

С.П. Детков

**К оптическим характеристикам аэрозоля***Институт промышленной экологии УрО РАН, г. Екатеринбург*

Поступила в редакцию 15.11.2001 г.

Рассмотрены спектральные и интегральные по солнечному спектру объемные коэффициенты ослабления и поглощения для сульфатов с двумя распределениями частиц по размерам. Предложены частные приближенные формулы для безразмерного коэффициента поглощения. Показаны возможности распространенной программы «Mathcad».

**Введение**

Оптические характеристики аэрозоля существенно влияют на энергобаланс атмосферы и земной поверхности. В теоретических расчетах аэрозоль представляется Ми-частицами. Огромный объем вычислений оптических характеристик по теории Ми для групп полидисперсных частиц показан в [1, 2] и др. Результаты обычно представляются для определенной длины волны спектра. В работе [3] коэффициенты проинтегрированы по 220 полосам спектра земной поверхности. Но при этом вместо алгоритма Ми применены простые приближенные формулы для безразмерных оптических констант. Аналогичный подход для солнечного спектра реализован в настоящей статье, однако здесь мы ограничиваемся объемными коэффициентами ослабления и поглощения при однократном взаимодействии излучения с аэрозолем. Интегральные по спектру характеристики однократного рассеяния имеют практический смысл. Использование их в уравнениях переноса энергии реализуется в оценочных расчетах.

В [1] представлены формулы для безразмерного коэффициента ослабления  $K$  с поправочными множителями в виде кусочно-гладких функций  $D_{i+1}$  ( $i = 1, 2, 3, 4$ ) во всем диапазоне размеров частиц с погрешностью ниже 5%. В [2] формулы воспроизведены (с устранением опечатки: 40,8 → 4,08), а точность подтверждена. Ниже подобные формулы представлены в частных случаях и для коэффициентов поглощения. Это открывает возможность использования общедоступных программ «Mathcad», которые обеспечивают простоту расчета, легкость управления, оперативное слежение за влиянием отдельных параметров, наглядность результатов. Программа допускает интегрирование спектральных оптических констант по солнечному спектру, хотя и в упрощенном алгоритме принимаются меры по снижению объема вычислений. Представляется эффективным метод исследований оптических свойств аэрозоля.

Аэрозоль характеризуется аэродинамическим диаметром  $\delta$ . В комплексном показателе преломления  $m = n - \chi i$  показатель поглощения  $\chi$  превышает 0,5 только для лимонита, выделяющегося карьерами, и сажи. Для всех других аэрозолей  $\chi \approx 0$ . Согласно [4] типичное значение  $m = 1,5 - i0,01$ . Но в данном случае оно изменено до  $m = 1,3 - i0,01$ , чтобы использовать таблицы оптических констант [5] при контроле метода.

В корректном расчете безразмерные коэффициенты поглощения  $K_{\text{пр}}$ , рассеяния  $K_{\text{рс}}$  и ослабления  $K = K_{\text{пр}} + K_{\text{рс}}$

вычисляются по теории Ми при фиксированном размере частицы  $x = \pi\delta\omega$ , где  $\omega$  – волновое число. Коэффициенты поглощения  $\alpha$ ,  $\text{м}^{-1}$ , рассеяния  $\beta$  и ослабления  $k = \alpha + \beta$ ,  $\text{м}^{-1}$  находятся с учетом распределения частиц по размерам,  $n(\delta)$ ,  $\text{м}^{-3} \cdot \text{мкм}^{-1}$ . Например, для спектрального коэффициента поглощения

$$\alpha_{\omega} = \frac{\pi}{4} \cdot 10^{-12} \int_0^{\infty} \delta^2 K_{\text{пр}} n(\delta) d\delta. \quad (1)$$

Здесь и далее диаметр  $\delta$  в мкм, чтобы  $\alpha_{\omega}$  получилось в  $\text{м}^{-1}$ .

