

## 典型地区大气气溶胶谱分布和复折射率特征研究

耿蒙<sup>1,2</sup>, 李学彬<sup>2</sup>, 秦武斌<sup>2</sup>, 刘泽阳<sup>2</sup>, 鲁先洋<sup>2</sup>, 戴聪明<sup>2</sup>, 苗锡奎<sup>3</sup>, 翁宁泉<sup>1,2</sup>

- (1. 中国科学技术大学 环境科学与光电技术学院, 安徽 合肥 230022;
2. 中国科学院安徽光学精密机械研究所 大气成分与光学重点实验室, 安徽 合肥 230031;
3. 光电对抗测试评估技术重点实验室, 河南 洛阳 471003)

**摘要:** 为了研究典型地区大气气溶胶的谱分布和复折射率的特性, 综合运用了黑碳仪、能见度仪、积分浊度仪以及光学粒子计数器 etc 等仪器对大气气溶胶进行测量。根据球形粒子的 Mie 散射理论, 利用各仪器测量的数据反演得到气溶胶复折射率, 并分析了各个地区的粒子谱分布特征, 消光系数和吸收系数随波长的变化关系。结果表明, 新疆地区、天津地区、厦门地区及合肥地区的大气气溶胶折射率实部  $n_r$  都在 1.5 左右, 虚部  $n_i$  分别为 0.01、0.017、0.008 和 0.016。新疆地区的数浓度谱分布可以用 Junge 分布来描述, 天津地区、合肥地区和厦门地区数浓度谱分布可以用 Junge 分布和对数正态分布来共同描述。最后还对四地区气溶胶消光和吸收特性随波长的变化关系进行描述, 这对于研究气溶胶气候效应具有一定的参考价值。

**关键词:** 大气气溶胶; Mie 散射; 粒子谱分布; 折射率

**中图分类号:** P427.1 **文献标志码:** A **DOI:** 10.3788/IRLA201847.0311001

## Research on the characteristics of aerosol size distribution and complex refractive index in typical areas of China

Geng Meng<sup>1,2</sup>, Li Xuebin<sup>2</sup>, Qin Wubin<sup>2</sup>, Liu Zeyang<sup>2</sup>, Lu Xianyang<sup>2</sup>, Dai Congming<sup>2</sup>,  
Miao Xikui<sup>3</sup>, Weng Ningquan<sup>1,2</sup>

- (1. Department of Environmental Science and Optoelectronic Technology, University of Science and Technology of China, Hefei 230022, China; 2. Key Laboratory of Atmospheric Composition and Optical Radiation, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China;
3. Key Laboratory of Electro-Optical Countermeasures Test & Evaluation Technology, Luoyang 471003, China)

**Abstract:** In order to study the characteristics of aerosol size distribution and complex refractive index in typical areas of China, the atmospheric aerosol was measured by using various equipments like aethalometers, visibility meters, integrating nephelometers and optical particle counter(OPC). The effective complex refractive index based on Mie scattering theory was calculated. Then, the aerosol size distribution was retrieved from the observation, and the relation between extinction and absorption coefficient with respect to wavelength was also analyzed in these typical areas. It shows that the mean values of real part

收稿日期: 2017-10-05; 修订日期: 2017-11-03

基金项目: 国家自然科学基金(41105021, 41305019)

作者简介: 耿蒙(1991-), 男, 硕士生, 主要从事大气参数测量与分析方面的研究。Email: gengmeng01@163.com

导师简介: 翁宁泉(1966-), 男, 研究员, 博士, 主要从事大气物理方面的研究。Email: wnq@aiofm.ac.cn

通讯作者: 李学彬(1980-), 男, 副研究员, 主要从事气溶胶光学特性方面的研究。Email: xbli@aiofm.ac.cn

of refractive index  $n_r$  in these area are all around 1.5, while the imaginary parts  $n_i$  are 0.01, 0.017, 0.016 and 0.008 in Xinjiang, Tianjin, Hefei and Xiamen, respectively. The number size distribution can be described by Junge size distribution in Xinjiang, while it can be described by both Junge size distribution and lognormal distribution in Tianjin, Hefei and Xiamen. The relation between extinction and absorption characteristics of aerosol and wavelength was described. The results are important for research on the climatic effects of aerosols.

