

М.А. Свириденков, А.С. Емиленко, В.М. Копейкин, Ван Генчен\*

## Трансформация оптических свойств и микроструктуры аэрозоля во время смогового эпизода в Пекине

*Институт физики атмосферы им. А.М. Обухова РАН, г. Москва, Россия*

*\*Институт физики атмосферы АН КНР, г. Пекин, Китай*

Поступила в редакцию 23.03.2006 г.

Представлены результаты анализа данных спектронефелометрических измерений оптических характеристик и восстановленных по ним параметров микроструктуры субмикронной фракции аэрозоля во время смогового эпизода в Пекине в ноябре 2003 г. Показано, что рост объемной концентрации аэрозоля при формировании смога обусловлен главным образом увеличением размера частиц, а не их концентрации. При накоплении аэрозоля в приземном слое его параметры меняются согласованно — увеличивается эффективный радиус, уменьшаются ширина распределения, показатель преломления и относительное содержание сажи.

### Введение

Пекин, один из крупнейших мегаполисов мира, характеризуется как высоким средним уровнем, так и значительной изменчивостью концентрации аэрозоля. Во время смоговых эпизодов, прерываемых обычно сменой воздушной массы, содержание аэрозоля может в течение нескольких дней вырасти более чем на порядок. При этом метеорологическая дальность видимости может уменьшаться до значений порядка или менее 1 км.

В течение последних лет Институт физики атмосферы РАН в сотрудничестве с Институтом физики атмосферы Китайской академии наук проводит измерения оптических характеристик аэрозоля в Пекине в осенний период [1]. Наблюдения проводятся с использованием аэрозольного нефелометра-поляриметра ФАН. Оптические характеристики, измеренные нефелометром ФАН, позволяют оценить параметры микроструктуры субмикронной фракции аэрозоля, являющейся основной составляющей городского смога [2]. В настоящей работе анализируются закономерности изменчивости оптических и микрофизических характеристик аэрозоля во время смогового эпизода, наблюдавшегося в Пекине с 11 по 14 ноября 2003 г.

В отличие от [2] микроструктура аэрозоля в субмикронном диапазоне определялась по данным спектрополяриметрических измерений путем решения обратной задачи. Отметим, что диапазон размеров частиц порядка нескольких десятых микрона, дающий максимальный вклад в рассеяние, является границей для счетчиков частиц (верхней для счетчиков подвижности и нижней для фотоэлектрических счетчиков). А по результатам решения обратной задачи распределение частиц по размерам наиболее точно восстанавливается именно в этом интервале размеров.

### Аппаратура и измеряемые характеристики

Измерения оптических свойств аэрозоля проводились на нефелометре-поляриметре ФАН. Нефелометр ФАН позволяет измерить коэффициент направленного светорассеяния  $D$  под углом рассеяния  $45^\circ$  на длинах волн 410, 510 и 630 нм и его ортогонально-поляризованные составляющие  $D_{\parallel}$  и  $D_{\perp}$  для угла рассеяния  $90^\circ$  и длин волн 450 и 520 нм. Измерения проводились в двух режимах. В рутинном режиме непрерывно регистрировался коэффициент направленного светорассеяния  $D(45^\circ, 510 \text{ нм})$ . Периодически (обычно 1 раз в 1 ч или в 2 ч) измерялись все семь параметров. Именно данные этих измерений анализируются в настоящей статье. Характеристики, измеряемые нефелометром ФАН, близки к параметрам сухой основы аэрозоля. Параллельно со спектронефелометрическими наблюдениями проводился отбор проб на фильтры для последующего анализа на содержание сажи по измерению пропускания фильтров. Измерения проводились в здании Института физики атмосферы, расположенном в северной части города.

### Изменчивость оптических характеристик в смоговом эпизоде

Анализ 5-суточных обратных траекторий воздушных масс на уровне 925 мбар свидетельствует о том, что 10 (до начала развития смоговой ситуации) и 15 ноября (после очищения воздушного бассейна над Пекином) они начинаются над Казахстаном. В то же время 12 и 13 ноября траектории начинались вблизи побережья Восточно-Китайского и Желтого морей и проходили над густонаселенными

районами центральной и западной частей Китая. Резкое уменьшение содержания аэрозоля в ночь с 14 на 15 ноября связано с приходом воздушной массы, пятидневная обратная траектория которой началась над северо-восточными регионами Китая.

