

光电粒子计数器测量气溶胶 折射指数虚部

胡欢陵 许 军

(中国科学院安徽光学精密机械研究所)

提 要

本文分析了光电粒子计数器测量结果对气溶胶折射指数的敏感度,讨论了它测量的粒子谱分布与折射指数虚部 n_i 的相关关系. 根据光电粒子计数器测量的粒子谱分布对 n_i 敏感的特点,利用光电粒子计数器和太阳辐射计同时测量的结果,可以确定气溶胶的 n_i . 实际测量的 n_i 值与积分片方法测量结果对比表明,这个方法是令人满意的.

关键词: 气溶胶; 折射指数; 光电粒子计数器.

一、引 言

大气气溶胶对于大气辐射平衡过程,大气中光的传播和光学测量都会产生重要的影响. 气溶胶粒子的折射指数虚部 n_i 是表示其吸收特性的重要参数. 在实际大气中, n_i 值变化很大,可以有量级之差. 这样的变化在米氏计算中可引起很大误差,例如,当 n_i 为0.1时,粒子对绿光的单次散射反照率约为0.5,如果忽略吸收,消光计算中的误差可达100%^[1]. 气溶胶 n_i 的正确取值也直接关系到光散射法测量气溶胶粒子谱分布的可靠性^[2]. 气溶胶折射指数虚部 n_i 的测量已引起了广泛的兴趣.

n_i 的测量方法很多, Gerber 等^[10]曾作过综述,近来这方面还不断有新的进展. n_i 的测量方法大体上可归纳为三类. 第一类是测量直接取样得到的气溶胶粒子样品的吸收系数,例如积分片法就是其中最常用的一种方法,它简单易行,但由于测量中改变了粒子的自然悬浮状态,所以测量结果的误差较大. 第二类方法是通过测量气溶胶粒子吸收光的能量后产生的声波来确定粒子的吸收系数,即光声光谱法. 使用能量较高的人射光,可提高测量的灵敏度,但也会造成粒子中某些成分的蒸发,从而使测量结果的误差增大. 第三类方法是原地或遥感测量反演方法,例如,利用光度计测量大气中自然光的散射参数,利用双站激光雷达测量激光的散射量,利用角浊度计测量散射矩阵元等等,由这些测量值可反演气溶胶的 n_i 值. 近来,这方面的研究进展十分引人注目.

本文通过分析 LG79 型多道光电粒子计数器响应曲线对于粒子 n_i 的敏感度,讨论了它测量的谱分布与 n_i 的相关关系. 分析结果表明,利用光电粒子计数器和多波长太阳辐射计同时测量的结果,可以反演气溶胶折射指数虚部 n_i . 利用这一方法和积分片法对

实际大气气溶胶折射指数虚部的对比测量表明, 两者有较好的一致性. 这个方法测量中不改变粒子的自然悬浮状态, 也不需要其它专用测量设备, 简单易行, 有较大的实用意义.

二、散射光对于粒子折射指数的敏感度

光电粒子计数器的光路原理见图1. 单个粒子在某一角度范围内的散射光强, 由光电倍增管转换成一定高度的电脉冲, 这个电脉冲就是粒子的散射响应量, 粒子计数器根据响应量来确定粒子的大小. 复折射指数为 $m(m=n_r - in_i, n_r$ 和 n_i 分别是折射指数的实部和虚部)、半径为 r 的粒子的散射响应量 $R(r, m)$ 为

$$R(r, m) = \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} \int_{\psi-\gamma}^{\psi+\gamma} \int_{\varphi-\beta}^{\varphi+\beta} \sigma_p(\theta, m, \lambda, r) \cdot E(\lambda) \cdot S(\lambda) \cdot F(\theta, \varphi) \cdot d\theta d\varphi d\lambda, \quad (1)$$