**Key words:** aerosol; Mie scattering; size distribution; complex refractive index

## 0 引言

大气气溶胶是指由大气介质与悬浮在大气中的各种固体、液体粒子共同组成的一个多相体系。大气气溶胶虽然在大气中所占的比例较小,但由于其独特的物理化学特性及其在大气中发生的各种物理化学反应,对大气环境、大气辐射和气候等有很大的影响<sup>[1]</sup>。大气气溶胶粒子谱分布和复折射率  $m(m=n_r - in_i, n_r$  是折射率实部,  $n_i$  是折射率虚部)是气溶胶的重要物理参量,特别是其复折射率是模拟气溶胶辐射效应必须知道的物理参量。气溶胶复折射率虚部对决定气溶胶吸收特性必不可少,气溶胶辐射强迫对虚部的依赖甚至比实部更显著。确定气溶胶的复折射率,特别是虚部,对研究气溶胶的光学特性和气溶胶的气候效应都至关重要。

近年来国内外不断有文献报道不同地区气溶胶谱分布和复折射率的结果。如 Raut<sup>[2]</sup>等对法国巴黎地区的气溶胶进行测量,反演出 532 nm 的平均气溶胶复折射率为  $1.51(\pm 0.2) - i0.017(\pm 0.003)$ ; Ebert<sup>[3]</sup>等对东德地区的气溶胶进行测量,反演出 532 nm 的城市气溶胶的平均复折射率接近  $1.60 - i0.04$ ,实部较大主要是由于气溶胶粒子含有较高的金属氧化物/氢氧化物,而虚部较大则因为煤灰的含量较高; Muller<sup>[4]</sup>等基于多波长后向散射和消光的激光雷达测量,反演出一个与波长无关的气溶胶复折射率  $1.56 - i0.009$ ; 胡欢陵<sup>[5]</sup>等通过直接采样,利用积分片方法得到中国东部不同类型地区气溶胶粒子的折射率虚部  $n_i$  的统计特征,城市地区为 0.08,郊区偏小一些为 0.063,乡村地区为 0.03; 李学彬<sup>[6]</sup>等对厦门地区的气溶胶进行测量,得到厦门地区气溶胶粒子的变化特征,并反演出其平均复折射率近似为  $1.53 - i0.008$ ; 张

小林<sup>[7]</sup>等对合肥地区气溶胶进行测量,反演得到合肥夏季 550 nm 气溶胶平均复折射率为  $1.50 (\pm 0.34) - i0.025(\pm 0.015)$ 。中国疆域辽阔,地形与气候复杂多样,不同区域气溶胶源差异很大,因此研究典型地区气溶胶的光学参数特征尤其是气溶胶复折射率特征是很有意义的。

文中利用新疆、天津、厦门和合肥四个典型地区近地面测量的气溶胶微物理和光学特性,结合 Mie 散射模型,反演气溶胶的复折射率,特别是虚部。得到了这四个典型地区气溶胶的平均复折射率特征和气溶胶粒子数浓度谱分布,并且与其他方法独立的测量结果进行对比验证。

## 1 理论分析

### 1.1 气溶胶粒子谱分布

20 世纪中期, Junge 在对大量观测资料的统计分析的基础上,提出了一个简单的负指数函数来近似描述粒子谱,称为荣格谱分布<sup>[8]</sup>:

$$n(r) = dN/dlgr = cr^{-\nu} \quad (1)$$

式中:  $N$  为单位体积的粒子数;  $r$  为粒子半径;  $c$  为依赖于浓度的常数;  $\nu$  为 Junge 指数,表示大气中不同粒径气溶胶粒子的比例。即  $\nu$  越大大粒子所占比例越小,  $\nu$  越小大粒子所占比例越大。一般情况下指数  $\nu$  在 2 和 4 之间变化,  $\nu$  在 3 和 4 之间符合典型的霾,  $\nu \approx 2$  表示有很多雾。