В работе [6] сопоставлены расчетные значения коэффициента рассеяния с наблюдениями для двух распределений по размерам, схожими с выбранными в настоящей работе. Расхождения получились значительными, но с разным знаком и в среднем компенсируются. Превосходное согласие получено для монодисперсных частиц, однородных по составу, приготовленных искусственно. В оценках погрешности форма частиц и их природа оказались малосущественными. Систематическое расхождение получено для гидрофильных частиц при высокой влажности, когда они становятся неоднородными. Но теория Ми может учесть эту особенность. В целом заключаем, что теория Ми является довольно надежным инструментом исследования.

**Экспериментальные данные**

В атмосфере, где взвешено  $j$  сортов частиц, объемный коэффициент однократного ослабления определяется как

$$k = \sum_j C_j f_{kj}, \quad (2)$$

где  $C_j$  – концентрация  $j$ -го компонента,  $\text{кг}/\text{м}^3$ ;  $f_{kj}$  – эффективность ослабления компонента,  $f_{kj} = k_j/C_j$ ,  $\text{м}^2/\text{кг}$ .

Согласно [6] величины  $f_{kj}$  равны: 0,5–1,0  $\text{м}^2/\text{г}$  для пыли; 2–4 для органического углерода; 3–10 для сульфатов и нитратов, 10  $\text{м}^2/\text{г}$  для элементарного углерода.

В [7] приведены среднееарифметические значения по 33 измерениям днем и 11 – ночью: 5,4 – для нитратов, 5,1 – для сульфатов, 5,8 – для углерода, 2,8  $\text{м}^2/\text{г}$  – для почвенной пыли.

В [8] установлены значения:  $f_{kj} = 3 \text{ м}^2/\text{г}$  для сульфатов и нитратов, 4,0 – для органических частиц и 1,0  $\text{м}^2/\text{г}$  – для почвы (все для сухого состояния). Значения зависят от

ряда условий, в основном от влажности. В [8] также показано увеличение эффективности  $f_{kj}$  с ростом относительной влажности до 90% для сульфата аммония в пять и более раз. Расчеты по теории Ми с допущением логнормального распределения частиц по размерам согласуются с наблюдениями удовлетворительно.

Опуская другие работы, приведем наблюдения для длины волны 0,55 мкм у земной поверхности в миллионном городе с развитой промышленностью (Салоники) [9]. Наблюдения коэффициента ослабления сочетались с определением счетной концентрации и химического состава для пяти компонентов. В табл. 1 показаны физические свойства компонентов, а в табл. 2 – результаты эксперимента (ОВ – органическое вещество; РВ – растворимое в воде вещество; У – углерод (сажа); МС – морские соли; П – почва).

Таблица 1

Физические свойства пяти сортов аэрозоля

Вещество	Плотность, кг/м <sup>3</sup>	Модальный диаметр, мкм	Показатель преломления	$C_j$ , мкг/м <sup>3</sup>	
				12.06.1967 г.	13.06.1967 г.
ОВ	1500	0,09	1,55–i0,005	16	26,7
РВ	1700	0,06	1,53–i0,005	8,02	13,4
У	1500	0,06	1,95–i0,66	3,5	8,9
МС	2100	2,34	1,5–i2·10 <sup>-8</sup>	–	–
П	2300	0,31	1,50–i0,001	20,9	38,6

Первые три компонента составляют тонкие фракции с вкладом в ослабление излучения 95%. Для них коэффициент ослабления, вычисленный по формуле (2), составляет за 12 июня 0,128 км<sup>-1</sup>. В этот сравнительно сухой день влажность была менее 30%. Но уже 13 июня влажность повысилась до 45%, возросли массовые концентрации гидрофильных частиц, а коэффициент ослабления повысился до 0,290 км<sup>-1</sup>. Сажистый углерод имеет минимальную массовую долю, но максимальные численную концентрацию и комплексный показатель преломления. Поэтому его вклад в коэффициент ослабления существен и равен 30%. Для воспроизведения результатов табл. 2 расчетом необходимы распределения частиц по размерам. Поскольку они отсутствуют, воспользуемся данными другой работы для сульфатов.

