

文章编号: 0253-2239(2010)12-3373-05

煤烟气溶胶粒子对太阳辐射的消光特性研究

类成新 张化福 刘汉法

(山东理工大学理学院, 山东 淄博 255049)

摘要 采用蒙特卡罗方法,根据团簇-团簇凝聚(CCA)模型对随机取向且具有分形结构的煤烟气溶胶粒子进行了仿真模拟,利用离散偶极子近似(DDA)方法计算了随机取向的煤烟气溶胶粒子从紫外到红外波段的吸收、散射与消光效率因子,得到了太阳辐射波长、原始微粒的粒径和数目对煤烟气溶胶粒子的消光特性影响规律。通过将所得数值结果与T矩阵方法的数值结果进行比较发现,两种数值方法计算的结果非常相近,这验证了所用DDA方法的正确性。研究表明,炭和灰凝聚粒子对太阳辐射存在着不同程度的消光作用,其消光影响主要集中在紫外到近红外波段;随机取向的煤烟气溶胶粒子对太阳辐射的消光特性受基本粒子数量和粒径的影响比较大。

关键词 大气光学;煤烟气溶胶粒子;离散偶极子近似方法;消光特性

中图分类号 P401, P422.3⁺1 文献标识码 A doi: 10.3788/AOS20103012.3373

Study of Extinction Characteristics of Solar Radiation by Soot Aerosols

Lei Chengxin Zhang Huaifu Liu Hanfa

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

Abstract Based on fractal theory, the cluster-cluster aggregation (CCA) model is used to simulate the fractal structure of the soot aerosols in random orientation using Monte-Carlo method, and the absorption, scattering and extinction efficiency factors of fractal soot aerosols in random orientation are simulated in the solar radiation spectrum ranging from 0.2 to 10.0 μm of wavelength by the discrete dipole approximation (DDA) method. The influential rules about the solar radiative wavelength, diameter and the number of primary particles on the extinction characteristics of soot aerosols in random orientation are provided. The comparison of the numerical results obtained by the DDA method with T matrix method shows that the results by two methods are very similar which verifies the validity of DDA method. It is shown that the carbon and fly ash aerosols have different influences of extinction characteristics on solar radiation, whose radiative wavelength ranges from ultraviolet to near infrared bands, and the extinction characteristics of solar radiation by soot aerosols are mainly determined by the radius and the number of primitive particles besides the refractive index.

Key words atmospheric optics; soot aerosols; discrete dipole approximation method; extinction characteristics

1 引言

煤烟是煤燃料不完全燃烧产生的炭粒或燃烧过程中产生的飞灰。这些悬浮粒子是大气气溶胶的重要组成部分,它们通过对太阳的短波辐射和地气系统的长波辐射的散射和吸收作用来影响地气的能量平衡,从而对气候变化产生不可低估的作用^[1]。气溶胶在大气科学和环境科学领域受到日益广泛关注,特别是气候变化研究方面,气溶胶粒子对太阳辐

射的吸收和散射作用被认为是影响气候变化的十分重要的关键因子^[2,3]。研究气溶胶粒子的消光特性对大气探测、气候模式、辐射传输以及遥感等方面都具有十分重要的意义。

在研究气溶胶粒子散射特性时人们往往用球形粒子来代替非球形粒子。然而,大气中的煤烟粒子由于它们之间存在着相互作用而不可避免地发生碰撞,从而粘附在一起形成具有复杂分形结构的凝聚

收稿日期: 2010-01-17; 收到修改稿日期: 2010-04-13

基金项目: 国家自然科学基金(60371020)资助课题。

作者简介: 类成新(1976—),男,硕士,讲师,主要从事目标激光散射特性方面的研究。E-mail: xdstpostgraduate@163.com

粒子^[4]。由于实际的凝聚粒子的结构千变万化,而且具有一定的随机性,因此不能用某种具体形态进行描述,其消光特性也不能按单个散射体理论来进行计算,按其他的简单形态进行计算也不理想^[5,6]。因此,为准确地预测煤烟气溶胶粒子消光特性在大气辐射传输中所起的作用,理应精确地确定煤烟气溶胶粒子对太阳辐射消光特性^[7]。

本文首先根据团簇-团簇凝聚(CCA)模型采用蒙特卡罗方法对随机取向且具有分形结构的煤烟气溶胶粒子进行了仿真模拟,然后利用离散偶极子近似(DDA)方法研究了随机取向的煤烟气溶胶粒子的消光特性,并将所得数值结果与用 T 矩阵方法取得的数值结果进行了比较,结果表明两种数值方法得到的数值结果非常相近,这验证了本文采用的 DDA 方法的正确性。此研究为进一步用 DDA 方法研究大气气溶胶消光特性对气候变化产生的影响提供了理论依据。

