

**В.Н. Ужегов, Ю.А. Пхалагов, М.В. Панченко, В.С. Козлов,
С.А. Терпугова, Е.П. Яшева**

Статистическая оценка поглощения атмосферного аэрозоля по данным оптических измерений

Институт оптики атмосферы СО РАН, г. Томск

Поступила в редакцию 29.05.2006 г.

Предлагается статистическая методика, позволяющая оценивать коэффициент поглощения реального атмосферного аэрозоля в широком диапазоне длин волн на основе данных одновременных измерений спектральных коэффициентов аэрозольного ослабления на протяженной трассе, коэффициентов рассеяния сухого аэрозоля (на длине волны $\lambda = 0,52$ мкм) и массовой концентрации сажесодержащего аэрозоля в локальном объеме.

Данная методика апробирована на конкретном экспериментальном материале, полученном при комплексных исследованиях атмосферного аэрозоля в районе г. Томска в июне 2004 г.

Получена спектральная зависимость коэффициента поглощения сажесодержащего аэрозоля. Показано, что в области длин волн от 0,45 до 4 мкм наблюдается хорошо выраженный спад коэффициента поглощения с ростом длины волны. Подобный вид зависимости коэффициента поглощения от длины волны, которую приближенно можно оценить как $1/\lambda$, свидетельствует о том, что это поглощение обусловлено частицами очень малых размеров.

Введение

Для расчетов глобального альбедо атмосферы в климатических моделях весьма важной является задача выбора оптических постоянных аэрозоля и, в частности, мнимой части показателя преломления частиц в видимой и инфракрасной (ИК) областях длин волн. Существующие модели оптических констант аэрозоля, полученные для заданного химического состава частиц (см., например, [1–3]), далеко не всегда соответствуют реальному аэрозолю. В [4] показано, что модельные оценки оптических характеристик атмосферы в зависимости от правильности задания вещественной и мнимой частей комплексного показателя преломления аэрозоля могут отличаться на сотни процентов.

Известно, что коэффициент аэрозольного ослабления $\beta(\lambda)$, полученный из измерений на протяженной приземной трассе, можно представить как $\beta(\lambda) = \beta^S(\lambda) + \beta^A(\lambda)$, где $\beta^S(\lambda)$ — коэффициент рассеяния, а $\beta^A(\lambda)$ — коэффициент аэрозольного поглощения. Казалось бы, что если величину $\beta^S(\lambda)$ параллельно измерять в локальном объеме с помощью нефелометра, то можно легко определить и величину $\beta^A(\lambda) = \beta(\lambda) - \beta^S(\lambda)$. Однако реально это сделать практически невозможно по ряду причин. Во-первых, величины $\beta(\lambda)$ и $\beta^S(\lambda)$ очень близки между собой и оценка параметра $\beta^A(\lambda)$ будет замаскирована погрешностями измерений. Во-вторых, оптические характеристики аэрозоля на протяженной трассе и в локальном объеме нефелометра в каждый момент времени, в силу пространственной неоднородности аэрозольного поля, могут различаться, что также приведет к погрешностям

в определении $\beta^A(\lambda)$. В-третьих, нефелометры с закрытым объемом подсушивают аэрозоль и фактически измеряют коэффициент рассеяния сухого аэрозоля $\beta_0^S(\lambda)$, который заметно отличается от $\beta^S(\lambda)$ при измерениях в условиях повышенной влажности воздуха. Кроме того, имеются серьезные технические трудности спектральных измерений $\beta^S(\lambda)$ в инфракрасном диапазоне длин волн.

С учетом этих обстоятельств в данной статье предлагается статистическая методика, позволяющая на основе данных одновременных измерений коэффициентов $\beta(\lambda)$ на протяженной трассе, коэффициентов $\beta_0^S(\lambda)$ (на длине волны $\lambda = 0,52$ мкм) и массовой концентрации сажесодержащего аэрозоля — M_c , измеренных в локальном объеме, оценивать коэффициент поглощения реального атмосферного аэрозоля в широком диапазоне длин волн.