В качестве основных параметров, характеризующих изменение количественных и качественных оптических свойств аэрозоля, рассмотрим поведение коэффициентов направленного светорассеяния под углом  $45^\circ$ , степени линейной поляризации  $P$  под углом  $90^\circ$ , отношения  $R$  коэффициентов направленного светорассеяния под углами  $45$  и  $90^\circ$  на зеленой длине волны, а также отношение  $A$  коэффициентов направленного светорассеяния на синей и красной длинах волн. Рост замутненности начался во второй половине дня 11 ноября со значений  $D(45^\circ, 510 \text{ нм})$  примерно  $0,02 \text{ км}^{-1} \cdot \text{ср}^{-1}$ . Степень линейной поляризации при этом составляла примерно  $0,25$ , а отношение  $D(45^\circ)/D(90^\circ)$  — порядка  $5,5$ . В момент максимального развития смога вечером 14 ноября коэффициент направленного светорассеяния достигал значений  $0,4 \text{ км}^{-1} \cdot \text{ср}^{-1}$ . Степень линейной поляризации уменьшилась до величин порядка  $0,1$ , значение  $R$  выросло до  $7$ , а  $A$  уменьшилось с  $1,6$ – $1,7$  до  $1,2$ – $1,3$ . Временная развертка рассматриваемых параметров показана на рис. 1, где видно согласованное изменение во времени количественных ( $D$ ) и качественных ( $P, R, A$ ) параметров.

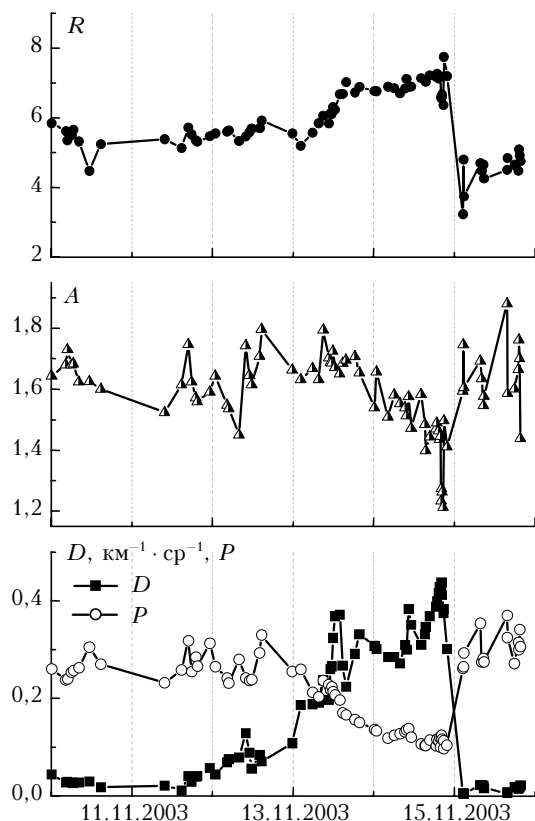


Рис. 1. Временной ход оптических характеристик аэрозоля

Рассматриваемые оптические характеристики хорошо коррелируют друг с другом (рис. 2). Единст-

