

引用格式: ZHAO Xiyuan, QI Yumei, QIAO Yadong, et al. A New Extinction Measurement System for Air Pollutants [J]. Acta Photonica Sinica, 2023, 52(3):0352118

赵夕渊, 祁玉梅, 乔亚东, 等. 一种新型的大气污染物消光测量系统[J]. 光子学报, 2023, 52(3):0352118

# 一种新型的大气污染物消光测量系统

赵夕渊, 祁玉梅, 乔亚东, 李旻, 王宇航, 王凤平

(北京科技大学 数理学院, 北京 100083)

**摘 要:** 基于光在长光程吸收池中的传输特性, 设计了一套新型的大气污染颗粒物消光模拟测量系统。该系统由消光测量装置和大气污染颗粒物模拟装置构成。消光测量装置主要由激光器、开放式 Herriot 长光程吸收池和光功率计构成。在消光测量装置中, 开放式 Herriot 长光程吸收池将某一波长的光经固定角度的镜片多次反射达到增大光程的目的; 同时有利于对其内部反射镜表面的清洁, 提高消光测量的灵敏度; 还能够实时检测用于消光的颗粒物浓度。消光系数通过吸收池入口和出口处监测到的光功率计算获得, 光功率的测量中利用差分法降低了激光器本身能量波动带来的误差, 提高消光系数测量的准确性。通过与真实大气雾霾情况下激光雷达测量到的消光系数进行对比, 验证了所搭建消光模拟测量系统的合理性。

**关键词:** 大气光学; 大气污染颗粒物; Herriot 长光程吸收池; 消光系数; 折射率

中图分类号: P412.17

文献标识码: A

doi: 10.3788/gzxb20235203.0352118

## 0 引言

大气污染物通过吸收和散射入射太阳光严重影响着地球和大气系统的辐射收支, 从而对局部地区乃至全球的气候都有着重要的影响<sup>[1-6]</sup>。尤其是人为产生的大气污染颗粒物对于全球气候预报研究产生不确定的因素<sup>[7-9]</sup>。大气污染物浓度的急剧增加会导致大气能见度的降低, 影响人们的视觉, 对人们的生活和交通造成了极大的不便<sup>[10-12]</sup>。并且大气污染物造成了地面接收入射太阳光辐射波长比例的失调, 影响了地球上生物的平衡、光合作用等。因此了解大气污染物的消光特性, 进而了解入射太阳光辐射衰减对人们生产生活造成的影响是极其必要的。

大气污染颗粒物引起了人们的广泛关注, 研究人员开始对大气污染颗粒物的浓度、成分以及尺寸分布等方面开展广泛的研究, 其中最有效的技术就是激光雷达技术。研究人员将传统的雷达技术与新型激光技术相结合制造出激光雷达来探测大气污染物, 将激光器发出的脉冲光入射到大气中与大气中的颗粒物相互作用, 其后向散射的信息利用望远镜接收和采集, 并进行算法反演得出大气污染物的相关信息。1963 年 FIOCCO G 和 SMULLIN L D<sup>[13]</sup> 研制出了第一台红宝石米散射激光雷达, 用以探测大气粉尘的回波信号。随着科学与技术的进步, 研究人员又开发了偏振激光雷达<sup>[14]</sup>、拉曼激光雷达<sup>[15]</sup>、高光谱分辨激光雷达<sup>[16]</sup>等多种激光雷达技术装置。但是, 利用激光雷达来探测大气或其污染颗粒物信息都是利用探测到的后向散射信息来进行反演, 在反演计算的过程中会产生一定的误差, 不如直接探测透射光精准<sup>[17-18]</sup>。因此, 1981 年 WILHAM M E<sup>[19]</sup> 开始利用透射光来探测大气污染物信息, 了解颗粒物成分、浓度。但由于透射光对于颗粒物变化的敏感性较低, 很难探测到低浓度颗粒物信息。于是进一步提出通过延长光路的方式来增强对于大气污染颗粒物的敏感性, 1942 年, WHITE J U<sup>[20]</sup> 利用三块曲率半径相同的球面反射镜制作出了 White 型长光程吸收池来得到在低浓度下的气体光谱。1964 年 HERRIOT D R<sup>[21-22]</sup> 利用两块共

基金项目: 国家重点研发计划(No.2020YFF0305404), 国家自然科学基金(No.11874084)

第一作者: 赵夕渊, zhaoxiyuan0918@sina.com

通讯作者: 王凤平, fpwang@ustb.edu.cn

收稿日期: 2022-06-24; 录用日期: 2022-10-11

<http://www.photon.ac.cn>

轴放置的等焦距凹球面镜构成一个长光程吸收池,在更小空间内实现更大光程来研究大气中气体分子的演变。2006年天津大学王蕊<sup>[23]</sup>利用 White 长光程吸收池测试五种气体分子 CO、SO<sub>2</sub>、NO<sub>2</sub>、NO、CO<sub>2</sub> 低浓度下的吸收信号,这五种气体分子都可以检测到  $1 \times 10^{-6}$  体积分数的改变。2010年 OFNER J<sup>[24]</sup>等设计出一套圆型多次反射的长光程吸收池,获得了大气中不同成分气体的含量。2010年中科院夏滑<sup>[25]</sup>等设计出一个光程可调的长光程吸收池,用来检测低浓度 CO。2018年清华大学杨铮<sup>[26]</sup>等将单一的一圈式的环形长光程吸收池改造为了两圈,使原光程进行了成倍数地增长,实现了螺旋式的长光程吸收池用以检测气体的吸收特性。利用长光程吸收池检测气体成分、含量以及吸收特性时,由于气体充分接触镜面且不污染镜面<sup>[20-26]</sup>,因此是很好的检测手段。2019年刘小伟团队<sup>[27]</sup>开始利用 White 型长光程吸收池检测大气污染颗粒物的消光特性,但实验发现,长时间的检测会导致大气污染颗粒物吸附到反射镜面导致镜面反射率的降低,对实验测量造成一定的误差。

因此,为了更有效地研究大气污染颗粒物质量浓度、粒径分布、化学组分和温湿度等多种因素对于大气污染颗粒物消光特性的影响,提出了基于开放式长光程吸收池的全新消光测量方法,搭建了一套全新的大气污染颗粒物模拟测量系统。Herriot 长光程吸收池可在几十厘米的长度内就能实现光在几十米长光程的传输,来精确反映低浓度污染颗粒物的消光特性。同时,将 Herriot 长光程吸收池改造成开放式,有利于对吸收池内部反射镜表面的清洁,减少 Herriot 池内部沉积在反射镜表面的颗粒物对其反射率的衰减。相比于其它透射式光学系统,Herriot 吸收池在更短的距离内实现了更大光程的光传输且更为经济,可用于测量污染颗粒物不同种类、不同浓度、不同粒径尺寸及分布对不同波长光的消光特性的响应。同时,能够用于大气污染物实时的消光原位测量。