目前比较常用的一种数浓度谱分布是对数正态分布,其表达式<sup>[9]</sup>为:

$$n(r) = dN/dlgr = \frac{N_0}{\sqrt{2\pi} \lg \sigma_{gm}} \exp \left[ \frac{(\lg r - \lg r_{gm})^2}{2 \lg^2 \sigma_{gm}} \right] \quad (2)$$

式中:  $N_0$  是单位体积空气中的粒子总数;  $r_{gm}$  和  $\sigma_{gm}$  分别为峰值半径和几何标准偏差。理论上只要选择合

适的  $r_{gm}$  和  $\sigma_{gm}$ , 任何气溶胶的数浓度谱分布几乎都可以用对数正态分布和它们的叠加来描述。

### 1.2 折射率的计算方法

获得折射率的常用方法大致有:(1) 直接取样法, 如滤膜取样法<sup>[9]</sup>和元素碳浓度法<sup>[10]</sup>, 其优点是简单、易操作, 缺点是测量中改变了粒子的悬浮状态, 导致测量结果误差较大。(2) 光声法<sup>[11]</sup>, 测量精度比较高, 但受环境的影响较大, 不能广泛地运用于测量。(3) 反演法<sup>[12]</sup>, 根据 Mie 散射理论, 通过仪器测量得到的气溶胶谱分布、散射系数和吸收系数来反演得到气溶胶粒子的平均复折射率。这里采用的是反演法。

文中根据 Mie 散射理论, 由气溶胶的数浓度谱分布和折射率计算出气溶胶的吸收系数和散射系数, 其公式<sup>[13]</sup>为:

$$\sigma_s = \int Q_s(\alpha, m)n(r)\pi r^2 dr \quad (3)$$

$$\sigma_a = \int Q_a(\alpha, m)n(r)\pi r^2 dr \quad (4)$$

式中:  $\alpha=2\pi r/\lambda$  为粒子的尺度参数;  $r$  为粒子半径;  $\lambda$  为入射光波长;  $m$  为粒子的折射率;  $n(r)$  是粒子的谱分布;  $Q_s$  和  $Q_a$  分别是相对应的散射效率因子和吸收效率因子。测量仪器为黑碳仪、积分浊度仪和光学粒子计数器, 它们分别测量气溶胶的吸收系数  $\sigma_a$ 、散射系数  $\sigma_s$  和数浓度谱分布  $n(r)$ , 在各仪器的测量误差范围内可以实现对气溶胶平均折射率的反演<sup>[14]</sup>。

计算气溶胶折射率的详细步骤如下: 先假设一系列实际气溶胶存在的折射率实部和虚部; 再基于粒子的谱分布和 Mie 散射理论计算出所猜测折射率粒子的散射和吸收系数; 将实际测量的气溶胶粒子的散射和吸收系数与计算值进行比较, 它们的相对差别如下<sup>[15]</sup>:

$$\varepsilon_a = (\sigma_{cal}^{abs} - \sigma_{mea}^{abs}) / \sigma_{mea}^{abs} \quad (5)$$

$$\varepsilon_s = (\sigma_{cal}^{sca} - \sigma_{mea}^{sca}) / \sigma_{mea}^{sca} \quad (6)$$