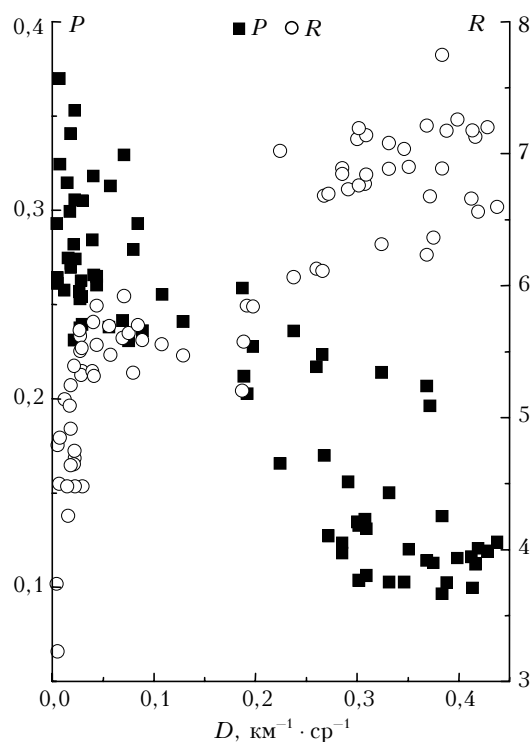


Рис. 2. Корреляционные связи между коэффициентом направленного светорассеяния  $D(45^\circ, 510 \text{ нм})$  и степенью линейной поляризации  $P$  и отношением  $D(45^\circ, 510 \text{ нм})/D(90^\circ, 510 \text{ нм})$

венное исключение — отсутствие заметной корреляции между  $R$  и  $A$ . Согласованное изменение оптических характеристик, очевидно, является следствием закономерностей трансформации параметров микроструктуры аэрозоля. Чтобы выявить особенности изменчивости микрофизических характеристик аэрозоля при смогообразовании, для измеренных оптических характеристик была решена обратная задача и получены спектры размеров частиц аэрозоля в субмикронном диапазоне.

## Методика решения обратной задачи

Измеренные оптические характеристики были обращены на параметры микроструктуры с использованием метода, основанного на алгоритме Твити [3, 4]. Анализ структуры ядер интегральных уравнений, связывающих измеренные и восстанавливаемые характеристики, и численные эксперименты по обращению модельных распределений показали, что распределение частиц по размерам наиболее надежно восстанавливается в диапазоне размеров частиц от  $0,05$  до  $0,6 \text{ мкм}$  [4]. Набор оптических параметров, измеряемых нефелометром ФАН, недостаточен для раздельного определения действительной  $n$  и мнимой  $k$  частей показателя преломления, поэтому решение обратной задачи производилось в предположении  $k = 0$ . Действительная часть показателя преломления находилась по критерию минимума нормы второй производной от логарифма концентрации по радиусу частиц.

Среднеквадратические отклонения измеренных оптических характеристик от рассчитанных по восстановленному спектру размеров составляли обычно несколько процентов. В случае, если среднеквадратические отклонения превышали 5%, измерение отбраковывалось и из дальнейшего рассмотрения исключалось. Количество отбракованных серий составляло около 10%. Для восстановленных распределений частиц по размерам рассчитывались:

$$S = \int_{0,05}^{0,6} (dS/dr) dr, \quad (1)$$

объемная концентрация

$$V = \frac{4}{3} \int_{0,05}^{0,6} r(dS/dr) dr, \quad (2)$$

эффективный радиус

$$r_{eff} = 0,75V/S \quad (3)$$

и содержание сажи, нормированное на объемную концентрацию субмикронного аэрозоля

$$C_{soot} = V_{soot}/V,$$

где  $dS(r)/dr$  — распределение площадей сечения по размерам;  $V_{soot}$  — объемная концентрация сажи, пересчитанная из измеренной массовой концентрации в предположении, что плотность сажевого компонента составляет  $1,8 \text{ г/см}^3$ . Использование интегральных параметров  $S$ ,  $V$ ,  $r_{eff}$ ,  $C_{soot}$  позволяет наглядно проследить изменение как качественных, так и количественных характеристик микроструктуры аэрозоля.

## Трансформация микроструктуры аэрозоля

На рис. 3 приведены временные зависимости показателя преломления, объемной концентрации, эффективного радиуса и относительного содержания сажи, а в табл. 1 — среднесуточные значения этих величин.