2 基本理论

2.1 DDA 方法

DDA 方法是由 Purcell 等^[8]于 1973 年提出,经过 Draine 等^[9,10]的进一步改进,逐步发展成为一种原则上可应用于任意形状及尺寸的粒子的吸收、散射及消光等光学性质进行计算的数值方法。DDA 方法的基本思想是:将连续散射物体近似为有限个可极化的点阵,每个点通过对局域电场(入射场以及其他点的辐射场)的响应获得偶极矩,散射体上所有点在远场的辐射的总和构成散射场。若 \mathbf{r}_j ($j=1, 2, \dots, N$) 处的电场为 \mathbf{E}_j (入射场 $\mathbf{E}_{inc,j}$ 与其他 $N-1$ 个偶极子的散射场的总和),极化率为 α_j ,则该点的偶极矩 \mathbf{P}_j 为

$$\mathbf{P}_j = \alpha_j \mathbf{E}_j = \alpha_j (\mathbf{E}_{inc,j} - \sum_{l \neq j} \mathbf{A}_{jl} \mathbf{P}_l), \quad (1)$$

系数 \mathbf{A}_{jl} 为一个 3×3 矩阵

$$\mathbf{A}_{jl} = \frac{\exp(ikr_{jl})}{r_{jl}} \left[k^2 (\mathbf{r}_{jl} \mathbf{r}_{jl} - \mathbf{I}_3) + \frac{ikr_{jl} - 1}{r_{jl}^2} (3\mathbf{r}_{jl} \mathbf{r}_{jl} - \mathbf{I}_3) \right], \quad (2)$$

式中 $k=2\pi/\lambda$, λ 为入射波长; $r_{jl}=|\mathbf{r}_j-\mathbf{r}_l|$, $\mathbf{r}_{jl}=(\mathbf{r}_j-\mathbf{r}_l)/r_{jl}$, \mathbf{I}_3 为 3×3 单位矩阵。若定义 $A_{jj}=\alpha_j^{-1}$, 则偶极矩 \mathbf{P}_j 满足 $3N$ 个复线性方程组:

$$\sum_{l=1}^N \mathbf{A}_{jl} \mathbf{P}_l = \mathbf{E}_{inc,j}, \quad (3)$$

由(3)式可解出 \mathbf{P}_l , 求得 \mathbf{P}_l 后可以得到散射体的消光截面 C_{ext} , 吸收截面 C_{abs} , 散射截面 C_{sca} 分别为^[9]

$$\begin{aligned} C_{ext} &= \frac{4\pi k}{|E_0|^2} \sum_{j=1}^N \text{Im}(\mathbf{E}_{inc,j}^* \cdot \mathbf{P}_j) \\ C_{abs} &= \frac{4\pi k}{|E_0|^2} \sum_{j=1}^N \left\{ \text{Im}[\mathbf{P}_j \cdot (\alpha_j^{-1})^* \mathbf{P}_j^*] - \frac{2}{3} k^3 |\mathbf{P}_j|^2 \right\}, \\ C_{sca} &= C_{ext} - C_{abs}, \end{aligned} \quad (4)$$

表征凝聚粒子消光特性的物理量为消光(吸收、散射)效率因子,表达式分别为

$$\begin{aligned} Q_{ext} &= C_{ext} / \pi a_{eff}^2, \\ Q_{abs} &= C_{abs} / \pi a_{eff}^2, Q_{sca} = C_{sca} / \pi a_{eff}^2, \end{aligned}$$

式中 a_{eff} 为等效半径(等体积球形粒子半径)。对于随机取向的煤烟气溶胶粒子的消光特性参量为^[9]

$$\langle Q \rangle = \frac{1}{8\pi^2} \int_0^{2\pi} \int_{-1}^1 \int_0^{2\pi} Q(\beta, \theta, \phi) d\beta d(\cos \theta) d\phi, \quad (5)$$

式中 $\langle Q \rangle$ 为煤烟气溶胶粒子各种取向的辐射参量的平均值; $Q(\beta, \theta, \phi)$ 为系统坐标中某特定取向的煤烟气溶胶粒子的辐射参量,其中 β, θ, ϕ 为空间方位角。