$$\varepsilon = \sqrt{(\varepsilon_a^2 + \varepsilon_s^2)} / 2 \quad (7)$$

当相对偏差  $\varepsilon$  最小时, 假设的折射率与实际大气气溶胶最接近, 此时假设的折射率可确定为实际大气气溶胶的折射率。

## 2 实验结果与分析

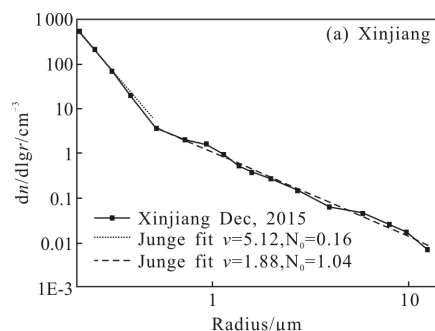
新疆库尔勒地区地处欧亚大陆和新疆腹心地

带, 温带大陆性干旱气候显著, 是典型的沙漠型气溶胶; 天津地区位于华北平原东北部, 属温带大陆型季风气候, 典型的城市污染型气溶胶; 厦门地区位于东南沿海, 属亚热带海洋季风气候, 典型的海洋型气溶胶; 合肥地区的测试点位于合肥西郊董铺水库附近, 城市污染较少, 属于北亚热带季风气候, 典型的大陆性气溶胶。文中以上述地方为代表, 分析中国典型地区气溶胶的谱分布和折射率的特征。

### 2.1 气溶胶谱分布的统计特征

使用的仪器是多道光学粒子计数器(OPC)<sup>[13-14]</sup>, 它的原理是利用粒子的光散射特性来测量粒子的浓度和数浓度谱。这里将半径为 0.15~6  $\mu\text{m}$  的粒子分为 17 档, 标定仪器所使用的标准粒子是折射率  $m=1.59-i0.0$ , 直径为  $1.745\pm 0.05 \mu\text{m}$  的聚苯乙烯小球, 测量的是气溶胶粒子的光学等效半径。

图 1(a)~(d) 为典型地区气溶胶粒子的实测谱和拟合谱。由图 1 可以看出, 只有新疆地区 12 月份的谱分布分为两段: 在半径小于 0.5  $\mu\text{m}$  的细粒模态为 Junge 分布,  $\nu=5.12, N_0=0.16$ , 半径大于 0.5  $\mu\text{m}$  的模态也为 Junge 分布,  $\nu=1.88, N_0=1.04$ 。天津、厦门和合肥地区的谱分布均分为三段: 在细粒子模态, 天津和合肥地区为对数正态分布, 峰值中心分别在 0.21、0.13  $\mu\text{m}$ , 而厦门地区为 Junge 分布,  $\nu=3.61, N_0=2.01$ , 可见厦门地区的小粒子数所占的比例较大, 说明厦门地区的气溶胶源较为复杂, 即有车辆等污染源的排放, 又受到海洋季风的影响; 在中间模态, 均为对数正态分布, 峰值中心分别在 0.80、0.86 和 0.54  $\mu\text{m}$ , 这主要在城市气溶胶中出现, 因为城市大气中存在比较丰富的半径 0.5  $\mu\text{m}$  的粒子, 一些污染气体可在其表面凝结而使之增大成半径 1.0  $\mu\text{m}$  的粒子, 符合污染城市型气溶胶的类型<sup>[15]</sup>。在粗粒子模态, 三个地区均为 Junge 分布。



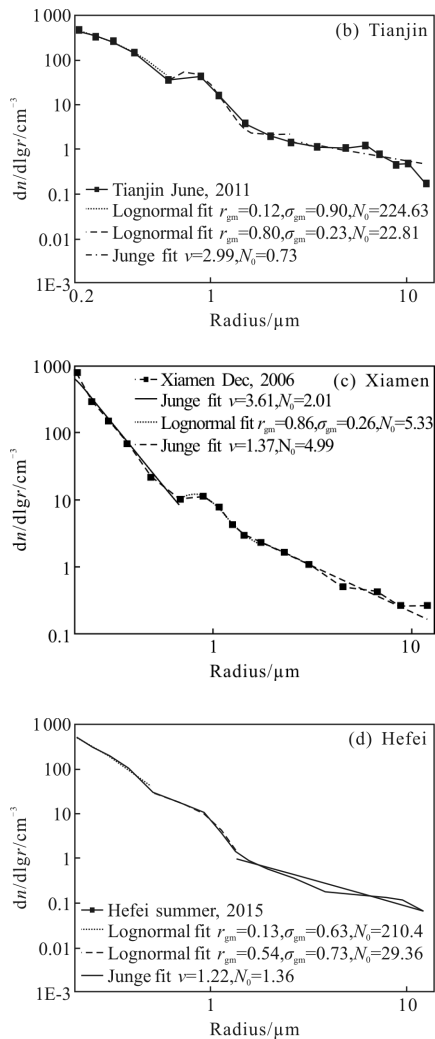


图1 典型地区气溶胶粒子的实测谱和拟合谱  
Fig.1 Measuring and fitting curves of size distributions of aerosol particles in typical area