其中 γ 和 β 分别为照明透镜和接收透镜张角的一半, ψ 是照明和接收透镜光轴的交角, θ 是散射角变量, φ 是会聚入射光线与接收透镜光轴的夹角变量, $E(\lambda)$ 是采用的白炽灯光源的能量谱分布, $S(\lambda)$ 是接收散射光的光电倍增管的光谱灵敏度, $F(\theta, \varphi)$ 是几何因子, σ_p 是单粒子角散射截面. 根据米氏理论, 球形粒子的 σ_p 除了与其折射指数 m 和散射角 θ 有关外, 它只与粒子的相对大小 x 有关, 即

$$\sigma_p(\theta, m, \lambda, r) = \sigma_p(\theta, m, x), \quad x = \frac{2\pi r}{\lambda}. \quad (2)$$

图2和图3给出了利用方程(1)计算的 LG79 ($\psi = 60^\circ, \gamma = \beta = 20^\circ$) 多道光电粒子计数器对于不同 n_r 和 n_i 的响应曲线.

由图2可以看到, 在 n_i 相同时, 不同 n_r 的响应曲线十分靠近. 大气气溶胶粒子的 n_r 值的变化范围不大, 一般在 1.40 和 1.55 之间. 图3是 LG79 光电粒子计数器在 $n_r = 1.50$ 时不同 n_i 对应的响应曲线. 可以看到, 不同 n_i 值的响应曲线差别很大, n_i 越小, 对于 n_r 敏感的粒子尺度范围越大.

为了定量地分析粒子计数器响应量 $R(r, m)$ 对于折射指数的敏感程度, 定义敏感函数为

$$f_i(r, m) = \left| \frac{1}{R} \frac{\partial R}{\partial n_i} \right|, \quad f_r(r, m) = \left| \frac{1}{R} \frac{\partial R}{\partial n_r} \right|. \quad (3)$$

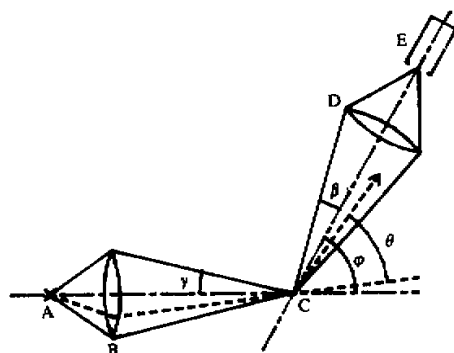
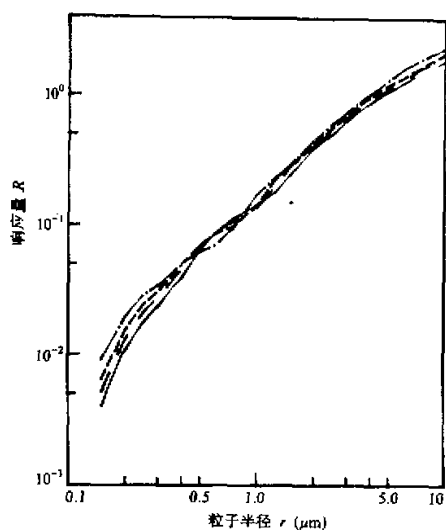
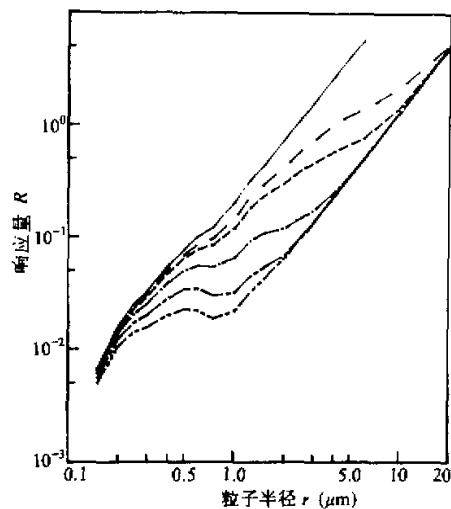


