparison between a personal PM10 sampling head and the tapered element oscillating microbalance (TEOM) system [J]. *Atmospheric Environment*, 1999, **33**(27): 4373~4377

5 P. Görner, D. Bemer, J. F. Fabriès. Photometer measurement of polydisperse aerosols[J]. *J. Aerosol Science*, 1995, **26**(8): 1281~1302

6 Yan Fengqi, Hu Huanling, Yu Tong. Measurement of particulate mass concentrations and atmospheric visibility with an optical particle counter[J]. *Chin. J. Quant. Electron.*, 2004, **21**(1): 98~102 (in Chinese)  
阎逢旗, 胡欢陵, 虞 统. 用光学粒子计数器测颗粒物质量浓度和能见度[J]. *量子电子学报*, 2004, **21**(1): 98~102

7 Liang Chunlei, Huang Huijie, Ren Bingqiang *et al.*. Study of miniature optical sensor for laser particle counter[J]. *Acta Optica Sinica*, 2005, **25**(9): 1260~1264 (in Chinese)  
梁春雷, 黄惠杰, 任冰强 等. 激光尘埃粒子计数器微型光学传感器的研究[J]. *光学学报*, 2005, **25**(9): 1260~1264

8 Gu Fang, Yang Juan, Bian Baomin *et al.*. Measurement of particle mass concentration using particle counter method [J]. *Laser Technology*, 2007, **31**(4): 360~363 (in Chinese)  
顾 芳, 杨 娟, 卞保民 等. 用粒子计数法测量颗粒物质量浓度 [J]. *激光技术*, 2007, **31**(4): 360~363

9 Gao Yongfeng, Zou Lixin, Huang Huijie *et al.*. Influence of the light source in airborne laser particle counter on the flux of transducer[J]. *J. Applied Optics*, 2005, **26**(3): 45~49 (in Chinese)  
高永锋, 邹丽新, 黄惠杰 等. 尘埃粒子计数器中光源对传感器光通量的影响分析[J]. *应用光学*, 2005, **26**(3): 45~49

10 Wang Yawei, He Anzhi, Liu Xiaolan. Probability characterization method of arbitrary particles distribution and it's measurement[J]. *Acta Optica Sinica*, 2002, **22**(3): 363~368 (in Chinese)  
王亚伟, 贺安之, 刘晓燃. 任意形体微粒分布的概率表述及其测量方法[J]. *光学学报*, 2002, **22**(3): 363~368

11 Constantinos Sioutas, Seongheon Kim, Mingchih Chang *et al.*. Field evaluation of a modified DataRAM MIE scattering monitor for real-time PM2.5 mass concentration measurements [J]. *Atmospheric Environment*, 2000, **34**(28): 4829~4838