2.2 折射率

测量吸收系数的仪器为黑碳仪(AE-31,TSI),用在天津、厦门和合肥地区测量吸收系数;另外在新疆地区测量吸收系数的仪器为光声光谱仪(PAS)。测量散射系数所用的仪器是积分浊度仪(IN3536,TSI),另外在新疆和合肥地区用的是能见度仪(FD12,U21208)。

2.2.1 新疆地区

图2是新疆地区12月9日利用Mie散射反演得到的吸收系数和消光系数与实测的吸收系数和能见度的对比。由图2可以看出吸收系数在整体趋势是下降的,在下午时出现波动。当折射率为 $1.5-i0.01$ ,理论计算和实际测量的吸收系数和能见度变化趋势基本一致,并且吻合地很好,只有在局部略有差异且差距

较小。说明新疆地区12月份的平均折射率为 $1.5-i0.01$ 。折射率虚部略大于沙漠型气溶胶的虚部,是由于实验地点受人类活动的影响,导致折射率虚部增大。

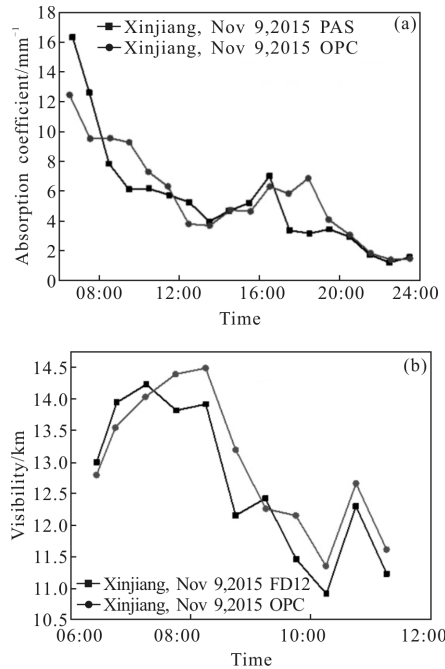
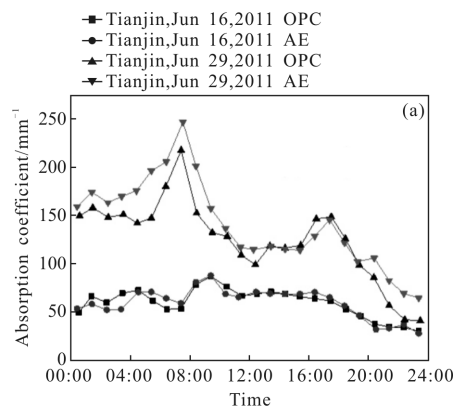


图2 新疆地区吸收系数和能见度的测量值和计算值的对比  
Fig.2 Comparison between measurement and calculation value regarding absorption and visibility in Xinjiang

2.2.2 天津地区

图3为天津地区2011年6月16、29日通过反演法得到的吸收和散射系数与实测的吸收和散射系数的对比。16日吸收和散射系数的变化趋势平缓,没有明显变化,且吸收和散射系数比较小。29日的吸收和散射系数变化加大,在上午8点和下午6点期间有明显的峰值,这是因为上下班期间,车辆较多,尾气排放量加大,导致黑碳浓度增加。而且29日