2.2 理论模型

所研究煤烟气溶胶粒子是以 CCA 模型^[5,6,11]为基础,采用蒙特卡罗方法模拟仿真的。该模型粒子数目与分形维数之间的关系为 $N=k_f (R_g/d_p)^{D_f}$, D_f 为分形维数, k_f 为前向因子,两者都是常数,分别取值 $D_f=1.8$, $k_f=5.8$ 。由于确定煤烟中炭和灰粒子的复折射率并非易事,一些研究者曾报道过有关的测量结果^[12~14],但是由于测量上的困难和方法上的不同,所测得的数据有较大差异。本文采用美国 Stanford 大学所报道的数据^[15](研究表明,这组数据具有较高的精度^[16]),不同波长情况下,所对应的炭、灰凝聚粒子的复折射率如表 1 所列,其中 $Re n$ 与 $Im n$ 分别为粒子复折射率的实部和虚部。

表 1 煤烟气溶胶粒子的复折射率

Table 1 Complex refractive index of soot aerosols

$\lambda / \mu\text{m}$	Carbon		Fly ash	
	Re _n	Im _n	Re _n	Im _n
0.2	1.3	0.01	1.6	2.0×10^{-4}
0.3	1.3	0.01	1.6	2.0×10^{-4}
0.5	1.3	0.01	1.6	2.0×10^{-4}
4.0	1.3	0.01	1.5	2.0×10^{-4}
5.0	1.3	0.01	1.5	4.0×10^{-4}
5.5	1.15	0.1	1.45	4.0×10^{-3}
6.5	1.15	0.2	1.25	8.0×10^{-3}
7.5	1.15	0.3	1.1	1.0×10^{-2}
8.5	1.15	0.65	1.1	0.1
10.0	1.15	0.65	1.1	0.1

3 结果与分析

图 1 为采用 DDA 方法和 T 矩阵方法所计算的炭、灰凝聚粒子的消光效率因子随太阳辐射波长的变化关系。可见,两种数值方法的计算结果吻合得非常好。另外,通过对其它数值结果的对比,同样发现两种数值方法的计算结果非常相近,这充分说明了本文中所有的数值结果是准确、可靠的。

3.1 辐射波长对凝聚粒子消光特性的影响

太阳辐射覆盖很宽的波长范围,从 γ 射线到 X 射

线、紫外线、可见光、红外线直至米波段的射电辐射,其中 $0.2 \sim 10.0 \mu\text{m}$ 波段的辐射占太阳总辐射能量的 99.9%,因此计算中取太阳辐射波长在 $0.2 \sim 10 \mu\text{m}$ 。原始微粒粒径 $d_p = 100 \text{ nm}$,数目 $N = 125$ 的炭、灰凝聚粒子的效率因子计算结果如图 2 所示。

从图 2 可知:1)在低波长范围(小于 $3 \mu\text{m}$),炭和灰凝聚粒子的消光和散射效率因子随辐射波长增大迅速减小,辐射波长较大(大于 $3 \mu\text{m}$)时,辐射波长对灰、炭凝聚粒子的消光效率因子和散射效率因子的影响总体上不明显,煤烟气溶胶粒子对太阳辐射产生的消光影响主要集中在紫外到近红外波段;2)由炭和灰凝聚粒子的吸收曲线可见,灰凝聚粒子对太阳辐射的吸收效应主要体现在紫外到近红外波段以及辐射波长较长的区域,炭凝聚粒子的吸收特性主要体现在波长较长的区域,两类凝聚粒子均在辐射波长 $9.0 \mu\text{m}$ 附近出现强吸收带,这与臭氧对太阳辐射吸收特性类似。此外,炭凝聚粒子的吸收效应强于灰凝聚粒子的吸收效应,这主要是因为炭的复折射率的虚部比灰的大;3)在波长较短时,两类凝聚粒子对太阳辐射的散射效应在消光中占主导地位,随着辐射波长的增大,吸收效应所占比例开始增大。