图1 光电粒子计数器光路示意图

A 光源, B 照明透镜, C 散射粒子,
D 接收透镜, E 光电倍增管

图 2 不同 n_r 的响应曲线

—— $1.40 - i 0.007$, ——— $1.45 - i 0.007$,
 - - - $1.50 - i 0.007$, — · — $1.60 - i 0.007$

图 3 不同 n_r 的响应曲线

—— $1.50 - i 0.0$, ——— $1.50 - i 0.007$,
 - - - $1.50 - i 0.012$, — · — $1.50 - i 0.03$,
 — · — $1.50 - i 0.06$, ——— $1.50 - i 0.10$

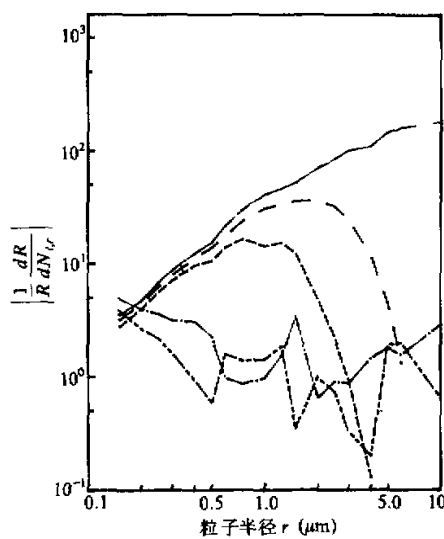


图 4 敏感函数变化曲线

—— $1.50 - i 0.007 (dN_r)$, ——— $1.50 - i 0.030 (dN_r)$, ——— $1.50 - i 0.060 (dN_r)$,
 — · — $1.40 - i 0.007 (dN_r)$, ——— $1.50 - i 0.007 (dN_r)$

这里 f_i 和 f_r 分别是响应量对于折射指数虚部 n_i 和实部 n_r 的敏感函数. 图4给出了不同 n_i 和 n_r 情况下, f_i 和 f_r 随粒子半径 r 变化的曲线. 由图4 可以看到, f_r 有较多的起伏, 其值一般小于2.0, 比 f_i 小一个数量级以上, 这表明粒子计数器测量结果对于 n_r 是不敏感的. 但是, f_i 值较大, 对于不同的 n_i 值都有一段粒子谱的 f_i 值大于10, 最高可达200以上. 显然, 响应量对于 n_i 是十分敏感的. f_i 随粒子半径的变化大体上呈正态分布. 在 $r \leq 1 \mu\text{m}$ 的亚微米区域, f_i 随 r 增大而单调上升. 在 $r > 1 \mu\text{m}$ 的区域, f_i 达到极大值后单调下降. f_i 极大值和对应的粒子半径都随 n_i 的减小而增大, n_i 越小, 则 f_i 越大, 对 n_i 敏感的粒子尺度范围也越大.

三、粒子谱分布和 n_i 的相关性

响应曲线对于 n_i 的敏感度分析表明, 用光电粒子计数器测量得到的粒子谱分布对于 n_i 是敏感的. 气溶胶粒子的谱分布曲线常常用Junge模式来拟合, 在0.1至 $10 \mu\text{m}$ 半径范围内, 它的数密度 $n(r)$ 可表示为

$$n(r) = \frac{dN(r)}{dr} = N_0 r^{-(\gamma+1)}. \quad (4)$$

这里 N_0 是半径为 $1 \mu\text{m}$ 粒子的数密度, 是正比于粒子浓度的系数; Junge 指数 γ 是对数坐标中谱分布的斜率, 一般在2和4之间. 在实际大气中, 气溶胶的谱分布有时与Junge谱有较大的差异, 例如在微米谱段出现次峰等. 但在对可见光有重要影响的半径为0.1至 $1.0 \mu\text{m}$ 的亚微米粒子谱段, 实际谱用Junge模式(4)式来拟合有很高的相关系数.