## 1 测试装置

图 1 为大气污染颗粒物实验室消光模拟测量系统总体设计方案,该系统由大气污染颗粒物模拟装置和消光测量装置构成。大气污染颗粒物模拟装置如图 1。其中, a<sub>1</sub> 模块表示大气污染生成装置, a<sub>2</sub> 模块表示大气污染颗粒物的收集装置。这两个装置能够很好地调控在污染模拟检测舱内污染颗粒物浓度,而且污染颗粒物收集装置能够减少生成的污染物对实验室的污染。消光测量装置如图中的 b 模块,对污染模拟检测舱内的污染物能够进行实时原位消光测量。在进行消光模拟测量时,首先,利用污染颗粒物模拟装置进行大气污染物的模拟,模拟好的污染物进入到污染模拟检测舱内,然后,利用消光测量装置对污染模拟检测舱内的污染物进行消光测量。图 2 为整体实验室消光模拟测量系统的 3D 模型。

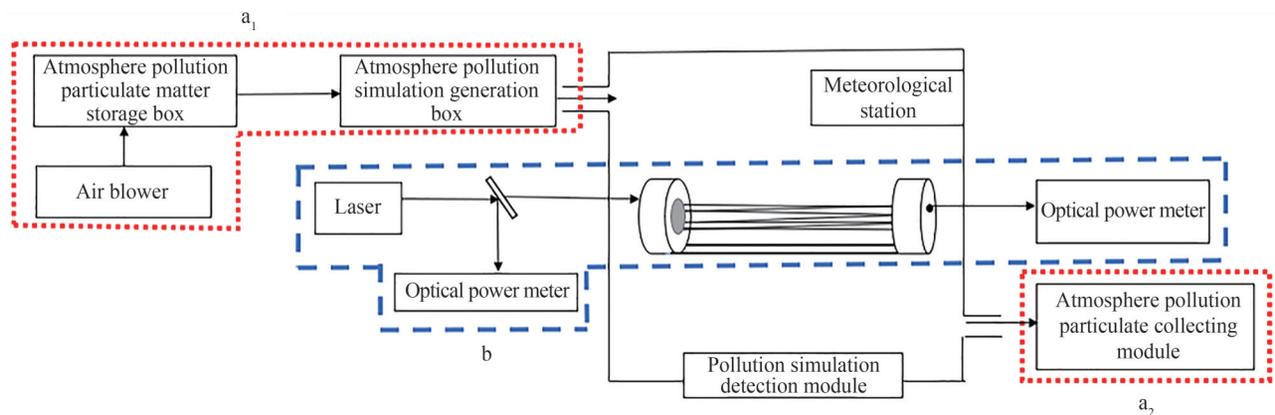


图 1 大气污染颗粒物实验室消光模拟测量系统设计

Fig. 1 Design of laboratory extinction simulation measurement system for atmospheric pollution particles

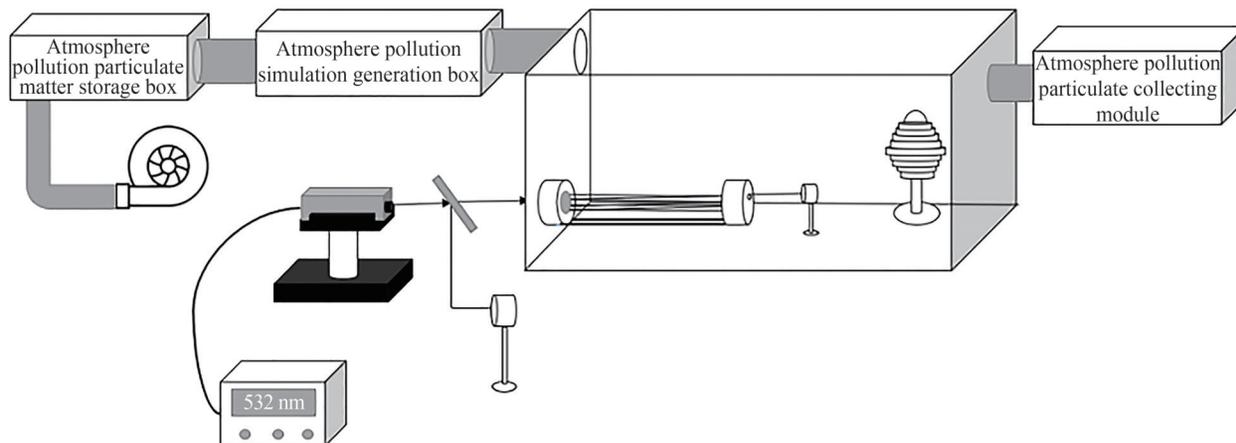


图2 3D模型图

Fig. 2 3D illustration of model

### 1.1 大气污染颗粒物模拟装置

将大气污染颗粒物放置在大气污染颗粒物放置箱中,利用鼓风机将颗粒物吹散到大气污染模拟生成箱中,在大气污染模拟生成箱中粒径较大的粒子由于重力作用会沉积在箱子底部,粒径较小的粒子会随着气流进入到污染模拟检测舱进行消光测量。大气污染颗粒物放置箱和大气污染模拟生成箱都是由有机玻璃构成的,大气污染颗粒物放置箱长、宽、高均为15 cm,大气污染模拟生成箱长为50 cm,高为20 cm,宽为20 cm。利用有机玻璃是因为在箱体外部可以清楚地看到内部的情况,而且大气污染模拟生成箱需要有足够长才有利于因团聚而造成粒径较大的粒子进行沉降。检测舱也是由有机玻璃制成的箱体,长为70 cm,宽为70 cm,高为100 cm,这样足够大的箱体有利于颗粒物在其中自由运动且均匀分布。而且在检测舱内部放置了一台气象站,能够实时得到监测舱内部的颗粒物浓度。在颗粒物消光测量之前,利用气象站测量检测舱内部的几个不同位置质量浓度,验证其一致性,说明检测舱内部颗粒物分布的均匀性。其方法为将大气污染颗粒物吹入污染模拟检测舱之后对检测舱进行封闭,当气象站测到检测舱内部颗粒物浓度不随时间变化时,拉动气象站尾部的数据线使气象站在检测舱内进行缓慢移动,测量得到检测舱内部不同位置的颗粒物浓度验证其一致性。

### 1.2 消光测量装置

消光测量装置主要由激光器、开放式的Herriot长光程吸收池、光功率计和分光镜来构成,由图1可以看出整体的光路设计。光源是波长为532 nm的激光器(长春镭锐光电科技有限公司),光束尺寸为1 mm且光束发散角小于1.5 mrad,由于光束尺寸较小且发散角较小,该光束可近似为准直光束,不需要进行聚焦,且该光束能够更好地在Herriot长光程吸收池中进行多次反射和传输。Herriot长光程吸收池的总光程为31.2 m(索雷博光电科技上海有限公司),光以固定的角度入射到Herriot长光程吸收池内部,在Herriot池中来回反射60次完成31.2 m长光程的传输,Herriot池内部反射镜在532 nm波长下的反射率是98.5%。532 nm激光光束在开放式Herriot长光程吸收池内部的传输如图3,图3(a)为532 nm激光在开放式Herriot长光程吸收池

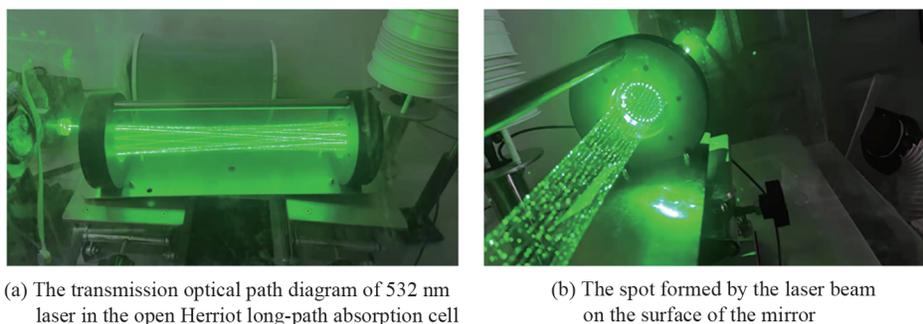


图3 532 nm激光在开放式Herriot长光程吸收池内部的传输

Fig. 3 The transmission of 532 nm laser in the open Herriot long path absorption cell