Характеристика исходных данных

Для взаимного анализа были привлечены данные круглосуточных измерений характеристик атмосферного аэрозоля в районе г. Томска во время комплексного радиационного эксперимента в июне 2004 г. Измерения спектрального пропускания атмосферы в области длин волн 0,45–12 мкм проводились на приземной трассе протяженностью 830 м каждые 2 ч с использованием автоматизированного аппаратного комплекса [5]. Прозрачность слоя атмосферы $T(\lambda)$ и спектральные коэффициенты общего ослабления $\varepsilon(\lambda)$ находились по методике, предложенной в [6]. По полученным значениям коэффициентов $\varepsilon(\lambda)$, с помощью статистической

методики [7], основанной на аппарате множественной линейной регрессии, выделялись коэффициенты аэрозольного ослабления $\beta(\lambda)$. Коэффициент рассеяния сухого аэрозоля β_0^S (0,52) измерялся в локальном объеме нефелометром ФАН под углом 45° в подогреваемой камере [8], а массовая концентрация сажесодержащего аэрозоля M_c (мкг/м³) находилась с помощью аэлометра, конструкция и принцип действия которого приведены в [9]. Синхронно с оптическими измерениями осуществлялись метеорологические наблюдения. Один раз в сутки измерялся параметр конденсационной активности субмикронного аэрозоля γ , который позволяет связать коэффициенты рассеяния сухого β_0^S (0,52) и увлажненного β^S (0,52) аэрозолей через соотношение

$$\beta^S(0,52) = \beta_0^S(0,52)(1 - RH/100)^{-\gamma}, \quad (1)$$

где RH – относительная влажность воздуха. Отметим, что β_0^S (0,52) измерялась на Аэрозольной станции ИОА каждый час. Для нахождения элементов массива $\{\beta^S(0,52)\}$, соответствующих каждой i -й реализации $\beta(\lambda)$, измеренных в другое время суток, были рассчитаны значения γ путем линейной аппроксимации по двум точкам, полученным из измерений в ближайшие дни.

При обработке данных все массивы были разбиты на два подмассива, полученных при $RH < 60\%$ («сухая» атмосфера – преимущественно дневные измерения) и $RH > 60\%$ («влажная» атмосфера, в основном ночные измерения).

Средние значения и СКО измеряемых параметров (X) для двух подмассивов приведены в табл. 1. Достаточно большой диапазон изменчивости этих характеристик свидетельствует о представительности полученного экспериментального материала.

Таблица 1

Средние значения измеряемых параметров, их среднеквадратические отклонения и диапазон изменчивости

| Измеряемый параметр X | \bar{X} | СКО | X_{\max} | X_{\min} |
|--|-----------|--------|------------|------------|
| «Сухая» атмосфера ($N = 141$) | | | | |
| β (0,55), км ⁻¹ | 0,188 | 0,064 | 0,34 | 0,063 |
| β (3,9), км ⁻¹ | 0,147 | 0,044 | 0,271 | 0,064 |
| β_0^S (0,52), км ⁻¹ ·ср ⁻¹ | 0,0081 | 0,0049 | 0,024 | 0,002 |
| M_c , мкг/м ³ | 1,062 | 0,652 | 4,77 | 0,302 |
| t , °С | 22,26 | 4,92 | 32,08 | 7,72 |
| RH , % | 43,9 | 9,3 | 59,9 | 22,1 |
| γ | 0,288 | 0,091 | 0,49 | 0,14 |
| «Влажная» атмосфера ($N = 97$) | | | | |
| β (0,55), км ⁻¹ | 0,120 | 0,059 | 0,32 | 0,006 |
| β (3,9), км ⁻¹ | 0,076 | 0,033 | 0,160 | 0,014 |
| β_0^S (0,52), км ⁻¹ ·ср ⁻¹ | 0,0099 | 0,0062 | 0,034 | 0 |
| M_c , мкг/м ³ | 1,095 | 0,612 | 3,88 | 0 |
| t , °С | 14,68 | 4,88 | 23,33 | 1,0 |
| RH , % | 77,7 | 10,2 | 94,2 | 60,1 |
| γ | 0,269 | 0,089 | 0,49 | 0,14 |