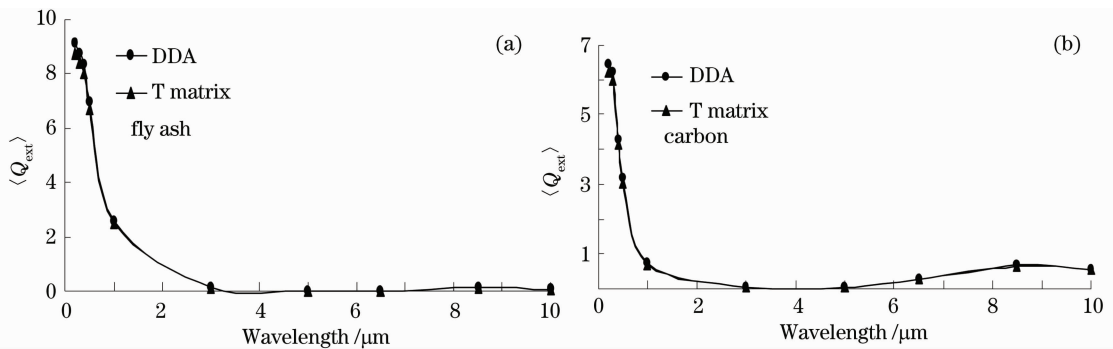


图 1 两种数值方法计算结果对比

Fig. 1 Comparison of the results by two numerical methods

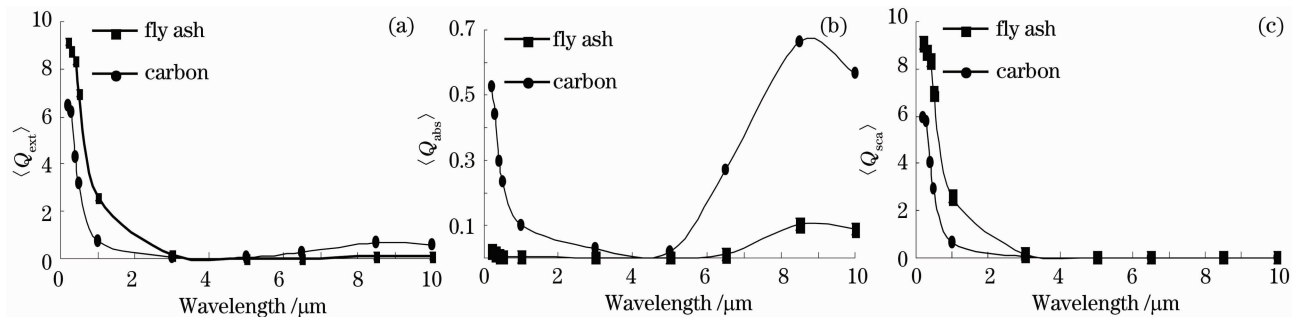


图 2 炭、灰凝聚粒子的效率因子随辐射波长的变化曲线

Fig. 2 Efficiency factor versus radiation wavelength for carbon and ash aggregates

3.2 原始微粒粒径对凝聚粒子消光特性的影响

煤烟气溶胶粒子是由原始微粒随机凝聚而成的,不同条件下生成的凝聚粒子的原始微粒的粒径也不同。原始微粒的粒径将直接影响凝聚粒子的消

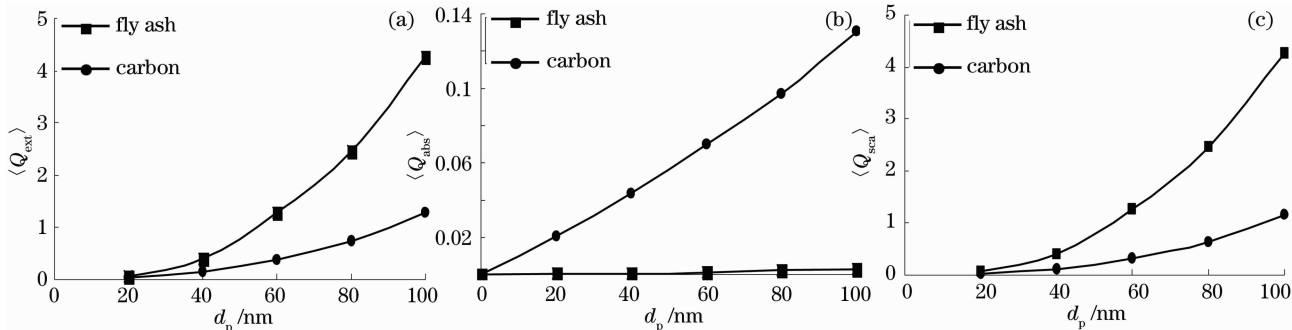


图 3 炭、灰凝聚粒子的效率因子随其原始微粒粒径的变化曲线

Fig. 3 Efficiency factor versus primary particles diameter for carbon and ash aggregates