内部传输光路,图3(b)为激光光束在反射镜表面形成的光斑。光功率计(索雷博光电科技上海有限公司)可以实时进行光强监测。

为了消除激光强度波动引起的误差,测量利用了差分法。将激光光源通过一个分光镜,将光分成两束,一束光作为参考光用光功率计直接进行监测,另一束光通过 Herriot 长光程吸收池之后再用光功率计进行检测,利用分光镜的分光比例得出在 Herriot 长光程吸收池内部光束能量的实时大小,因此在计算消光系数时减少了激光器自身能量波动的影响。通过 Herriot 长光程吸收池的光束能够反映在 Herriot 池内部的颗粒物由于散射和吸收对于光造成的衰减。同时在检测舱内部放置气象站监测检测舱内部的颗粒物浓度的变化,该气象站(北京盟创伟业科技有限公司 MC-6000)为圆柱体(如图4),直径为 15.5 cm,高为 23.7 cm,粉尘传感器通过超声波技术实现对颗粒物浓度的实时监测,且对每分钟的颗粒物浓度数据进行记录,

测量中颗粒物浓度的最大量程为  $1\ 000\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、准确度为  $1\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ 。同时能够监测污染模拟检测舱内部的温度和湿度,温度范围为  $-50.0\sim 100.0\text{ }^\circ\text{C}$ 、准确度为  $\pm 0.2\text{ }^\circ\text{C}$ ,湿度范围为  $0\sim 99.9\%$ 、准确度为  $\pm 3\%$ 。气象站体积相对于污染物模拟检测舱来说较小,不影响污染物的均匀性,因此不影响消光系数的测量。通过上述测量数据可计算得到颗粒物消光系数和质量浓度之间的关系。

开放式的 Herriot 长光程吸收池模型如图5,半径为 11.31 cm、长为 43.78 cm,是一个由铝合金制成的圆柱型,左右两边有两个球面反射镜,使光能够在腔体内来回反射以达到延长光程的目的。原始的 Herriot 长光程吸收池设计是为了检测气体的吸收特性,因此在 Herriot 长光程吸收池中间安装有一个圆柱型的透明玻璃管来形成一个密闭的空间,有利于对被测气体的测量。但是利用原始封闭式 Herriot 长光程吸收池来测量颗粒物的消光特性,会带来两个缺点,第一是通过气孔进入到消光测试腔体内部的颗粒物会导致颗粒物在腔体内部分布不均匀,很多粒子会随着气流运动甚至直接吸附到玻璃壁上,很难监测到腔体内部导致消光的颗粒物实时浓度、粒径大小分布等数据。其次是长时间的测量会使污染物颗粒沉积到反射镜表面导致长光程吸收池内部两个反射镜反射率降低,不仅大大减小仪器的灵敏度,同时也使得光束多次反射之后很难穿透吸收池被监测到。因此,将 Herriot 长光程吸收池改造成为开放式之后,消光检测的颗粒物是均匀分布在检测舱内部的颗粒物,提高了消光测量的精度,且对于颗粒物实时浓度、粒径分布等数据的获取也更为方便。在每次大气污染颗粒物的消光测量中发现,由于镜面污染造成的能量衰减约在  $0.2\sim 0.3\ \text{mW}$ ,对大气污染颗粒物消光系数的测量造成的误差约为  $1.07\%\sim 1.60\%$ 。因此为了减小此误差对实验造成的影响,在每次消光测量结束之后对反射镜面进行清洁。



图4 气象站实物图

Fig. 4 Physical map of meteorological station

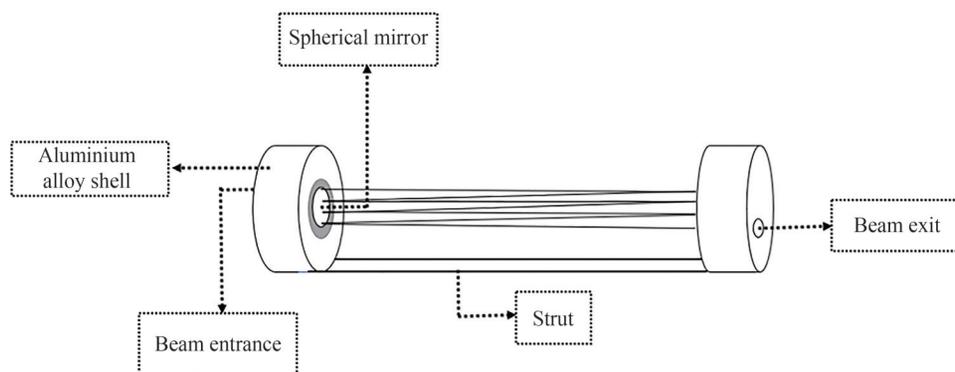


图5 Herriot 长光程吸收池改造后模型

Fig.5 Model after modification of Herriot long-path absorption cell

## 2 实验验证

### 2.1 实验测量

进行消光测量实验前,首先将光路调整好,让激光光束能够通过 Herriot 池且被光功率计监测到。然后将污染颗粒物放入到大气污染颗粒物放置箱中,利用鼓风机将污染颗粒物吹散,污染颗粒物经过模拟生成箱之后进入到污染模拟检测舱,等待 10 min 让污染颗粒物在检测舱内均匀分布且处于平衡稳定状态。打开激光器对污染颗粒物进行消光测量,然后利用污染颗粒物收集装置对检测舱内的污染颗粒物浓度进行调控,得到不同浓度下对应的消光数据。对于颗粒物消光测量进行重复测量 5 次以上。在每次测量时,同时记录分光镜分光之后直接测量的光功率、通过开放式的 Herriot 长光程吸收池之后的光功率和气象站监测到的实时浓度。通过计算得到颗粒物消光系数和质量浓度之间的关系。同时在每次测量的过程中,在检测舱内放置导电胶带,让颗粒物能够沉积到导电胶带上,然后利用 SEM 对导电胶带进行观测,来得到检测舱内颗粒物的真实粒径分布状态。