Методика статистической оценки аэрозольного поглощения

Обработка данных проводилась с использованием математического аппарата линейной многопараметрической регрессии. Полагая, что в общем случае вариации коэффициента $\beta(\lambda)$ определяются изменением концентрации грубодисперсных и субмикронных частиц, измеренное значение $\beta(\lambda)$ можно представить в виде $\beta(\lambda) = \beta_{\text{гд}}(\lambda) + \beta_{\text{сбм}}(\lambda)$. Теперь если в качестве параметра $\beta_{\text{гд}}$ использовать величину $\beta_{\text{гд}}^* = [\beta(2,2) + \beta(3,9)]/2$, а параметр $\beta_{\text{сбм}}(\lambda)$ представить через совокупность параметров β_0^S , β_{RH}^S и M_c , то уравнение линейной регрессии для $\beta(\lambda)$ можно записать в виде

$$\beta(\lambda) = K_0(\lambda) + K_1(\lambda)\beta_{\text{гд}}^* + K_2(\lambda)\beta_0^S + K_3(\lambda)\beta_{RH}^S + K_4(\lambda)M_c + \delta_\beta(\lambda), \quad (2)$$

где $K_i(\lambda)$ – спектральные коэффициенты регрессии; $\beta_{\text{гд}}$, β_0^S и $\beta_{RH}^S = \beta^S - \beta_0^S$ – входные параметры; $\delta_\beta(\lambda)$ – погрешность восстановления $\beta(\lambda)$. Напомним, что параметр β^S рассчитывался из соотношения (1) по заданным значениям β_0^S , RH и γ . Расчет коэффициентов $K_i(\lambda)$ проводился методом наименьших квадратов с учетом взаимных корреляций входных параметров уравнения (табл. 2).

Таблица 2

Коэффициенты взаимной корреляции входных параметров уравнения (2)

| Входные параметры | $\beta_{\text{гд}}^*$ | β_0^S | β_{RH}^S | M_c | $\beta_{\text{гд}}^*$ | β_0^S | β_{RH}^S | M_c |
|-----------------------|-----------------------|-------------|----------------|-------|-----------------------|-------------|----------------|-------|
| | «Сухая» атмосфера | | | | «Влажная» атмосфера | | | |
| $\beta_{\text{гд}}^*$ | 1,0 | 0,12 | -0,15 | -0,12 | 1,0 | 0,17 | -0,06 | 0,19 |
| β_0^S | | 1,0 | 0,70 | 0,57 | | 1,0 | 0,40 | 0,72 |
| β_{RH}^S | | | 1,0 | 0,54 | | | 1,0 | 0,27 |
| M_c | | | | 1,0 | | | | 1,0 |

В соответствии с физическим содержанием входных параметров уравнения (2) компонента $K_1(\lambda)\beta_{\text{гд}}^*$ определяет вклад в изменчивость параметра $\beta(\lambda)$ во всем диапазоне длин волн грубодисперсного аэрозоля, компоненты $K_2(\lambda)\beta_0^S$ и $K_3(\lambda)\beta_{RH}^S$ – сухого и увлажненного субмикронного аэрозоля соответственно, а компонента $K_4(\lambda)M_c$ – поглощающего сажесодержащего аэрозоля. Заметим, что введение двух параметров β_0^S и β_{RH}^S , отвечающих за рассеивающие свойства субмикронного аэрозоля, на первый взгляд представляется излишним и для этого, казалось бы, достаточно ввести один параметр $\beta^S = \beta_0^S + \beta_{RH}^S$. Однако проведенные оценки погрешности восстановления величины $\beta(\lambda)$ по модели (2) показывают, что если в условиях низкой влажности воздуха такая замена вполне допустима, то при высокой влажности введение двух параметров: β_0^S и β_{RH}^S , позволяет заметно снизить погрешность восстановления $\beta(\lambda)$.