由图 3 可见,随着原始微粒粒径的增大,炭和灰凝聚粒子的效率因子均随之增大并且粒径越大其增加的速度越快;灰凝聚粒子的效率因子随原始微粒粒径增大的幅度要比炭凝聚粒子的大;炭和灰凝聚粒子的散射效率因子受原始微粒粒径的影响要比吸收效率因子的大,说明煤烟气溶胶粒子对太阳辐射的消光影响以散射为主,灰凝聚粒子这一表现更为突出。在辐射波长和原始微粒数目一定的条件下,凝聚粒子的尺寸参数取决于原始微粒的粒径,随着原始微粒粒径的增大,凝聚粒子的尺寸参数也随之增大,从而导致凝聚粒子的散射和吸收效应增强,其

光特性,为了评价这种影响的大小,取原始微粒数目 $N=50$,辐射波长 $\lambda=0.5 \mu\text{m}$,对原始微粒粒径 $d_p=20\sim 100 \text{ nm}$ 随机取向的炭、灰凝聚粒子的效率因子计算结果如图 3 所示。

消光性能增强。另外,由于灰凝聚粒子的复折射率大于炭凝聚粒子的复折射率,因此,灰凝聚粒子的吸收和散射特性受其原始微粒粒径的影响比较大。

3.3 原始微粒数目对凝聚粒子消光特性的影响

在影响凝聚粒子吸收和散射特性的因素中,除辐射波长和原始微粒粒径外,原始微粒数目同样是非常重要的影响因素。为了研究原始微粒数目对凝聚粒子消光特性的影响,取原始微粒粒径 $d_p=100 \text{ nm}$, $\lambda=0.5 \mu\text{m}$,对 $N=25\sim 125$ 的炭和灰凝聚粒子的消光(吸收、散射)效率因子进行计算,计算结果如图 4 所示。

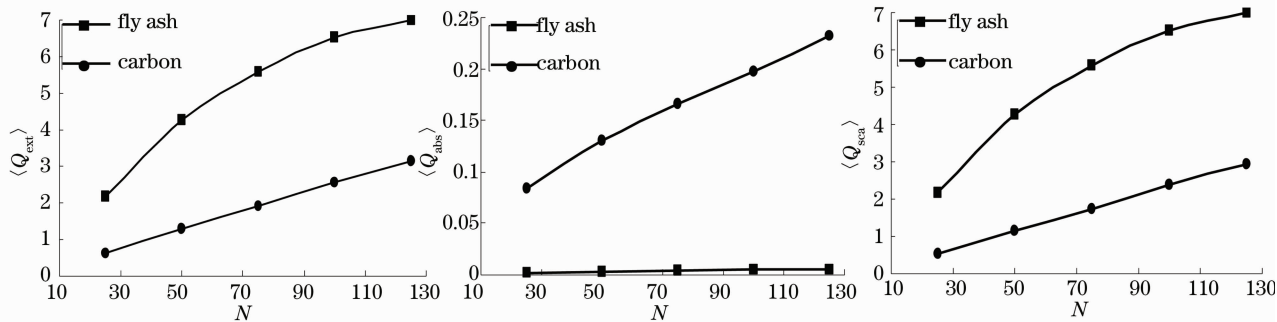


图 4 炭、灰凝聚粒子的效率因子随其原始微粒数目的变化曲线

Fig. 4 Efficiency factor versus primary particles number for carbon and ash aggregates

由图 4 可见:随着原始微粒数目的增多,炭和灰两类凝聚粒子的效率因子均随之增大并且微粒数目越多增加的速度越快;灰凝聚粒子的效率因子随原始微粒数目增大的幅度要比炭凝聚粒子的大;炭和灰凝聚粒子的消光中同样以散射为主,并且灰凝聚粒子的散射在消光中占绝对优势。在辐射波长、原始微粒粒径一定的条件下,凝聚粒子原始微粒数目的增大同样造成其尺寸参数的增大,从而导致凝聚

粒子的散射和吸收效应增强,其消光性能增强。

4 结 论

利用 DDA 方法研究了由蒙特卡罗方法模拟的,不同原始微粒粒径与数目组成的随机取向且具有分形结构的煤烟气溶胶粒子消光特性,分析了影响煤烟气溶胶粒子对太阳辐射消光性能的因素。通过将用 DDA 方法所得数值结果与 T 矩阵方法的数

值结果进行对比发现,两者结果和 T 矩阵得到的结果非常相近,这充分验证了 DDA 方法的正确性。研究结果表明:

1) 炭和灰凝聚粒子对太阳辐射的消光作用主要集中在紫外到近红外波段;