### 2.2 消光系数计算

当入射光穿过气溶胶颗粒物时,由于米氏散射引起的入射光的功率会下降,由朗伯-比尔定律得

$$I/I_0 = \exp(-bL) \quad (1)$$

式中, $I_0$ 和 $I$ 分别表示入射光功率和出射光功率, $L$ 表示光程的长度, $b$ 表示消光系数。将污染颗粒物视为球状,颗粒物的消光系数 $b$ 可表示为

$$b = \pi \int_{r_1}^{r_2} Q_E(\alpha, m) r^2 n(r) dr \quad (2)$$

式中, $\alpha$ 为尺寸参数,且 $\alpha = 2\pi r/\lambda$ , $r$ 为粒子半径, $m$ 为粒子相对于空气的折射率, $n(r)$ 为粒子的尺寸分布, $Q_E(\alpha, m)$ 为粒子消光效率因子。当颗粒物粒径大小接近入射光波长时, $Q_E$ 可以从接近 0 变化到大约 4,而颗粒物粒径大小远远大于入射光波长时, $Q_E$ 接近 2。而消光系数 $b$ 和质量浓度的关系,由 ENSOR D S 等的研究<sup>[28]</sup>可知

$$b = S_p W \quad (3)$$

式中, $S_p$ 表示粒子的消光截面, $W$ 表示颗粒质量浓度,球形颗粒的颗粒质量浓度 $W$ 表示为

$$W = \frac{4}{3} \pi \rho \int_{r_1}^{r_2} r^3 n(r) dr \quad (4)$$

式中, $\rho$ 表示平均颗粒物密度。Horvath 和 Charlson 的研究表明<sup>[29]</sup>,颗粒物质量浓度和消光系数之间有一定的相关性,可以用 $W/b$ 表示,带入式(2)和(4)可得

$$W/b = \frac{\frac{4}{3} \rho \int_{r_1}^{r_2} r^3 n(r) dr}{\int_{r_1}^{r_2} Q_E(\alpha, m) r^2 n(r) dr} \quad (5)$$

由粒径尺寸分布 $n(r)$ 与总粒子数浓度 $N$ 和粒数分布频率 $f(r)$ ,可得

$$n(r) = Nf(r) \quad (6)$$

因此将式(6)带入式(5)可得

$$W/b = \rho \left[ \frac{\frac{4}{3} \int_{r_1}^{r_2} r^3 f(r) dr}{\int_{r_1}^{r_2} Q_E(\alpha, m) r^2 f(r) dr} \right] \quad (7)$$

为了方便,PILAT M J等<sup>[30]</sup>将式(7)括号里的积分比定义为 $K$ ,说明 $K$ 是一个关于粒子尺寸分布、折射率和入射光波长之间的函数。

由式(1)、(3)和(7)可得

$$W = -K \frac{\rho}{L} \ln(I/I_0) \quad (8)$$

由式(1)可得

$$b = -\frac{1}{L} \ln\left(\frac{I}{I_0}\right) \quad (9)$$

因此由式(8)可得

$$b = \frac{1}{K\rho} W \quad (10)$$

由式(10)可以得到消光系数和质量浓度之间的斜率为 $\frac{1}{K\rho}$ ,得出消光斜率的大小由粒子 $K$ 、 $\rho$ 所决定,由式(7)可知 $K$ 由粒子尺寸分布、折射率、入射光波长所决定,由式(11)可知 $\rho$ 由粒子质量和粒径大小所决定<sup>[31]</sup>。

$$\rho = \frac{m}{V} = \frac{6m}{\pi d^3} \quad (11)$$

因此质量浓度和消光系数之间的消光斜率由大气污染颗粒物的折射率和粒径尺寸分布所决定。

### 2.3 消光模拟测量系统的实验验证

将通过消光模拟测量系统获得的消光系数与激光雷达获得的真实大气污染颗粒物的消光系数进行对比,验证所搭建的消光模拟测量系统的可靠性。由于真实环境中大气污染气溶胶颗粒物组分比较复杂,含有多种物质成分,在实验室模拟全部污染颗粒物物质组成来进行消光测量是很难实现的。由式(2)中消光系数的 $b$ 定义可知,消光系数 $b$ 是关于颗粒物折射率、粒径尺寸分布、峰值粒径大小的函数。因此在进行消光模拟测量时,可选择与实际雾霾气溶胶颗粒物具有相同折射率、粒径尺寸分布、峰值粒径大小的颗粒物。

不同组分相同粒径尺寸分布状态下的颗粒物消光系数的大小由折射率( $n + ik$ )决定,因此不同组分相同粒径尺寸分布状态下的颗粒物只要折射率相同,则其消光系数相同。杜样等<sup>[32]</sup>利用激光雷达探测到在532 nm波长下大气污染颗粒物的折射率为 $1.46 + 0.003i$ ,因此在实验室进行消光模拟测量时选择532 nm的激光器,并且选择在532 nm波长下折射率为 $1.46 + 0.003i$ 的颗粒物。CHAN Y等<sup>[33]</sup>的研究发现在污染颗粒物的消光过程中,吸收系数相对于散射系数来说非常小可忽略不计,因此折射率的虚部对消光的影响可忽略不计。由于 $\text{SiO}_2$ 颗粒物在532 nm波长下的折射率为1.46,因此选择 $\text{SiO}_2$ 颗粒物进行消光测量。由消光系数 $b$ 的计算可知粒子尺寸分布、峰值粒径大小也影响消光系数,因此要模拟出和真实大气污染颗粒物有相同尺寸分布、峰值粒径大小的颗粒物,才能准确测量得到相同的消光系数。程雅芳等<sup>[34]</sup>研究得出,常见的大气污染颗粒物为峰值粒径大约在 $0.5 \mu\text{m}$ 左右的对数正态分布。考虑到颗粒物进入大气污染物模拟装置后会发团聚改变颗粒物原本的粒径大小及分布。因此,为了获得与常见大气污染颗粒物相同的颗粒物粒径大小及其分布,购买了粒径大约在 $0.2 \mu\text{m}$ 、 $0.4 \mu\text{m}$ 、 $0.6 \mu\text{m}$ 、 $0.8 \mu\text{m}$ 、 $1 \mu\text{m}$ 的5种不同粒径的 $\text{SiO}_2$ 颗粒物进行大气污染颗粒物的消光模拟测量。图6为5种不同粒径 $\text{SiO}_2$ 颗粒物在大气污染模拟舱内沉降到扫描电子显微镜(Scanning Electron Microscope, SEM)样品台导电胶带上的SEM图,此图像利用ImageJ软件进行粒径统计,得到如图7所示的5种不同粒径 $\text{SiO}_2$ 颗粒物在污染模拟检测舱中的粒径大小及其分布, $0.2 \mu\text{m}$  $\text{SiO}_2$ 颗