在Junge谱的情况下, 如果不同大小粒子的 f_i 是一个常数, 则不同的 n_i 只会改变 N_0 而不会改变 γ 值, 即它对谱形不产生影响. 但是, 当 f_i 在粒子的某一尺度范围内随 r 有一个单调变化时, 不同的 n_i 会改变谱分布的 γ 值. f_i 随 r 的变化率越大, n_i 对 γ 值的影响越大. 结合图3 不难发现, 在图4中 f_i 的上升段, γ 值随 n_i 取值的增大而减小; 在 f_i 的下降段, γ 值随 n_i 的增大而增大. 因此, 如果将 f_i 上升段和下降段合起来考虑, 由于它们的相反作用, n_i 对整个谱的 γ 值的影响是相互抵消的, 从而使 γ 对 n_i 不敏感. 这种情况下, 用Junge模式来拟合粒子整个谱形的相关系数也将大幅度减小. 为了有效地从谱分布随 n_i 的变化中提取 n_i 的信息, 同时也考虑到粒子的亚微米谱段可以较好地用Junge模式来拟合, 选取对应于 f_i 上升段的亚微米粒子谱来反演 n_i 显然是合适的.

表1 LG79 粒子计数器头五档粒子谱 γ 与 n_i 的对应情况

n_i^*	γ^*	n_i	0.007	0.012	0.030	0.036	0.060	0.072
0.007	2.0	γ	2.00	1.87	1.11	0.96	0.71	0.70
0.072	4.0	γ	10.8	10.2	5.9	5.1	4.1	4.0
实测结果			11.4	10.9	6.3	5.5	4.6	4.3

表1给出了LG79光电粒子计数器头五档粒子谱与不同 n_i 对应的 γ 值的两个模拟例子. n_i^* 和 γ^* 是模拟例子中折射指数虚部和 Junge 指数的真值. 可以看到, 在实际可能的 n_i 取值范围内, 对应的 γ 值与真值 γ^* 可相差近三倍. 表1 还给出了用LG79 粒子计数器测量大气气溶胶的一个实例. 它用不同 n_i 的响应曲线处理得到的头五档粒子谱的 γ 值, 情

况也是类似的. 因此, 光电粒子计数器头几档的测量结果, 对应于亚微米粒子谱, 用不同 n_i 的响应曲线处理得到的 v 值, 对于 n_i 是十分敏感的. 如果用其它方法确定出亚微米谱段的真值 v^* , 从中就可以找出对应的气溶胶折射指数虚部的真值 n_i^* .

四、气溶胶折射指数虚部 n_i

多波长太阳辐射计可以测量垂直大气柱中气溶胶从可见光到近红外不同波长的光学厚度 $\tau_a(\lambda)$. 利用线性反演方法可以由 $\tau_a(\lambda)$ 反演得到垂直大气柱中的气溶胶谱分布. 消光效率因子是反演积分方程的核函数, 它的极大值集中在粒子半径的亚微米区域, 这表明亚微米粒子的贡献对于气溶胶衰减是决定性的. 因此, 由太阳辐射计测量结果 $\tau_a(\lambda)$ 可以较好地反演得到亚微米段的粒子谱分布. 除了特别洁净的地区外, 垂直大气柱内的气溶胶主要集中在近地面的混合层内. 例如, 合肥郊区测量到的气溶胶光学厚度, 是黄山光明顶(海拔 1840m)测量到的相应波长光学厚度的五至十倍^[3]. 因此在一般情况下, 由 $\tau_a(\lambda)$ 反演的粒子谱较好地反映了混合层中大气气溶胶的特征. 可以认为, 它的亚微米谱段的 Junge 指数就是需要的真值 v^* . 如果考虑到不同 n_i 对反演谱 v 值的影响, 对同一组测量结果 $\tau_a(\lambda_i)$, 用不同的 n_i 进行反演, 从而得到 v' 依赖 n_i 变化的一条曲线. 它与由光电粒子计数器测量结果用不同 n_i 的响应曲线处理得到的 $v \cdot n_i$ 曲线的相交点, 就是 v^* 和所求的粒子折射指数虚部 n_i^* 值. 图 5 是 1985 年 12 月 12 日在合肥郊区一次光