Таблица 1

Среднесуточные значения микрофизических параметров аэрозоля

Дата, ноябрь, 2003	10	11	12	13	14	15
$r_{eff}$ , мкм	0,076	0,080	0,096	0,12	0,15	0,062
$n$	1,6	1,57	1,56	1,55	1,52	1,63
$V$ , $\text{мм}^3/\text{м}^3$	0,026	0,035	0,079	0,22	0,32	0,014
$C_{soot}$	0,13	0,15	0,11	0,083	0,088	0,13

Накопление аэрозоля в приземном слое, начавшееся 11 ноября и прерванное сменой воздушной массы в ночь с 14 на 15 ноября, сопровождается согласованным изменением всех микрофизических характеристик аэрозоля — растет эффективный размер частиц, уменьшаются показатель преломления и относительное содержание сажи. В максимуме коэффициент ослабления, рассчитанный по результатам

решения обратной задачи, достигал  $3,6 \text{ км}^{-1}$ , что соответствует дальности видимости, близкой к 1 км. За период с 10 по 14 ноября объемная концентрация субмикронной фракции аэрозоля выросла более чем на порядок. Этот рост обусловлен, прежде всего, укрупнением частиц аэрозоля — эффективный размер частиц увеличился примерно в 2 раза. Показатель преломления уменьшился с 1,6 до 1,52.

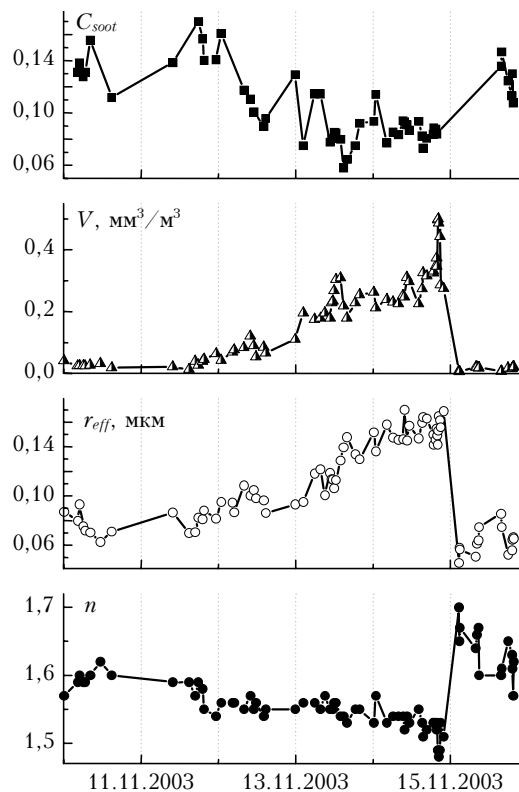


Рис. 3. Временной ход параметров микроструктуры аэрозоля

По мере увеличения замутненности наблюдается тенденция к снижению относительной концентрации сажи. После смены воздушной массы параметры микроструктуры вернулись к фоновым значениям. Изменение со временем распределения частиц по размерам показано на рис. 4, где приведены среднесуточные распределения  $dV/dr$ .

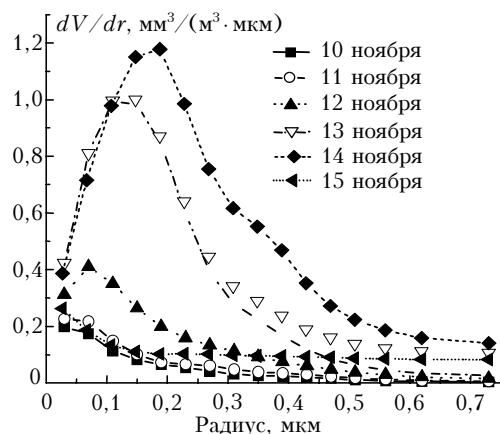


Рис. 4. Среднесуточные спектры размеров аэрозоля

Распределения могут быть аппроксимированы суммой двух логнормальных фракций 10–12 и 15 ноября, а 13 и 14 ноября преобладающей становится только одна фракция.

Параметры логнормальной аппроксимации приведены в табл. 2, где  $r_i$  – медианные радиусы для счетных распределений;  $N_i$  – счетные концентрации;  $v_i$  – стандартные отклонения логарифма радиуса.