Результаты исследований

На рис. 1 для двух массивов данных представлена корреляционная связь коэффициентов аэрозольного ослабления на длине волны 0,55 мкм, полученных из измерений на горизонтальной трассе и рассчитанных с помощью выражения (2).

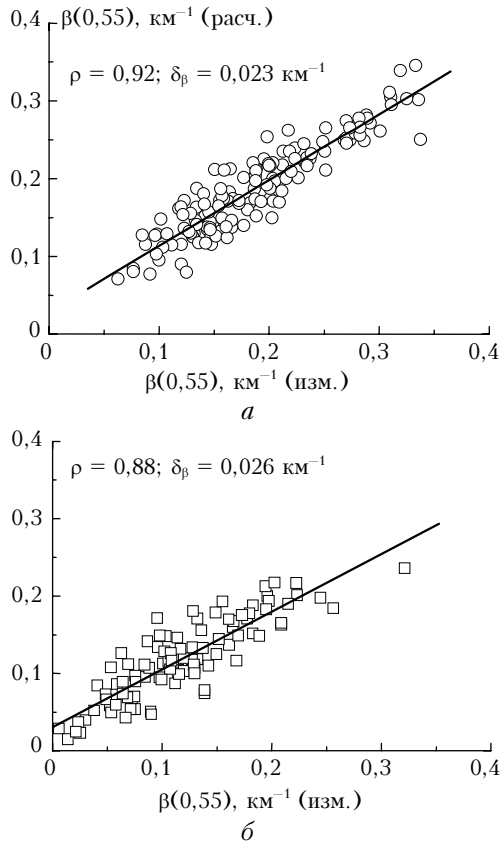


Рис. 1. Сравнение измеренных и рассчитанных по модели (2) коэффициентов аэрозольного ослабления на длине волны 0,55 мкм для «сухой» (а) и «влажной» (б) атмосферы

Высокий уровень корреляции (0,92 и 0,88 для «сухой» и «влажной» атмосферы соответственно) свидетельствует о правильности выбора входных параметров в уравнение (2) и позволяет исследовать роль каждого предиктора в формировании спектральной структуры коэффициентов аэрозольного ослабления. На рис. 2–5 показано изменение спектральной структуры коэффициентов аэрозольного ослабления $\beta(\lambda)$ в зависимости от величины входных параметров для «сухой» и «влажной» атмосферы. В частности, рассматривается трансформация спектра коэффициентов $\beta(\lambda)$ за счет изменения вклада грубодисперсного аэрозоля (см. рис. 2), сухой основы (рис. 3), доли субмикронного аэрозоля, обусловленной конденсацией водяного пара (рис. 4) субмикронного аэрозоля и сажесодержащего аэрозоля (рис. 5). Кривая 1 на рис. 2–5 соответствует средним значениям всех входных параметров, кривая 2 — максимальным, а 3 — минимальным, при условии, что остальные входные парамет-

ры соответствуют средним значениям. Вертикальными отрезками на кривых 1 рис. 2 показана погрешность восстановления коэффициентов $\beta(\lambda)$ для каждой длины волны. Отметим, что спектры коэффициентов $\beta(\lambda)$, представленные на рис. 2–5, построены относительно длины волны 3,9 мкм, что связано с выбором параметра в уравнении (2), отвечающего за вариации грубодисперсного аэрозоля.