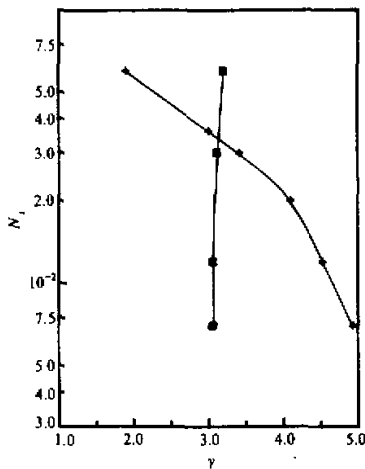


图5 合肥郊区一次实测结果
+ OPC 结果, ■ 太阳辐射计结果

电粒子计数器(OPC)和太阳辐射计联合测量值的处理结果. 其中的反演结果曲线是用 King 等^[4] 提出的约束线性反演迭代方法在不同的 n_i 值下得到的. 图 5 中两条曲线相交点的 v^* 和 n_i^* 分别是 3.10 和 0.036. 后者就是所求的气溶胶折射指数虚部.

n_i 对反演谱的 v 影响是不大的, 图 5 中反演结果曲线也表明了这一点. 在 Junge 模式情况下, 由 Angström 公式

$$\tau_a(\lambda) = \beta \cdot \lambda^{-(\gamma-2)} \quad (5)$$

通过最小二乘法计算粒子谱的 v 值比反演方法简便得多. 表 2 给出了 1985 年四次实测结果用反演方法和 Angström 公式得到的 v^* 对比. 其中反演法结果 v^* 是不同 n_i 值下反演谱的 v 值通过图 5 所示那样的方法得到的. 由表 2 可以看到, 用 Angström 公式可以得到很好的结果, 两者的相对误差小于 5%. 实际上, 对于严格的 Junge 谱气溶胶, 它的光学厚度 $\tau_a(\lambda)$ 严格满足 Angström 公式. 由米氏理论知道

$$\tau_a(\lambda) = \int_0^\infty Q_{\text{ext}}(m, r, \lambda) \pi r^2 \cdot n(r) dr, \quad (6)$$

表2 四次实测结果用反演法和Angström公式得到的 γ^* 值对比

日期 方法	11月13日	12月12日	12月14日	12月16日
反演法	2.71	3.10	2.45	2.45
Angström公式	2.84	2.95	2.50	2.55

这里消光效率因子 Q_{ext} 仅是 m 和粒子相对大小 x 的函数

$$Q_{\text{ext}}(m, r, \lambda) = Q_{\text{ext}}(m, x).$$

当(6)式中的谱分布 $n(r)$ 是Junge谱时, 用(4)式代入(6)式, 就可以得到Angström公式(5). 其中与波长 λ 无关的常数 β 是

$$\beta = 2^{v-2} \pi^{v-1} N_0 \int_0^\infty Q_{\text{ext}}(m, x) \cdot x^{-(v-1)} dx. \quad (7)$$

因此, 对可见光和近红外波段的消光有主要贡献的亚微米粒子满足(4)式的指数分布时, 即使 $\gamma > 1 \mu\text{m}$ 粒子的谱分布对指数分布有所偏离, 用Angström公式来拟合气溶胶光学厚度和波长的相互关系仍然有相当高的相关系数. 综上所述, 用Angström公式来确定 γ^* 是可行的.