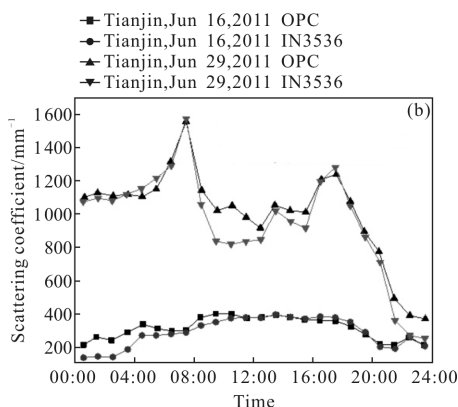


图 3 天津地区吸收和散射系数的测量值和计算值的对比  
Fig.3 Comparison between measurement and calculation value regarding absorption and scattering coefficient in Tianjin

的吸收和散射系数都比 16 日的大很多,原因是 29 日的雾霾现象较为严重,气溶胶粒子的浓度也随之增大。当折射率为  $1.5-i0.017$  时,理论计算和实测的吸收和消光系数变化趋势基本一致,且吻合地很好,说明天津地区夏季的平均折射率约为  $1.5-i0.017$ 。

2.2.3 厦门地区

图 4 为 2006 年 12 月厦门地区折射率的日变化,由图 6 可以看出,厦门地区 2006 年 12 月的折射率实部  $n_r$  的整体变化趋势不大,其值在 1.52 附近变化;虚部  $n_i$  则有明显的日变化,曲线的变化范围在 0.006~0.013 之间,平均值在 0.008 附近,曲线在早上 8 点和下午 2 点各有一个极大值和极小值,到晚上 8 时则略有上升。

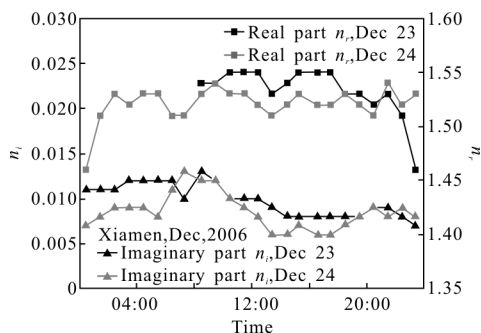


图 4 厦门地区 2006 年 12 月折射率的日变化  
Fig.4 Daily evolution of refractive index in Dec 2006 in Xiamen

2.2.4 合肥地区

图 5 为合肥地区 2015 年夏季两种方法得到的吸收和散射系数的对比,图 5(a)是 7 月份的吸收和散射系数的平均日变化,图 5(b)是 8 月份的吸收和

散射系数的平均日变化。由图 5 可以看出,吸收和散射系数都有明显的日变化特征,有两个主要原因:一、早晚交通高峰增加了污染物的排放;二、夜间边界层出现逆温,阻碍了空气流动,使污染物扩散较慢,从而导致早晨的吸收和散射系数较高;下午较低的散射和吸收系数,则主要由于较高大气边界层高度和较大的风速有利于气溶胶的扩散。7 月份,反演得到折射率为  $1.5-i0.015$ ,8 月份则偏大一些为  $1.5-i0.017$ ,因此合肥夏季的平均折射率为  $1.5-i0.016$ 。

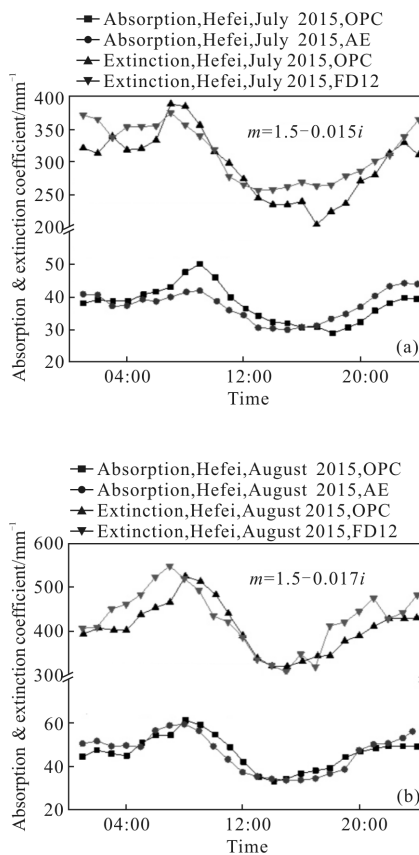
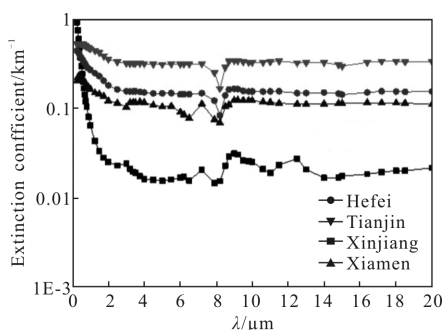