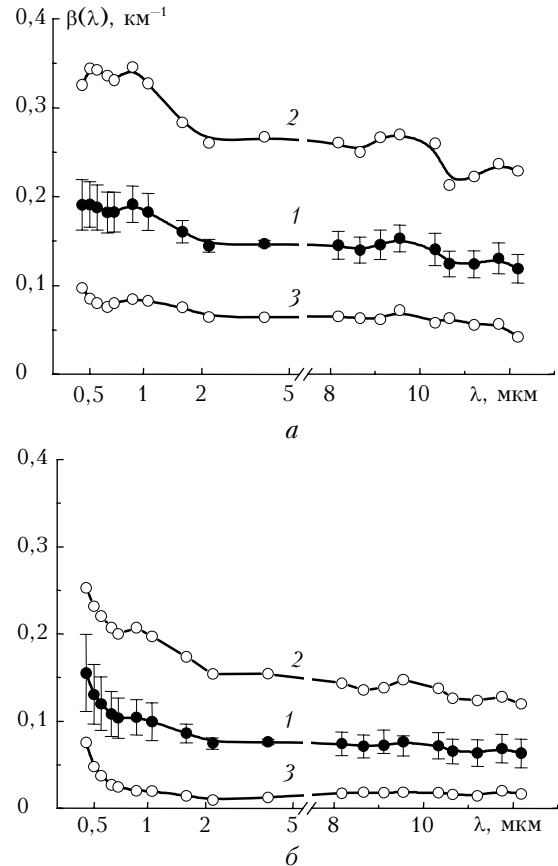


Рис. 2. Трансформация спектрального хода коэффициентов аэрозольного ослабления при изменении концентрации грубодисперсного аэрозоля для «сухой» (а) и «влажной» (б) атмосферы

Из сопоставления этих данных следует, что наибольший вклад в изменчивость коэффициентов $\beta(\lambda)$ во всем диапазоне длин волн вносит изменение уровня аэрозольного ослабления излучения, связанного с грубодисперсным аэрозолем. При этом для «сухой» атмосферы изменчивость $\beta(\lambda)$ за счет этого фактора несколько больше, чем для «влажной». Последнее, по-видимому, связано с тем, что условия «сухой» атмосферы ($RH < 60\%$) реализуются в основном днем, когда в летнее время хорошо развиты конвективные и турбулентные потоки, способствующие выносу в атмосферу крупных частиц почвенного происхождения. Оценки показывают, что введение параметра $\beta_{гд}^*$ в модель (2) приводит к резкому снижению погрешности восстановления коэффициента $\beta(\lambda)$ как для «сухой», так и для «влажной» атмосферы.

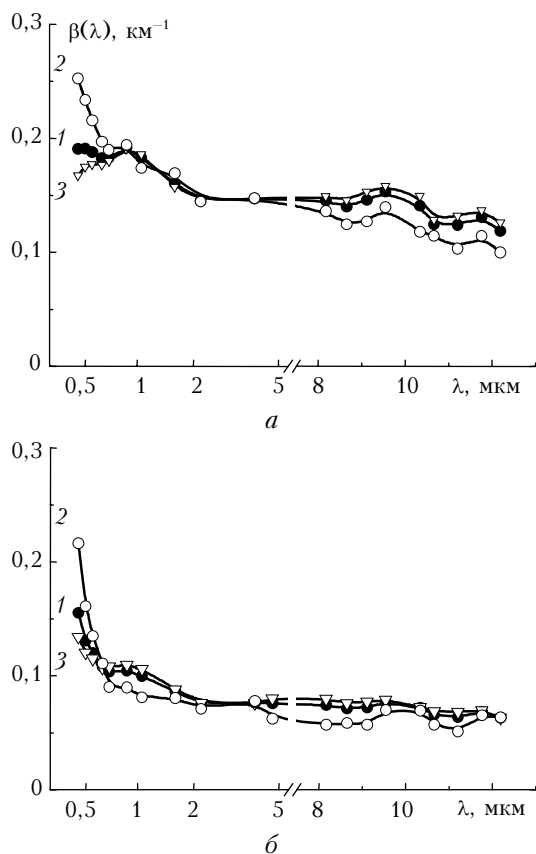


Рис. 3. Трансформация спектрального хода коэффициентов аэрозольного ослабления при изменении параметра β_0^S , связанного с «сухой» основой субмикронного аэрозоля для «сухой» (а) и «влажной» (б) атмосферы