Таблица 2

Результаты наблюдения для аэрозоля (характеристики в табл. 1) на длине волны 0,55 мкм;  $N$  – численная концентрация;  $f_{kj}$  – эффективность ослабления;  $k_j$  – объемный коэффициент однократного ослабления

Вещество	$N$ , см <sup>-3</sup>	$f_{kj}$ , м <sup>2</sup> /г	$k_j$ , км <sup>-1</sup>
12 июня 1997 г.			
ОВ	2345	4,63	0,074
РВ	4800	3,1	0,025
У	39019	8,38	0,029
МС	0,75	0,49	0,01
П	0,1	0,04	0,0007
13 июня 1997 г.			
ОВ	9851	3,85	0,143
РВ	8021	3,1	0,061
У	14777	9,7	0,086
МС	1,1	0,49	0,019
П	0,1	0,036	0,001

## Модели фракций частиц

В [4] сульфаты и органический углерод представлены бимодальным распределением по размерам с максимумами концентрации при 0,1 и 0,4 мкм. В [10] проведены наблюдения на берегу океана. Ночью при ветре с континента, который приносит антропогенные сульфаты, грубая фракция отмечена при 5 мкм, а менее крупная при 1,4 мкм. Распределение грубой фракции сохраняется днем, при ветре с океана, но с меньшей концентрацией. В [4, 10] распределение грубой фракции (№ 1) можно описать формулой

$$dC_1/dlg\delta = C_{m1} \exp[-(\delta - 5)^2/a], \quad (3)$$

где  $\delta$  в мкм;  $C_{m1} = 15$  и  $22$  мкг/м<sup>3</sup> – максимальные значения производной  $(dC/dlg\delta)_m$  при  $\delta_m = 5$  мкм днем и ночью. Число  $a$  подбирается по полной концентрации фракции

$$C_1 = (C_{m1}/2,3026) \int_{0,1}^{20} \exp[-(\delta - 5)^2/a] \delta^{-1} d\delta. \quad (4)$$

Далее принято  $a = 4$  мкм<sup>2</sup>, когда  $C_1/C_{m1} = 0,344$ .

Распределение в формуле (1) вычисляется как

$$n(\delta) = \frac{6 \cdot 10^6}{2,3026\pi\rho\delta^4} (dC/dlg\delta), \quad (5)$$

где  $\rho$  – плотность вещества частиц, т/м<sup>3</sup> (2,32 т/м<sup>3</sup>); величина  $n$  по-прежнему получается в м<sup>-3</sup>·мкм<sup>-1</sup>.

Для второй фракции (№ 2) с максимумом при 1,4 мкм можно использовать формулу

$$dC_2/dlg\delta = C_{m2} \delta^2 \exp[-\delta^2/2], \quad (6)$$

где  $C_{m2} = 57$  мкг/(м<sup>3</sup>·мкм<sup>2</sup>) – константа, подобранная так, что максимум производной  $(dC_2/dlg\delta)_m = 41,9$  мкг/м<sup>3</sup> располагается при 1,4 мкм в соответствии с наблюдениями. Далее потребуются отношение

$$\frac{C_2}{C_{m2}} = (1/2,3026) \int_{0,2}^{20} \delta \exp(-\delta^2/2) d\delta = 0,426 \text{ мкм}^2. \quad (7)$$

Крыло малых диаметров в (7) обрезано при  $\delta = 0,2$  в связи с особенностью, отмеченной ниже. Ограничение верхнего предела не вносит погрешность.

В расчете удельного спектрального однократного поглощения  $f_{\omega 2} = \alpha_{\omega 2}/C_2$  (м<sup>2</sup>/г) для распределения № 2 согласно формуле (1) получается

$$f_{\omega 2} = \frac{1,5}{2,3026 \cdot 0,344 \rho} \int_0^\infty K_{\text{ин}} \exp(-\delta^2/2) d\delta, \quad (8)$$

где плотность  $\rho$  подставляется в т/м<sup>3</sup>, а диаметр  $\delta$  – в мкм.