图 5 合肥地区吸收和消光系数的测量值和计算值的对比  
Fig.5 Comparison between measurement and calculation value regarding absorption and extinction coefficient in Hefei

2.3 气溶胶消光和吸收特性分析

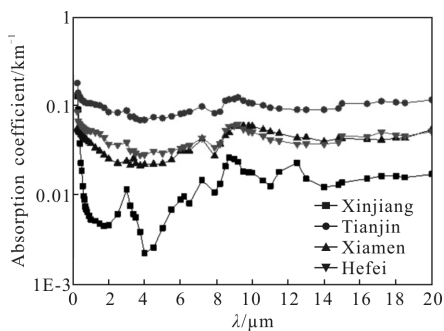
对不同波长的气溶胶光学特性进行探测时,由于是同一时间同一地区,所以气溶胶的谱分布是不变的。因此可以根据已知的谱分布,其中典型地区的气溶胶粒子在不同波长的折射率由云和气溶胶粒子的光学特性软件包 OPAC<sup>[16]</sup>给出,由公式(3)和(4)就可以计算出典型地区气溶胶在不同波长的消光和吸收系数。

图 6 是典型地区气溶胶粒子消光和吸收系数随波长的变化,可以看出:(1) 天津、厦门和合肥地区的消光和吸收系数随波长的变化趋势基本一致,在 0.2~3  $\mu\text{m}$  消光和吸收系数都比较大,在长波波段,消光和吸收系数的变化趋势较平缓。(2) 新疆地区在 0.2~2  $\mu\text{m}$  波长上有很强的消光作用,吸收系数较小,但是随着波长的增大,吸收系数所占的比例越来越大,说明沙尘气溶胶粒子在短波波段的散射作用明显,在长波波段吸收作用明显。(3) 无论消光系数还是吸收系数,都是天津地区最大,合肥、厦门地区次之,新疆地区最小。



(a) 消光系数

(a) Extinction coefficient



(b) 吸收系数

(b) Absorption coefficient

图 6 典型地区气溶胶粒子消光和吸收系数随波长的变化

Fig.6 Extinction and absorption coefficient of aerosol particles vs wavelength in typical area

### 3 结论

文中基于 Mie 散射理论反演气溶胶的复折射率,并计算气溶胶的光学特性。得到典型地(新疆、天津、厦门、合肥)气溶胶的复折射率,并分析各个地区的数浓度谱分布及消光和吸收特性,结论如下:

(1) 天津地区、厦门地区和合肥地区的气溶胶谱

分布由 Junge 分布和对数正态分布共同描述,其中中间模态均为对数正态分布,峰值中心分别在 0.8  $\mu\text{m}$ 、0.86  $\mu\text{m}$  和 0.54  $\mu\text{m}$ ,符合城市气溶胶的特征;而新疆地区的气溶胶谱分布则由 Junge 分布来描述。

(2) 新疆地区、天津地区、厦门地区及合肥地区的大气气溶胶折射率实部  $n_r$  都在 1.5 左右,折射率虚部  $n_i$  分别为 0.01、0.017、0.008 和 0.016。其中天津地区和合肥地区的消光系数和吸收系数以及厦门地区的折射率虚部都有明显的日变化,表现为早晚较高。