Интересно отметить, что характер изменения спектральной структуры $\beta(\lambda)$ с изменением $\beta_{гд}^*$ в «сухой» и «влажной» атмосфере значительно различается. Изменения параметра β_0^S (см. рис. 3) заметно влияют на структуру спектра $\beta(\lambda)$ только в коротковолновой части ($\lambda < 0,6$ мкм) и особенно для «сухой» атмосферы. В условиях «влажной» атмосферы вид спектральной зависимости практически не изменяется. Что касается параметра β_{RH}^S , то при «сухой» атмосфере его изменения слабо меняют спектр $\beta(\lambda)$ (см. рис. 4, а), в то время как во «влажной» атмосфере изменения β_{RH}^S очень сильно влияют на спектральную структуру коэффициента $\beta(\lambda)$ во всем диапазоне длин волн (см. рис. 4, б). С ростом влажности воздуха, а следовательно, и параметра β_{RH}^S наблюдается выраженный подъем коэффициентов $\beta(\lambda)$ в коротковолновой области спектра, а сам спектральный ход становится более гладким, без каких-либо экстремумов.

Изменение спектральной структуры коэффициента $\beta(\lambda)$ при вариациях концентрации сажевого аэрозоля (M_c) представлено на рис. 5 для трех значений содержания поглощающего вещества в аэрозольных частицах — 0; 1 и 3 мкг/м³ (кривые 3, 1 и 2 соответственно). Из рис. 5 видно, что только

при высоком содержании сажи в частицах ($M_c = 3$ мкг/м³) спектр $\beta(\lambda)$ заметно отличается от среднего (кривые 2).

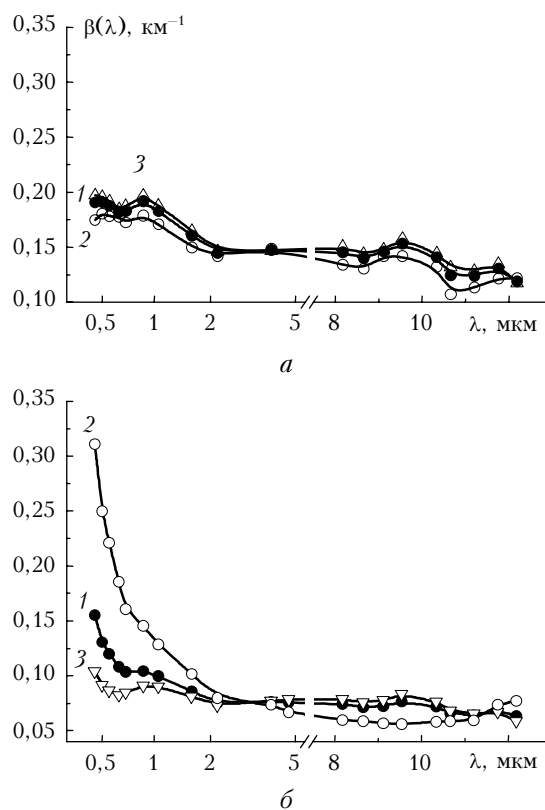


Рис. 4. Трансформация спектрального хода коэффициентов аэрозольного ослабления при изменении конденсационной доли субмикронного аэрозоля для «сухой» (а) и «влажной» (б) атмосферы

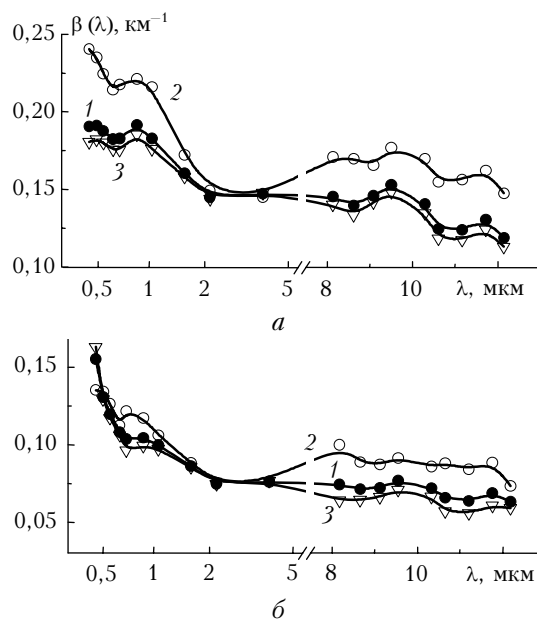


Рис. 5. Трансформация спектрального хода коэффициентов аэрозольного ослабления при изменении содержания сажи в аэрозольных частицах для «сухой» (а) и «влажной» (б) атмосферы

Проведенный анализ позволяет оценить изменения спектрального поведения как общих коэффициентов аэрозольного ослабления, так и его компонент, входящих в выражение (2), в зависимости от любых внешних параметров при условии, что установлены корреляционные связи этих параметров с предикторами (2).