Для группы частиц № 1

$$f_{\omega 1} = \frac{1,5}{2,3026 \cdot 0,344 \rho} \int_0^\infty \delta^{-2} K_{\text{ин}} \exp\left[-\frac{(\delta - 5)^2}{4}\right] d\delta. \quad (9)$$

## Коэффициент поглощения

Как и для коэффициента ослабления, приближенную формулу для коэффициента поглощения удастся получить на основе асимптотической формулы Хюлста [1, 11]:

$$K_{\text{пр}} = 1 + [\exp(-2z)]/z + \{[\exp(-2z)] - 1\}/2z^2, \quad (10)$$

где  $z = pq \operatorname{tg} g$ ,  $g = (\arctg \chi)/(n-1)$ ,  $q = 2x(n-1)$ ;  $x = \pi d \omega$  – параметр дифракции;  $\omega$  – волновое число;  $p$  – поправочный множитель, подобранный для фракции № 1 в виде

$$p_1 = 1,32 + 0,171 (\ln x)^{0,6}. \quad (11)$$

Поправку (11) можно использовать лишь при  $x > 1$ , иначе возникает особенность. При последующем интегрировании по спектру заметим, что практически солнечная энергия заключена в интервале длин волн 0,29–2,4 мкм с максимумом при 0,475 мкм. Длина волны далее всюду используется в мкм, как и диаметр частиц. При интегрировании по спектру вводится новая переменная  $v$  по соотношению  $\omega = 0,1 (v^{-1}-1)$ , мкм<sup>-1</sup>, чтобы от интервала  $[0-\infty]$  перейти к пределам  $[0-1]$ . Принятые ниже пределы интегрирования по новой переменной  $v$   $[0,02-0,2]$  в переводе на длины волн означают 0,204–2,5 мкм, что перекрывает интересующий нас диапазон. В этом случае формула (11) не проявляет каких-либо особенностей.

Приближенные по (10) и точные [5] значения  $K_{\text{пр}}$  приведены в табл. 3. Там же обозначены точные альbedo однократного рассеяния  $\lambda$ . При этом использована представительная длина волны солнечного спектра 0,475 мкм. В максимуме концентрации грубой фракции  $\delta_m = 5$  мкм,  $x = 30,4$ . Точность формулы (11) достаточно высокая. Эмпирический множитель  $p_2$  в формуле (10) для фракции № 2 с максимумом при 1,4 мкм приходится изменять, поскольку учитываются аэрозоли с  $x < 1$ . Для распределения (6) (фракции № 2) множитель принят равным

$$p_2 = 0,84 + 0,24 x^{(1,297-0,07x)}. \quad (12)$$

Т а б л и ц а 3

Сопоставление показателей поглощения  $K_{\text{пр}}$  по приближенной формуле (10) по данным [5]. Приведены также альbedo однократного рассеяния  $\lambda$

$x$	По [10]	По [5]	$\lambda$
<i>Поправочный множитель <math>p</math> описан по (11)</i>			
1	0,035	0,0284	0,7305
5	0,184	0,1900	0,9401
10	0,340	0,3682	0,8607
20	0,564	0,6006	0,7520
30	0,705	0,7047	0,6066
40	0,795	0,7912	0,6495
50	0,853	0,8534	0,6140
80	0,936		0,5577
100	0,959	0,9607	0,5416
$\infty$	1	1	0,5
<i>Поправочный множитель <math>p</math> описан по (12)</i>			
0,1	0,002247	0,002295	0,0040
1	0,28	0,284	0,7305
2	0,07	0,0705	0,8881
5	0,221	0,190	0,8607
10	0,367	0,3682	0,8007
20	0,404	0,6006	0,7520
100	0,847	0,9607	0,5416
$\infty$	1	1	0,5

В табл. 3 показано, что при  $x \leq 10$  приближенная формула (10) с поправкой по (12) довольно точная. При  $x \geq 20$  приближенные значения заметно занижены, но они относятся к грубой фракции, описываемой отдельно. Характерно довольно высокое значение альbedo,  $\lambda > 0,5$  при  $x \geq 0,7$ , хотя показатель поглощения весьма мал (0,01).