(3) 天津地区、合肥地区和厦门地区的消光系数和吸收系数随波长的变化趋势一致,在长波波段几乎不变化;在新疆地区,短波波段消光作用明显,而在长波波段则是吸收作用明显。

文中通过反演法得到了四个典型地区气溶胶的平均复折射率,并分析了这四个地区的谱分布特征和消光、吸收系数随波长的变化,这对于研究我国气溶胶的气候效应和建立我国气溶胶模式具有一定的意义。

### 参考文献:

- [1] 毛节泰, 张军华, 王美华. 中国大气气溶胶研究综述[J]. 气象学报, 2002, 60(5): 625-632.
- [2] Raut J C, Chazette P. Vertical profiles of urban aerosol complex refractive index in the frame of ESQUIF airborne measurements[J]. *Atmos Chem Phys*, 2008, 8(4): 901-919.
- [3] Ebert M, Weinbruch P, Ortner H M. The chemical composition and complex refractive index of rural and urban influenced aerosols determined by individual particle analysis [J]. *Atmos Environ*, 2004, 38(38): 6531-6545.
- [4] Müller D, Ansmann A, Wagner F, et al. European pollution outbreaks during ACE 2: Microphysical particle properties and single -scattering albedo inferred from multiwavelength lidar observations[J]. *J Geophys Res*, 2002, 107(D15): 4248.
- [5] Hu Huanling, Xu Jun, Huang Zheng. The characteristics of the imaginary part of aerosol refractive index in some places of eastern China [J]. *Chinese Journal of Atmospheric Sciences*, 1991, 15(3): 18-23. (in Chinese)
- [6] Li Xuebin, Huang Yinbo, Xu Chidong, et al. Measurement of refractive index for aerosol particle in Xiamen [J]. *Optics and Precision Engineering*, 2008, 16(10): 1831-1834. (in Chinese)
- [7] Zhang Xiaolin, Huang Yinbo, Rao Ruizhong, et al. Retrieval of effective complex refractive index from intensive

- measurements of characteristics of ambient aerosols in the boundary layer[J]. *Optics Express*, 2013, 21(15): 17849–17862.
- [8] Zhou Xiuji, Tao Shanchang, Yao Keya. Advanced Atmosphere Physics [M]. Beijing: Meteorology Publishing House, 1991. (in Chinese)
- [9] Lin C I, Baker M, Charlson R J. Absorption coefficient of atmospheric aerosol: a method for measurement [J]. *Applied Optics*, 1973, 12(6): 1356–1363.
- [10] Wolf G T, Stroup C M, Stroup D P. The coefficient of haze as a measure of particulate elemental carbon [J]. *J Air Pollu Control Associ*, 1983, 33(8): 751–764.
- [11] Liu Qiang. Research on absorption properties of atmospheric aerosol based on photoacoustic spectroscopy [D]. Hefei: University of Science and Technology of China, 2014: 11–15. (in Chinese)
- [12] Li Xuebin, Gong Chunwen, Huang Yinbo, et al. Method of retrieving refractive index of aerosol particles [J]. *Acta Photonica Sinica*, 2009, 38(2): 401–404. (in Chinese)
- [13] Tan Kun, Hu Huanling. Correction of measured results of an optical particle counter [J]. *Acta Optica Sinica*, 1984, 4(1): 55–60. (in Chinese)
- [14] Li Xuebin, Gao Yiqiao, Wei Heli, et al. Development of optical particle counter with double scattering angles [J]. *Optics and Precision Engineering*, 2009, 17(7): 1528–1534. (in Chinese)
- [15] Lei Wenfang, Ren Lixin, Lv Weixiu, et al. Characteristics of the concentration and size distribution of desert aerosol over Heihe region [J]. *Plateau Meteorology*, 1993, 12 (2): 170–179. (in Chinese)
- [16] Hess M, Koepke P, Schult I. Optical properties of aerosols and clouds: The software package OPAC [J]. *Bull Amer Meteor Soc*, 1998, 79(5): 831–844.