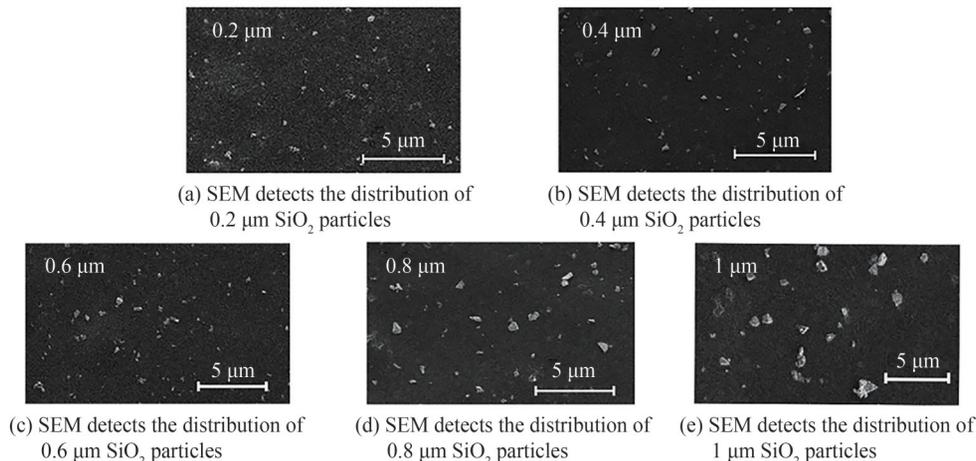


图6 五种不同粒径颗粒物的形貌  
Fig. 6 Morphology of particles with five different particles

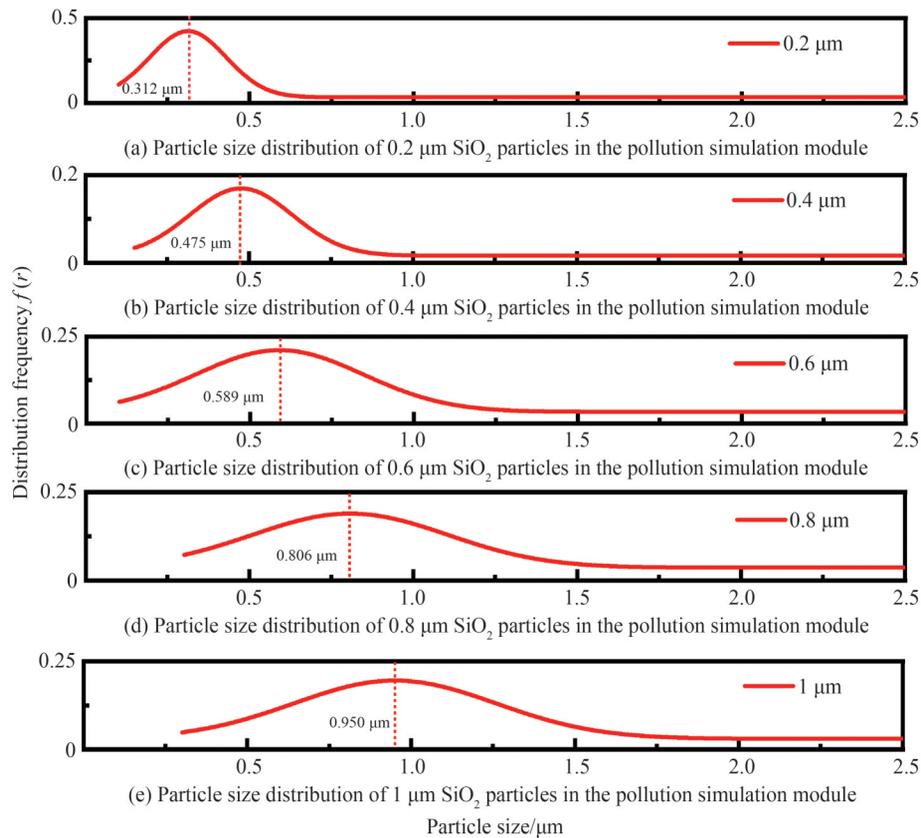
图7 五种不同粒径的SiO<sub>2</sub>颗粒物在污染模拟检测舱中统计出的粒径分布

Fig. 7 Effective particle size distribution of SiO<sub>2</sub> particles with five different particle sizes in pollution simulation detection module

颗粒物进入污染模拟检测舱之后呈现出峰值粒径大小为0.312 μm的对数正态分布,0.4 μm SiO<sub>2</sub>颗粒物进入污染模拟检测舱之后呈现出峰值粒径大小为0.475 μm的对数正态分布,0.6 μm SiO<sub>2</sub>颗粒物进入污染模拟检测舱之后呈现出峰值粒径大小为0.589 μm的对数正态分布,0.8 μm SiO<sub>2</sub>颗粒物进入污染模拟检测舱之后呈现出峰值粒径大小为0.806 μm的对数正态分布,1 μm SiO<sub>2</sub>颗粒物进入污染模拟检测舱之后呈现出峰值粒径大小为0.95 μm的对数正态分布。其中利用0.4 μm SiO<sub>2</sub>颗粒物进行消光模拟可以得到峰值粒径大约在0.5 μm左右呈对数正态分布。为了确保0.4 μm SiO<sub>2</sub>颗粒物统计准确性,利用SEM对0.4 μm SiO<sub>2</sub>颗粒物沉降在导电胶带上的形貌大小进行多次检测,如图8所示。对图8中的4张SEM图进行粒子统计得到SiO<sub>2</sub>颗粒物峰

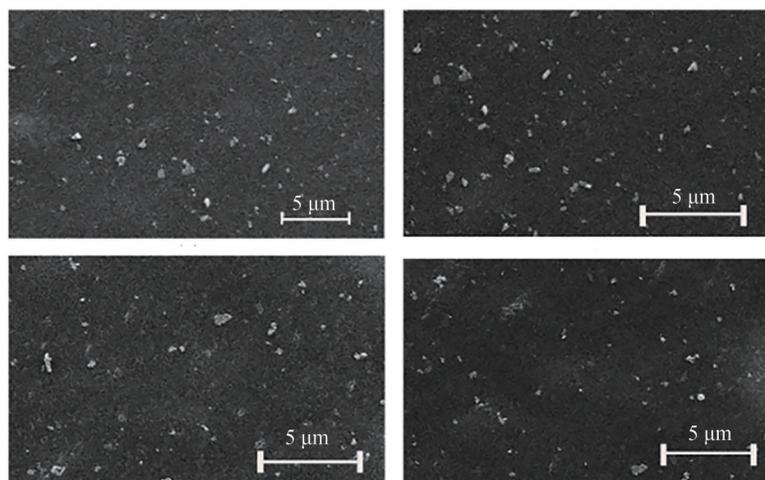
图8 0.4 μm的SiO<sub>2</sub>颗粒物在污染模拟检测舱中检测到的形貌

Fig. 8 Morphology of 0.4 μm SiO<sub>2</sub> particles detected in pollution simulation detection chamber

值粒径为  $0.475\ \mu\text{m}$  的对数正态分布。同时利用  $0.4\ \mu\text{m}$   $\text{SiO}_2$  颗粒物进行消光测量,在  $532\ \text{nm}$  入射光波长下消光测量结果如图 9,从图 9 中可以得出消光系数和质量浓度之间有良好的线性相关性  $R^2 = 0.997$ ,随着颗粒物浓度越来越大,消光系数也越来越大。按照式(8)理论结果计算得出消光系数  $b$  和质量浓度之间的斜率,对  $1/K\rho$  于某一固定颗粒物的消光测量该斜率为常数,因此测得消光系数和质量浓度之间为线性变化。由图 9 可知,激光雷达的消光斜率为  $4.00 \times 10^{-3}$ ,消光测量系统的消光斜率为  $3.83 \times 10^{-3}$ ,因此两者的消光斜率仅相差  $4.25\%$ ,而且在测量得到的消光系数中,激光雷达与消光测量系统测量得到的消光系数最大浓度  $731\ \mu\text{g}/\text{m}^3$  处仅相差  $4.21\%$ ,验证了所搭建消光模拟测量系统的可靠性。同时将  $\text{SiO}_2$  颗粒物峰值粒径、折射率、入射光波长等参数带入到 Mie 散射理论计算中,得到由 Mie 散射理论计算的结果,如图 9。Mie 散射理论计算得到的消光斜率与实验室模拟测量的消光斜率误差为  $12.53\%$ ,与激光雷达测量得到的消光斜率误差为  $7.75\%$ 。