Ниже воспроизведены объемные спектральные коэффициенты рассеяния (ослабления) по [1] для дымки М при длине волны 0,45 мкм с комплексным показателем преломления  $m = 1,34$  ( $\lambda = 1$ ) и максимумом распределения при  $\delta = 0,1$  мкм, числом частиц  $N = 100 \text{ см}^{-3}$ , водностью  $4,948 \cdot 10^{-11}$ . Получилось  $\beta = 0,101$  вместо  $0,106 \text{ км}^{-1}$ . При  $m = 1,33$  и длине волны 0,7 мкм найдено 0,100 вместо табличного значения  $0,105 \text{ км}^{-1}$ . С уменьшением длины волны до 0,4 мкм коэффициент  $\beta$  увеличился до  $0,104 \text{ км}^{-1}$ . Обращает на себя внимание малое изменение коэффициента  $\beta$  при значительном (в солнечном спектре) изменении длины волны – с 0,7 до 0,4 мкм.

Интегрирование по спектру изменило результат в первом примере всего с  $0,101$  до  $0,110 \text{ км}^{-1}$ . Столь незначительное влияние спектра можно объяснить следующим образом. В первой дымке М коэффициент ослабления  $K$  во всем диапазоне размеров  $[0, \infty]$  представлен тремя кусочно-гладкими частями, с внутренними границами при  $x = 2,5$  и 6. Доли частиц от  $x = 0$  составляют 78; 13 и 9%. Но вклад этих долей в спектральный коэффициент рассеяния противоположный: 1; 24 и 75%, поскольку безразмерный коэффициент ослабления  $K$  с ростом размера частиц возрастает от нуля до двух. На восходящей ветви распределения частиц по размерам величина  $K$  мала и не играет большой роли. На нисходящей ветви доля частиц, отнесенная к интервалу размеров, снижается, но коэффициент ослабления возрастает, из-за чего вклады в коэффициент  $\beta$  выравниваются. Зависимость спектрального коэффициента  $\beta$  от размера  $x$  получается относительно слабой. Это с более высокой погрешностью можно отнести и к коэффициенту поглощения.

## Интегрирование по спектру

На примере объемного коэффициента поглощения интегрирование проводится по формуле

$$\alpha = (0,66/\theta^4) \int_{0,02}^{0,2} \alpha_{\omega}(v) (v^{-1}-1)^3 dv / \{v^2 \exp[1,4388(v^{-1}-1)/\theta] - 1\}, \quad (13)$$

где  $\theta = T/1000$ ; переменная  $v$  и ее пределы оговорены выше; для фракции № 2 с поправочным множителем  $p_2$  по (12) особенность не проявляется и нижний предел принят естественным,  $0,02 \rightarrow 0$ . Верхний предел снижен с единицы до 0,2, чтобы снизить время счета. Вместо коэффициента поглощения в формулу (13) можно подставить любую другую оптическую характеристику. При  $\alpha_{\omega} = 1$  интеграл (13) в пределах  $[0-1]$  дает единицу, как и должно быть при любой температуре. В данном случае принята температура 6000 К.

Вначале расчеты выполнены для интегрального коэффициента ослабления  $F = k/C = (\alpha + \beta)/C$ . В формулы (8) и (9) подставляется безразмерный коэффициент ослабления  $K$  по формулам работ [1, 2]. Материал частиц считается гипсом с плотностью  $2,32 \text{ т/м}^3$ . Для более грубой фракции № 1 с максимумом при 5 мкм получено  $F_1 = 0,45 \text{ м}^2/\text{т}$ .