2) 除辐射波长外,原始微粒的粒径和数目都对炭和灰凝聚粒子的消光特性有着显著的影响,改变凝聚粒子中原始微粒粒径和数目可以改变其消光性能;

3) 炭和灰凝聚粒子的消光特性有着很大的差别:在一定范围内,灰凝聚粒子的吸收、散射效率明显强于炭凝聚粒子的吸收、散射效率。

致谢 感谢美国普林斯顿大学的 B. T. Draine 教授提供的 DDA 程序。

参 考 文 献

- 1 J. M. Haywood, D. L. Roberts, A. Slingo *et al.*. General circulation model calculations of the direct radiative forcing by anthropogenic sulfate and fossil-fuel soot aerosol[J]. *J. Clim.*, 1997, **10**(7): 1562~1577
- 2 I. Schult, J. Feichter, W. F. Cooke. Effect of black carbon and sulfate aerosols on the global radiation budget[J]. *J. Geophys. Res.*, 1997, **102**(D25): 30107~30117
- 3 S. Menon, J. Hansen, L. Nazarenko, *et al.*. Climate effects of black carbon aerosols in China and India[J]. *Science*, 2002, **297**(5590): 2250~2253
- 4 Lei Chengxin, Li Fengling, Liu Cande *et al.*. Light scattering properties of soot aggregates[J]. *Chinese Journal of Light Scattering*, 2006, **18**(3): 261~266
类成新, 李凤灵, 刘灿德等. 煤烟聚集粒子的光散射特性研究[J]. *光散射学报*, 2006, **18**(3): 261~266
- 5 Lei Chengxin, Zhang Huafu, Liu Hanfa. Numerical calculation of Mueller matrices of randomly distributed soot cluster agglomerates [J]. *Acta Physica Sinica*, 2009, **58**(10): 7168~7175
类成新, 张化福, 刘汉法. 随机分布烟尘簇团粒子缪勒矩阵的数值计算[J]. *物理学报*, 2009, **58**(10): 7168~7175
- 6 Lei Chengxin, Liu Hanfa, Zhang Huafu. Research on laser scattering property by randomly oriented soot clustered agglomerates[J]. *Acta Optica Sinica*, 2010, **30**(3): 876~880
类成新, 刘汉法, 张化福. 随机取向烟尘团簇粒子激光散射特性研究[J]. *光学学报*, 2010, **30**(3): 876~880
- 7 T. K. Nilsson, B. Sundén. Thermal radiative coefficients of cylindrically and spherically shaped soot particles and soot agglomerates[J]. *Heat Mass Transfer*, 2004, **41**(1): 12~22
- 8 E. M. Purcell, C. R. Pennypacker. Scattering and absorption of light by non-spherical dielectric grains[J]. *Astrophys. J.*, 1973, **186**: 705~714
- 9 B. T. Draine. The discrete-dipole approximation and its application to interstellar graphite grains[J]. *Astrophys. J.*, 1988, **333**: 848~872
- 10 B. T. Draine, P. J. Flatau. The discrete-dipole approximation for scattering calculations [J]. *J. Opt. Soc. Am. A*, 1994, **11**(4): 1491~1499
- 11 Lei Chengxin, Zhang Huafu, Liu Hanfa. Study on extinction characteristics of randomly distributed smoke screen cluster agglomerates to the laser [J]. *Infrared Technology*, 2009, **31**(9): 528~531
类成新, 张化福, 刘汉法. 随机分布烟幕凝聚粒子对激光的消光特性研究[J]. *红外技术*, 2009, **31**(9): 528~531
- 12 D. G. Goodwin, M. Mitchner. Infrared optical constant of coal slags: dependence on chemical composition [J]. *Journal of Thermophysics*, 1989, **3**(1): 53~60
- 13 P. R. Solomon, R. M. Carangelo, P. E. Best *et al.*. Analysis of particle emittance, composition, size and temperature by FT-ir. emission/transmission spectroscopy[J]. *Fuel*, 1987, **66**(7): 897~908
- 14 L. L. Baxter, T. H. Fletcher, D. K. Ottesen. Spectral emittance measurements of coal particles [J]. *Energy Fuels*, 1988, **2**(4): 423~430
- 15 T. F. Wall. The Development of Emissivity of Burning Pulverized Coal [R]. Chem. Engng. The University of Newcastle, 1989.
- 16 G. Sarbajit, A. S. Sidney. Particle size-density relation and cenosphere content of coal fly ash [J]. *Fuel*, 1995, **74**(4): 522~529