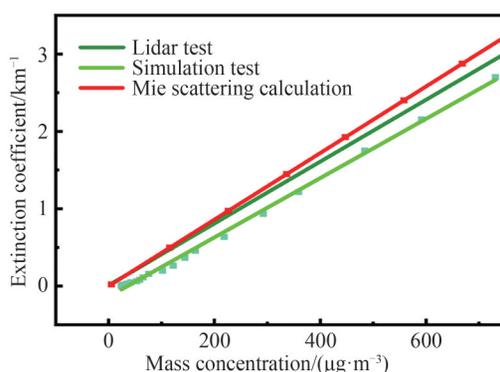


图 9 实验室测量、激光雷达以及理论计算得到的消光对比

Fig. 9 Extinction comparison from laboratory measurement, lidar and theoretical calculation

为进一步验证实验方法的准确性,同时对其它四种粒径下的颗粒物进行了消光测量。图 10 为 5 种不同粒径的  $\text{SiO}_2$  颗粒物在污染模拟检测舱中检测到的消光系数以及激光雷达探测到的消光系数,  $0.2\ \mu\text{m}$   $\text{SiO}_2$  颗粒物消光斜率为  $5.58 \times 10^{-3}$ ,  $0.4\ \mu\text{m}$   $\text{SiO}_2$  颗粒物消光斜率为  $3.83 \times 10^{-3}$ ,  $0.6\ \mu\text{m}$   $\text{SiO}_2$  颗粒物消光斜率为  $3.41 \times 10^{-3}$ ,  $0.8\ \mu\text{m}$   $\text{SiO}_2$  颗粒物消光斜率为  $2.80 \times 10^{-3}$ ,  $1\ \mu\text{m}$   $\text{SiO}_2$  颗粒物消光斜率为  $4.76 \times 10^{-3}$ 。可知除  $0.4\ \mu\text{m}$   $\text{SiO}_2$  颗粒物以外其它四种粒径下测量得到的消光斜率与激光雷达探测到的消光斜率相差至少  $19.01\%$  以上,最大浓度  $750\ \mu\text{g}/\text{m}^3$  处的消光系数相差至少  $18.60\%$  以上,说明在不同粒径下测量得到的消光系数确实不同,同时进一步说明在模拟真实大气污染物时应选择与真实大气污染物有相同粒径大小分布的颗粒物,才能测量到相同的消光系数,与消光系数  $b$  的理论计算原理一致。同时,测量得到这 5 种不同粒径颗粒物的消光变化规律符合 Grabner 理论计算模型<sup>[35]</sup>,进一步验证了所搭建消光模拟测量装置测量的准确性。

此外,还选择了粒径大小和分布基本相同但折射率不同的颗粒物进行消光测量。由于  $\text{Al}_2\text{O}_3$  颗粒物

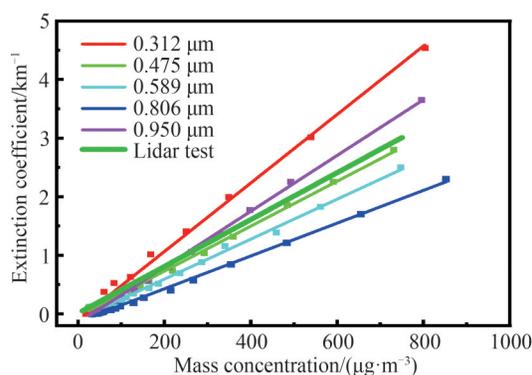
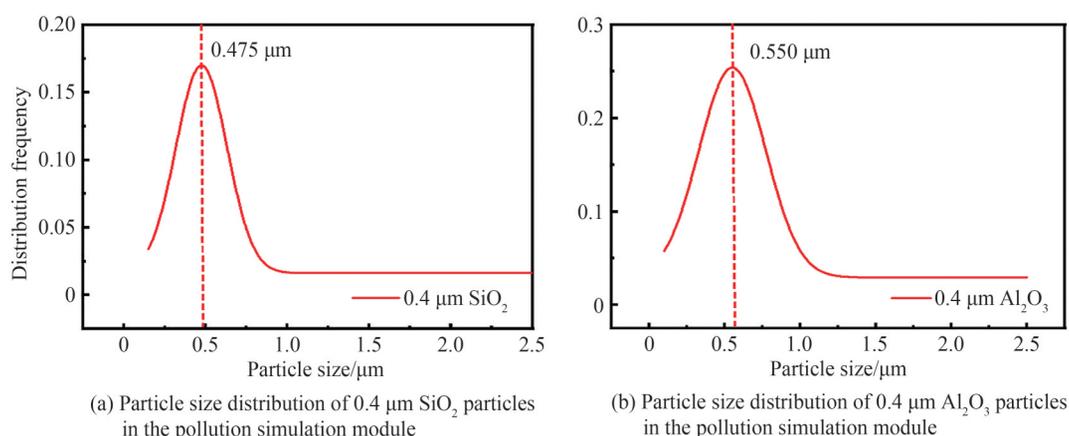
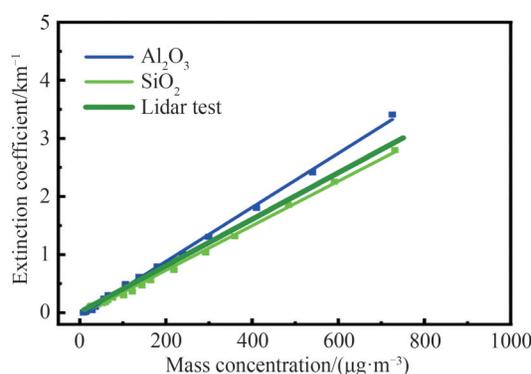


图 10 不同粒径下的消光对比

Fig. 10 Comparison of extinction under different particle sizes

在532 nm波长下折射率为1.77,与激光雷达和SiO<sub>2</sub>颗粒物的折射率明显不同,并且经过多次模拟测试得出0.4 μm Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>颗粒物进行模拟呈现峰值粒径为0.5 μm的对数正态分布,因此选择0.4 μm Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>颗粒物进行消光测量。在污染颗粒物模拟检测舱中检测到0.4 μm Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>颗粒物的峰值粒径大小为0.550 μm(如图11(b))。图11中比较了0.4 μm SiO<sub>2</sub>和0.4 μm Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>这两种物质的峰值粒径,仅相差0.075 μm,可忽略不计。图12为0.4 μm Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、0.4 μm SiO<sub>2</sub>和激光雷达在不同浓度下测量得到的消光系数,0.4 μm Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>的消光斜率为 $4.65 \times 10^{-3}$ ,0.4 μm SiO<sub>2</sub>的消光斜率为 $3.83 \times 10^{-3}$ ,激光雷达的消光斜率为 $4.00 \times 10^{-3}$ ,因此0.4 μm Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>的消光斜率与激光雷达检测到的消光斜率相差16.25%,测量得到最大浓度725 μg/m<sup>3</sup>处的消光系数相差17.59%;与SiO<sub>2</sub>颗粒物测量得到的消光斜率相差21.41%,测量得到最大浓度725 μg/m<sup>3</sup>处的消光系数相差17.85%。因此折射率不同的颗粒物消光斜率相差较大。在理论计算中,当折射率不同时,得到的 $Q_E(\alpha, m)$ 不同,进一步得出消光系数 $b$ 也完全不同,与理论计算相符,进一步证明实验的合理性。

图11 检测到的SiO<sub>2</sub>和Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>峰值粒径对比Fig. 11 Comparison of effective particle sizes detected by SiO<sub>2</sub> and Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> in pollution simulation detection module图12 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、SiO<sub>2</sub>的消光和激光雷达消光的对比Fig. 12 Comparison of extinction of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, SiO<sub>2</sub> and lidar