Таблица 2  
Параметры аппроксимирующих логнормальных распределений

Дата, ноябрь, 2003	10	11	12	13	14	15
$v_1$	0,8	0,74	0,75	0,63	0,62	0,69
$r_1$ , мкм	0,012	0,016	0,021	0,052	0,07	0,013
$N_1$ , $10^3 \text{ см}^{-3}$	200	145	141	68	40	210
$v_2$	0,48	0,47	0,46			0,5
$r_2$ , мкм	0,155	0,164	0,19			0,15
$N_2$ , $10^3 \text{ см}^{-3}$	0,22	0,3	0,3			0,16

Примеры логнормальной аппроксимации даны на рис. 5.

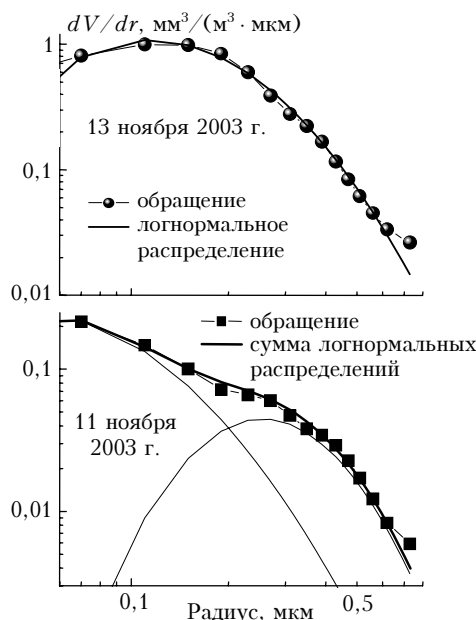


Рис. 5. Логнормальная аппроксимация распределений частиц по размерам

*M.A. Sviridenkov, A.S. Emilenko, V.M. Kopeikin, Wang Gengchen. Transformation of optical properties and microstructure of aerosol during smog episode in Beijing.*

Results of analysis of spectronephelometric measurements of the submicron aerosol during smog episode in Beijing in November 2003 are presented. It was shown that the increase of the aerosol volume concentration during smog formation is caused mainly by the growth of particle size rather than number concentration. During accumulation of aerosol in the ground layer, variations of its parameters are matched: effective radius increases, width of the size spectra, particle refractive index, and relative soot content decrease.

Как следует из табл. 1 и 2, рост замутненности сопровождается уменьшением параметра ширины распределения и счетной концентрации аппроксимирующего распределения. Тем не менее счетная концентрация в оптически активном диапазоне имела тенденцию к росту с 11 до 13 ноября и уменьшилась только 14 ноября.

## Заключение

Анализ трансформации оптических и микрофизических характеристик субмикронной фракции приземного аэрозоля в смоговом эпизоде в Пекине показал, что увеличение объемной концентрации аэрозоля обусловлено прежде всего увеличением эффективного размера частиц, а не их счетной концентрации.

Рост частиц сопровождается сужением распределения частиц по размерам, уменьшением показателя преломления и относительного содержания сажи в аэрозоле.

Эти результаты свидетельствуют, на наш взгляд, о важной роли процессов гетерогенной конденсации и коагуляции при развитии смоговой ситуации.

Работа выполнена при частичной поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект № 04-05-65061).

1. Ван Ген Чен, Гречко Е.И., Емиленко А.С., Копейкин В.М., Фокеева Е.В. Результаты совместных измерений окиси углерода в толще атмосферы и субмикронного аэрозоля в приземном слое в Пекине // Оптика атмосфер. и океана. 2003. Т. 16. № 1. С. 45–51.
2. Whitby K.T., Husar R.B., Liu B.Y.H. The aerosol size distribution of Los Angeles smog // J. Colloid Interface Sci. 1972. V. 39. P. 177–204.
3. Twitty J.T. The inversion of aureole measurements to derive aerosol size distributions // J. Atmos. Sci. 1975. V. 32. P. 584–591.
4. Панченко М.В., Свириденков М.А., Терпугова С.А., Козлов В.С. Активная спектрофелометрия в исследовании микрофизических характеристик субмикронного аэрозоля // Оптика атмосфер. и океана. 2004. Т. 17. № 5–6. С. 428–436.