На рис. 6 представлены рассчитанные спектральные зависимости субмикронной компоненты

$$\beta_{сбм}(\lambda) = K_2(\lambda)\beta_0^S + K_3(\lambda)\beta_{RH}^S + K_4(\lambda)M_c$$

для двух диапазонов относительной влажности воздуха. Как видно, спектральная структура субмикронной компоненты ослабления имеет обычный характер — она быстро спадает с ростом длины волны и уже в области $\lambda \geq 2$ мкм вклад ее становится практически равным нулю.

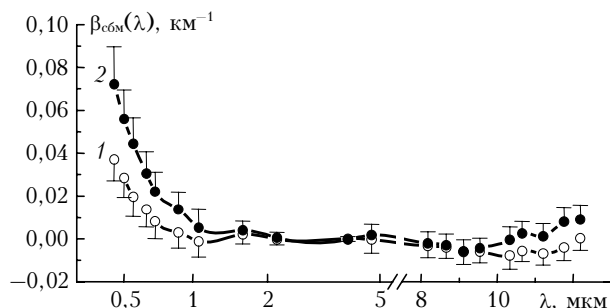


Рис. 6. Спектральный ход субмикронной компоненты аэрозольного ослабления в условиях «сухой» (1) и «влажной» (2) атмосферы

На рис. 7 приведена рассчитанная из (2) спектральная зависимость компоненты $\beta_a(\lambda) = K_4(\lambda)M_c$, обусловленная поглощением радиации сажеосодержащим аэрозолем.

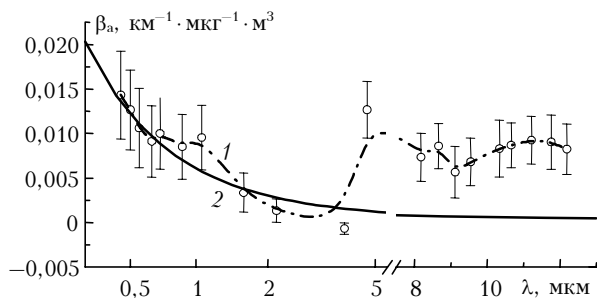


Рис. 7. Усредненный спектральный ход коэффициента поглощения сажеосодержащего аэрозоля в условиях «сухой» атмосферы (кривая 1) и аппроксимация зависимости $1/\lambda$ (кривая 2)

Здесь мы рассмотрим только условия низкой влажности воздуха, когда эта зависимость проявляется более четко. Видно, что в области длин волн от 0,45 до 4 мкм наблюдается хорошо выраженный спад коэффициента поглощения с ростом длины волны. Подобный вид зависимости $\beta_c(\lambda)$, которую приближенно можно оценить как $1/\lambda$ (см. кривую 2), свидетельствует о том, что это поглощение обусловлено частицами очень малых размеров.

Полученный результат качественно согласуется с выводами работы [10], где на основе натурных измерений в атмосфере аридной зоны (т.е. также в условиях очень низких влажностей) было выявлено непрерывное аэрозольное поглощение радиации в области 0,44–4 мкм по совершенно другой методике.

Позднее факт наличия аэрозольного поглощения в видимой и ближней ИК-областях был надежно установлен с помощью оптико-акустической спектроскопии в [11], где приведены конкретные значения коэффициентов поглощения для области 0,53–1,06 мкм. Сопоставление коэффициентов поглощения, полученных в настоящей работе, с данными [11] показало их хорошее соответствие. В связи с этим можно предположить, что использованный в данной работе статистический подход может быть применен для определения коэффициентов поглощения атмосферного аэрозоля в диапазоне длин волн $\sim 0,45$ –4 мкм в условиях достаточно низких влажностей воздуха.