## 2.4 实验结果与讨论

利用所搭建的大气污染颗粒物模拟测量系统进行大气污染颗粒物的模拟和光测量,测量得到颗粒物在不同浓度下的消光系数。通过将实验室模拟测量真实大气污染物的消光系数与真实大气环境下激光雷达测量得到的消光系数进行对比,验证了该方法的可靠性,通过改变颗粒物的粒径以及折射率进一步验证了模拟测量方法的合理性。

1)利用0.4 μm折射率为1.46的SiO<sub>2</sub>颗粒物在所搭建的大气污染消光模拟测量系统中进行消光测量,得到不同浓度下的消光系数。与真实大气中激光雷达探测到的消光系数进行对比,消光斜率相差4.21%,消光系数在最大浓度处相差4.21%,验证了实验方法的可靠性。

2)通过对0.2 μm、0.6 μm、0.8 μm和1 μm粒径的SiO<sub>2</sub>颗粒物进行消光测量,得到的消光斜率分别为

$5.58 \times 10^{-3}$ 、 $2.80 \times 10^{-3}$ 、 $3.41 \times 10^{-3}$ 、 $4.76 \times 10^{-3}$ ,不同粒径下的消光的变化规律符合 Grabner 理论计算模型<sup>[35]</sup>,与激光雷达探测到的消光斜率相差较大,最大浓度处的消光系数也相差较大。其次利用相同粒径分布但不同折射率的  $\text{Al}_2\text{O}_3$  颗粒物进行消光测量,得出在不同折射率下测量得到的消光斜率相差较大,最大浓度处的消光系数也相差较大,与理论计算相符,进一步验证实验方法的合理性。

### 3 结论

基于光在长光程吸收池中的传输特点,自主搭建了一套全新的大气污染颗粒物消光特性的实验模拟测量系统。该系统通过选择合适折射率和粒径尺寸分布的颗粒物,模拟出与真实大气污染物相同消光特性的颗粒物,实现对大气污染颗粒物消光特性的实验室模拟测量。通过对 Herriot 长光程吸收池的开放式改造实现了颗粒物在测试路径中的均匀分布,同时方便了对其内部反射镜表面的清洁;利用差分法减少了激光器本身能量波动对消光系数测量带来的误差,提高消光系数测量的灵敏度。通过将该系统测量得到的消光系数与真实大气中激光雷达测得消光数据对比,说明了所搭建模拟测量系统的可靠性。

#### 参考文献

- [1] HAN S, BIAN H, ZHANG Y, et al. Effect of aerosols on visibility and radiation in spring 2009 in Tianjin, China[J]. *Aerosol and Air Quality Research*, 2012, 12(2): 211-217.
- [2] LEIBENSPERGER E M, MICKLEY L J, JACOB D J, et al. Climatic effects of 1950-2050 changes in US anthropogenic aerosols-Part 1: Aerosol trends and radiative forcing[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2012, 12(7): 3333-3348.
- [3] POSCHL U. Atmospheric aerosols: composition, transformation, climate and health effects[J]. *Angewandte Chemie International Edition*, 2005, 44(46): 7520-7540.
- [4] LOHMANN U. Aerosol effects on clouds and climate[J]. *Space Science Reviews*, 2006, 125(1): 129-137.
- [5] BOÉ J. Modulation of the summer hydrological cycle evolution over western Europe by anthropogenic aerosols and soil-atmosphere interactions[J]. *Geophysical Research Letters*, 2016, 43(14): 7678-7685.
- [6] LOHMANN U, FEICHTER J. Global indirect aerosol effects: a review[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2005, 5(3): 715-737.
- [7] MUKAI M, NAKAJIMA T, TAKEMURA T. A study of anthropogenic impacts of the radiation budget and the cloud field in East Asia based on model simulations with GCM[J]. *Journal of Geophysical Research*, 2008, 113: D12211.
- [8] WANG Y, WANG M, ZHANG R, et al. Assessing the effects of anthropogenic aerosols on Pacific storm track using a multiscale global climate model[J]. *Proceedings of the National Academy of Science*, 2014, 111(19): 6894-6899.
- [9] SHAO T, LIU Y, WANG R, et al. Role of anthropogenic aerosols in affecting different-grade precipitation over eastern China: A case study[J]. *Science of The Total Environment*, 2022, 807: 150886.
- [10] CHANG D, SONG Y, LIU B. Visibility trends in six megacities in China 1973-2007[J]. *Atmospheric Research*, 2009, 94(2): 161-167.
- [11] ZHAO P, ZHANG X, XU X, et al. Long-term visibility trends and characteristics in the region of Beijing, Tianjin, and Hebei, China[J]. *Atmospheric Research*, 2011, 101(3): 711-718.
- [12] ZHANG X Y, WANG Y Q, NIU T, et al. Atmospheric aerosol compositions in China: spatial/temporal variability, chemical signature, regional haze distribution and comparisons with global aerosols [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2012, 12(2): 779-799.
- [13] FIOCCO G, SMULLIN L D. Detection of scattering layers in the upper atmosphere (60140 km) by optical radar[J]. *Nature*, 1963, 199(4900): 1275-1276.
- [14] LIU Dong, QI Fudi, JIN Chuanjia, et al. Lidar detection of depolarization ratio of cirrus cloud and dust aerosol over Hefei[J]. *Chinese Journal of Atmosphere Sciences*, 2003, 27(6): 1093-1100.  
刘东, 戚福弟, 金传佳, 等. 合肥上空卷云和沙尘气溶胶退偏振比的激光雷达探测[J]. *大气科学*, 2003, 27(6): 1093-1100.
- [15] XIE Chenbo, ZHOU Jun, YUE Guming, et al. Tropospheric water vapor measurement using a new vehicle mounted Raman lidar[J]. *Acta Optica Sinica*, 2006, 26(9): 1281-1286.  
谢晨波, 周军, 岳古明, 等. 新型车载式拉曼激光雷达测量对流层水汽[J]. *光学学报*, 2006, 26(9): 1281-1286.
- [16] SONG Xiaquan, GUO Jinjia, YAN aizhao, et al. Detection of atmospheric aerosol optical parameters by Hyperspectral resolution lidar[J]. *Progress in Natural Science*, 2008, 18(9): 1009-1015.  
宋小全, 郭金家, 闫召爱, 等. 大气气溶胶光学参数的高光谱分辨率激光雷达探测研究[J]. *自然科学进展*, 2008, 18(9): 1009-1015.
- [17] SONG Hairun, WANG Xiaolei, LI Hao, et al. Vertical visibility retrieval algorithm based on lidar and its error evaluation[J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2020, 32(3): 50-56.