1985年11月和12月在合肥郊区有四次光电粒子计数器和太阳辐射计的联合测量. 表3给出了用本方法得到的 n_i^* 值, 在测量的同时, 用滤膜片对气溶胶粒子进行取样, 用积分片法^[3]测出了气溶胶的折射指数虚部. 11月13日得到一个样品, 另外三天的取样得到了另一个样品. 这两个样品的积分片法测量结果也列于表3. 由于混合层以上大粒子

表3 粒子计数器方法和积分片方法测量的 n_i 值对比

日期	11月13日	12月12日	12月14日	12月16日	三天平均
粒子计数器方法	0.030	0.036	0.032	0.050	0.039
积分片方法	0.046	0.060			

十分稀少, 垂直大气柱中气溶胶谱的 γ 值比混合层中粒子谱的 γ 值略大一些, 使粒子计数器法确定的 n_i 值会偏小一些. 由表3可以看到, 这个方法的测量结果比积分片法结果约小35%左右. Clarke^[6]在分析了积分片法测量中的误差因素后指出, 积分片法测量的 n_i 值最大可能偏高30%. 考虑到这两种方法的误差情况, 可以认为表3给出的两种方法的测量结果是相当一致的.

五、结 论

一般情况下, 近地面气溶胶亚微米粒子的数密度谱是指数分布, 可以用Junge模式来拟合. 另外, 除了高山和十分洁净的地区外, 近地面混合层内的气溶胶含量在垂直大气柱内占主要地位. 这种情况下, 根据光电粒子计数器测量的粒子谱分布对于折射指数虚部敏感的特点, 利用光电粒子计数器和太阳辐射计同时测量的结果, 反演气溶胶折射指数 n_i 是可行的. 由于测量中不改变粒子的自然悬浮状态, 也不需要其它特殊的专用仪器设备, 简便易行, 因此用光电粒子计数器方法测量粒子折射指数虚部有较大的实用意义.

参 考 文 献

- [1] Gerber, H. E. and E. E. Hindman, 1981, First International Workshop on Light Absorption by Aerosol Particles: Background, Activities and Preliminary Results, *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, **62**, 1321 — 1327.
- [2] 胡欢陵、赵凤生、龚知本, 1987, 折射指数对光散射粒子计数器测量精度的影响, 科学通报, 第 8 期, 631 — 634.
- [3] Zhou Jun, Gong Zhiben, Hu Huanling, Xu Jun, 1986, Atmospheric Aerosol Optical Depths and Size Distributions at Hefei and Huangshan Mountain, From Atmospheric Radiation Progress and Prospects, Proceedings of Beijing International Radiation Symposium, China, Aug. 26 — 30, 1986.
- [4] King, M. D., D. M. Byrne, B. M. Herman and J. A. Reagon, 1978, Aerosol Size Distributions Obtained by Inversion of Spectral Optical Depth Measurements, *Appl. Opt.*, **35**, 2153 — 2167.
- [5] Chin -I Lin, M. Baker and R. J. Charlson, 1973, Absorption Coefficient of Atmospheric Aerosol: a Method for Measurement, *Appl. Opt.*, **12**, 1356 — 1363.
- [6] Clarke, A. D., 1982, Effects of Filter Internal Reflection Coefficient on Light Absorption Measurements Made using the Integrating Plate Method, *Appl. Opt.*, **21**, 3021 — 3031.

DEDUCING IMAGINARY PART OF REFRACTIVE INDEX OF AEROSOL WITH AN OPTICAL PARTICLE COUNTER

Hu Huangling and Xu Jun

(Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences)

Abstract

This paper analyses the sensitivity of an optical particle counter (OPC) measurement to the refractive index of particles, and discusses the dependance of aerosol size distributions measured by an OPC on n_i , the imaginary part of the refractive index. By use of the high sensitivity of OPC measurements to n_i , values of n_i can be deduced from simultaneous measurements by an OPC and a solar radiometer. Compared with those obtained by the integrating plate method, the results of the experiment are satisfactory.

Key words: Aerosol; Refractive index; Optical particle counter.