Что касается области спектра 8–12 мкм, где наблюдается заметный подъем коэффициента $\beta(\lambda)$, то для выяснения этого вопроса необходимы дополнительные исследования.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (проекты № 04-05-65179 и 06-05-64393).

1. *Ивлев Л.С., Попова С.И.* Комплексный показатель преломления диспергированной фазы атмосферного аэрозоля // Изв. АН СССР. Физ. атмосф. и океана, 1973. Т. 9. № 8. С. 1034–1043.
2. *Ивлев Л.С.* Химический состав и структура атмосферных аэрозолей. Л.: Изд-во ЛГУ, 1982. 366 с.
3. *Volz F.* Infrared refractive index of atmospheric aerosol substances // Appl. Opt. 1972. V. 11. P. 755–759.
4. *Креков Г.М., Рахимов Р.Ф.* Оптико-локационная модель континентального аэрозоля. Новосибирск: Наука, 1982. 198 с.
5. *Пхалагов Ю.А., Ужegov В.Н., Щелканов Н.Н.* Автоматизированный многоволновой измеритель спектральной прозрачности приземной атмосферы // Оптика атмосф. и океана. 1992. Т. 5. № 6. С. 667–671.
6. *Ужegov В.Н., Пхалагов Ю.А., Щелканов Н.Н.* Модифицированный алгоритм статистической обработки результатов измерений ослабления излучения на горизонтальных трассах // VI Заседание Рабочей группы проекта «Аэрозоли Сибири»: Тез. докл. Томск: Изд-во ИОА СО РАН, 1999. С. 62.
7. *Пхалагов Ю.А., Ужegov В.Н.* Статистический метод разделения коэффициентов общего ослабления ИК-радиации на компоненты // Оптика атмосф. 1988. Т. 1. № 10. С. 3–11.
8. *Panchenko M.V., Terpigova S.A., Tumakov A.G.* Annual variations of submicron aerosol fraction as assessed from the data of airborne nephelometric measurements // Atmos. Res. 1996. V. 41. N 3–4. P. 203–215.
9. *Козлов В.С., Бурков В.В., Панченко М.В., Шмаргунов В.П.* Оптический измеритель массовой концентрации поглощающего вещества аэрозоля (сажи) в воздухе // Наука — производству. 2003. С. 15–19.
10. *Пхалагов Ю.А., Ужegov В.Н., Щелканов Н.Н.* К вопросу о непрерывном ослаблении оптического излучения в коротко-волновой области спектра // Оптика атмосф. и океана. 1998. Т. 11. № 4. С. 315–319.

11. *Tikhomirov A.B., Firsov K.M., Kozlov V.S., Panchenko M.V., Ponomarev Yu.N., Tikhomirov B.A.* Investigations of spectral dependence of shortwave radiation

absorption by ambient aerosol using time-resolved photoacoustic technique // Opt. Eng. 2005. V. 44. N 7. P. 071203 1–11.

V.N. Uzhegov, Yu.A. Pkhalagov, M.V. Panchenko, V.S. Koslov, S.A. Terpugova, E.P. Yausheva.
Statistical estimate of the atmospheric aerosol absorption based on optical measurements.

A statistical method is proposed allowing estimation of the actual atmospheric aerosol absorption coefficient in a wide wavelength range based on data of simultaneous measurements of the spectral coefficients of aerosol attenuation on a long path; scattering coefficients for dry aerosol at $\lambda = 0.52 \mu\text{m}$; and mass concentration of the soot-containing aerosol M_c in a local volume. The method was tested on the experimental material obtained during complex studies of the atmospheric aerosol in June 2004 near Tomsk city. Spectral dependence of the absorption coefficient for the soot-containing aerosol is found. A well noticeable decrease in the absorption coefficient at a growing wavelength is observed within wavelength range $0.45\text{--}4 \mu\text{m}$. Such a wavelength dependence of the absorption coefficient, which can be approximately estimated as $1/\lambda$, evidences that the absorption is due to very small-size particles.