- 宋海润, 王晓蕾, 李浩, 等. 基于激光雷达的垂直能见度反演算法及其误差评估[J]. 强激光与粒子束, 2020, 32(3): 50-56.
- [18] TAO Zongming, WU Decheng, LIU Dong, et al. Error estimation of aerosol backscattering coefficient retrieved by lidar [J]. Chinese Journal of Lasers, 2011, 38(12): 212-216.  
陶宗明, 吴德成, 刘东, 等. 激光雷达反演气溶胶后向散射系数误差估算[J]. 中国激光, 2011, 38(12): 212-216.
- [19] MILHAM M E. Determination of optical constants from extinction measurements [J]. Journal of the Optical Society of America, 1981, 71(9): 1099-1106.
- [20] WHITE J U. Long optical paths of large aperture [J]. Journal of the Optical Society of America, 1942, 32(5): 285-288.
- [21] HERRIOT D R, SCHULTE H J. Folded optical delay lines [J]. Applied Optics, 1965, 4(8): 883-889.
- [22] HERRIOT D R, KOGLNIK H, KOMPFFNER R. Off-axis paths in spherical mirror interferometers [J]. Applied Optics, 1964, 3(4): 523-526.
- [23] WANG Rui. Study on long path gas cell of infrared spectrometer [D]. Tianjin: Tianjin University, 2006: 1-57.  
王蕊. 红外光谱仪长光程气体池的研究 [D]. 天津: 天津大学, 2006: 1-57.
- [24] OFNER J, KRUGER H U, ZETZSCH C. Circular multireflection cell for optical spectroscopy [J]. Applied Optics, 2010, 49(26): 5001-5004.
- [25] XIA Hua, DONG Fengzhong, TU Guojie, et al. High sensitivity detection of CO based on a new long path multiple reflection cell [J]. Acta Optica Sinica, 2010, 30(9): 2596-2601.  
夏滑, 董凤忠, 涂郭结, 等. 基于新型长光程多次反射池的 CO 高灵敏度检测 [J]. 光学学报, 2010, 30(9): 2596-2601.
- [26] YANG Z, GUO Y, MING X, et al. Generalized optical design of the Double-row circular multi-pass cell [J]. Sensors, 2018, 18(8): 2680.
- [27] JIANG M, LIU X, CHEN D, et al. Light extinction method for measuring a low particle concentration with white cell optics: relationship between light transmittance and particle properties [J]. Energy & Fuels, 2019, 33(11): 12063-12072.
- [28] ENSOR D S, PILAT M J. Calculation of smoke plume opacity from particulate air pollutant properties [J]. Journal of the Air Pollution Control Association, 1971, 21(8): 496-501.
- [29] HORVATH H, CHARLSON R J. The direct optical measurement of atmospheric air pollution [J]. American Industrial Hygiene Association Journal, 1969, 30(5): 500-509.
- [30] PILAT M J, ENSOR D S. Plume opacity and particulate mass concentration [J]. Atmospheric Environment, 1970, 4(2): 163-173.
- [31] FAN Ruxia, SUN Junying, ZHANG Lu, et al. Progress in atmospheric aerosol density observation [J]. Journal of Glaciology and Geocryology, 2018, 40(5): 925-933.  
樊茹霞, 孙俊英, 张璐, 等. 大气气溶胶密度观测研究进展 [J]. 冰川冻土, 2018, 40(5): 925-933.
- [32] DU Yang. Application range analysis of multi wavelength lidar particle mass concentration detection method [D]. Xi'an: Xi'an University of Technology, 2017: 19-48.  
杜洋. 多波长激光雷达颗粒物质量浓度探测方法适用范围分析 [D]. 西安: 西安理工大学, 2017: 19-48.
- [33] CHAN Y, SIMPSON R, MCTAINSH G, et al. Source apportionment of visibility degradation problems in Brisbane (Australia) using the multiple linear regression techniques [J]. Atmospheric Environment, 1999, 33(19): 3237-3250.
- [34] CHENG Yafang. Radiative properties of atmospheric aerosols in the Pearl River Delta: observation based model method and its application [M]. Beijing: Science Press, 2008.  
程雅芳. 珠江三角洲大气气溶胶辐射特性: 基于观测的模型方法及应用 [M]. 北京: 科学出版社, 2008.
- [35] GARBNER M, KVICERA V. The wavelength dependent model of extinction in fog and haze for free space optical communication [J]. Optical Express, 2011, 19(4): 3379-3386.

## A New Extinction Measurement System for Air Pollutants

ZHAO Xiyuan, QI Yumei, QIAO Yadong, LI Yang, WANG Yuhang, WANG Fengping  
(School of Mathematics and Physics, University of Science and Technology Beijing, Beijing 100083, China)

**Abstract:** Based on the characteristics of light transmission in a long path absorption cell, a laboratory simulation system for measuring the extinction characteristics of atmosphere pollution particles is designed. The system consists of an extinction characteristics measurement device and an atmosphere pollution particle simulation device. The extinction characteristics measurement device consists of a laser, an open Herriot long path absorption cell, and an optical power meter. In the extinction characteristics measurement

device, the laser is divided into two beams. One beam enters the open long path absorption cell, and this beam then is reflected many times by the internal high reflective mirrors of the open long path absorption cell and is emitted from the outlet of the open long path absorption cell. Finally, this beam is received by the optical power meter at the outlet of the open long path absorption cell. The other beam after splitting is directly received by the optical power meter at the entrance of the open long path absorption cell. The extinction coefficient is calculated by the laser powers monitored at the entrance and outlet of the the open long path absorption cell. During the measurement of the laser power, the difference method is adopted to reduce the error caused by fluctuations in laser energy, and improve the accuracy of the extinction coefficient measurement. The open Herriot long path absorption cell can reflect a certain wavelength of light through two fixed high reflective mirrors multiple times to increase the optical path. At the same time, it is convenient to clean the internal mirror and improve the measurement sensitivity of the extinction coefficient. Meanwhile, the concentration of particulate matter for extinction is measured in real-time. The atmosphere pollution particle simulation device is mainly composed of an atmosphere pollution particle simulation generation device and an atmosphere pollution particle collection device. The atmosphere pollution particle simulation generation device is composed of a blower, an atmosphere pollution particulate matter storage box and an atmosphere pollution simulation generation box. The simulation generation of atmosphere pollution particles is to place the air pollution particles in the air pollution particle atmosphere pollution particulate matter storage box, and then the blower is used to blow the particles into the air pollution simulation generation box. In the atmosphere pollution simulation generation box, the particles with larger particle size will settle at the bottom of the box due to gravity, and the particles with smaller particle size will enter the pollution simulation detection module with the air flow for extinction measurement. The atmosphere pollution particle collection device is an air filter, which can well adsorb the pollution particles in the pollution simulation detection module, and reduce the pollution to the laboratory. The air pollution particle generation device and the air pollution particle collection device can well control the concentration in the pollution simulation detection module. At the same time, a small meteorological station placed in the pollution simulation and detection module can monitor the concentration of pollutant particles in the module in real time. In order to verify the rationality of the extinction measurement system, the extinction coefficients of particles with different diameters and the extinction coefficients of particles with different components are measured in the laboratory simulation system. By measuring the extinction coefficients of  $\text{SiO}_2$  particles with different particle sizes, it is found that the extinction coefficients of  $\text{SiO}_2$  particles with different particle sizes are significantly different. And then by measuring  $\text{SiO}_2$  particles and  $\text{Al}_2\text{O}_3$  particles with the same particle size finds that the extinction coefficient of particles with different components are also significantly different, which further explains that particle size and refractive index are the main factors determining the extinction coefficients. By comparing with the extinction coefficient measured by lidar in the atmospheric haze, the reliability and rationality of the extinction simulation measurement system are proved.

**Key words:** Atmosphere optics; Atmosphere pollution particulate matter; Herriot long-path absorption cell; Extinction coefficient; Refractive index

**OCIS Codes:** 010.1320; 010.1310; 010.1290; 010.1120