Для фракции № 2  $F_2 = 1,15 \text{ м}^2/\text{г}$ . Должна быть еще и субмикронная фракция (№ 3), по которой данных нет. Но дымка М с модальным диаметром 0,1 мкм и близким комплексным показателем преломления, отмеченная выше, может ее имитировать. Умножение водности на плотность гипса дает массовую концентрацию фракции,  $C_3 = 1,15 \text{ г}/\text{м}^3$ ;  $F_3 = k_3/C_3 = 0,92 \text{ м}^2/\text{г}$ . По сумме трех фракций  $F = 2,14 \text{ м}^2/\text{г}$ . Расчет занижает наблюдения, приведенные выше. В расчете занижен показатель преломления ( $1,5 \rightarrow 1,3$ ), а в принятых распределениях частиц по размерам для фракций № 1 и 2 крылья обрезаны.

В последние годы важное значение придается накоплению сульфатных аэрозолей в стратосфере (см. [12, 13] и др.). К сожалению, данные для них недостаточны.

Удельный коэффициент поглощения для фракции № 1 (грубой)  $f_{\omega 1} = 0,15 \text{ м}^2/\text{г}$  – для представительной длины волны 0,475 мкм, а в полном спектре  $f = 0,13 \text{ м}^2/\text{г}$ . Интегрирование по спектру мало изменило результат, как и в случае ослабления излучения. Для фракции № 2 получено 0,38 и 0,30  $\text{м}^2/\text{г}$  соответственно с более высоким расхождением.

1. Дейрменджан Д. Рассеяние электромагнитного излучения сферическими полидисперсными частицами. М.: Мир, 1971. 165 с.
2. Зуев В.Е. Распространение видимых и инфракрасных волн в атмосфере. М.: Сов. радио, 1970. 496 с.

3. Harrington J.Y., Olsson P.Q. A method for the parametrization of cloud optical properties in bulk and bin microphysical models. Implications for arctic cloudy boundary layers // Atmos. Res. 2001. V. 57. P. 51–80.
4. Horvath H. Estimation of the average visibility in central Europe // Atmos. Environ. 1995. V. 29. N 2. P. 241–246.
5. Блох А.Г. Тепловое излучение в котельных установках. Л.: Энергия, 1967. 326 с.
6. Lowenthal D.H., Rogers C.F., Saxena P., Watson J.C., Chow J.C. Sensitivity of estimated light extinction coefficients to model assumption and measurement errors // Atmos. Environ. 1995. V. 29. N 7. P. 751–766.
7. Vasconcelos L.A.P., Macias E.S., McMurry P.H., Turpin B.J., White W.H. A closure study of extinction appointment by multiple regression // Atmos. Environ. 2001. V. 35. P. 151–158.
8. Malm W.C., Day D.E. Estimates of aerosol species scattering characteristics as a function of relative humidity // Atmos. Environ. 2001. V. 35. P. 2845–2860.
9. Chazette P., Lioussse C. A case study of optical and chemical ground apportionment for urban aerosols in Thessaloniki / Atmos. Environ. 2001. V. 35. P. 2497–2506.
10. Venkataraman Ch., Sinha P., Bammi S. Sulphate aerosol size distributions at Mumbai, India, during the INDOEX–FFP (1998) // Atmos. Environ. 2001. V. 35. P. 2647–2655.
11. Хюлст Г. Рассеяние света малыми частицами. М.: Изд-во иностр. лит 1961.
12. Асатуров М.Л. Влияние атмосферного аэрозоля на климат // Метеорол. и гидрол. 1998. № 3. С. 5–12.
13. Асатуров М.Л. Антропогенное увеличение стратосферного аэрозольного слоя // Метеорол. и гидрол. № 2. С. 25–33.

*S.P. Detkov. On optical characteristics of aerosol.*

Spectral and integral over solar spectrum volume extinction and absorption coefficients for two sulphate size-distribution functions are reviewed. Partial approximate formulae for the dimensionless absorption coefficient are proposed. The capabilities of the well known program «Mathcad-2000» are shown.