

内混合海洋型气溶胶粒子消光特性的分析

黄红莲, 黄印博, 韩永, 饶瑞中

(中国科学院安徽光学精密机械研究所大气光学中心, 安徽 合肥 230031)

摘要: 利用米散射理论和分层球模型考察了典型的海洋型气溶胶粒子在内混合状态下的消光特性, 据此分析了以等效折射率描述具有不同折射率的各种成分组成的内混合气溶胶系统的适用性。结果表明: 对于单分散系统, 在瑞利散射区域和几何光学区域内, 不同混合比下消光效率因子的等效性比较好, 而在米散射区域 ($1 < x < 20$) 内, 消光效率因子的等效性较差; 对多分散系统, 在三种区域内不同混合比下消光截面的等效性都较好。因此, 对内混合海洋型气溶胶系统而言, 一般可以通过寻找合适的等效折射率计算其消光特性。

关键词: 大气光学; 海洋型气溶胶; 内混合; 分层球模型; 等效折射率

中图分类号: P427.1

文献标识码: A

文献编号: 1673-6141(2007)03-0179-05

Light Extinction Properties of Marine Aerosol Particles in Internal Mixing State

HUANG Hong-lian, HUANG Yin-bo, HAN Yong, RAO Rui-zhong

(Center for Atmospheric Optics, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China)

Abstract: Using Mie theory and the concentrically coated sphere model, light extinction properties of marine aerosol particles in internal mixing state were analyzed. The validity of equivalent refractive index for describing the internal mixture of aerosol particles with different complex refractive indexes was also discussed. For monodispersions, the equivalence of extinction efficiency is stable in Rayleigh scattering's range and geometrical optics' range at different mixture ratios, and the equivalence is poor in the range of Mie scattering. However, for polydispersions, the equivalence of extinction cross section is perfect at different mixture ratios. Therefore, we can obtain the equivalent refractive indexes of marine aerosol particles in internal mixing state and calculate extinction properties.

Key words: atmospheric optics; marine aerosol; internal mixing; concentrically coated sphere model; equivalent refractive index

1 引言

大气气溶胶粒子普遍存在于对流层中, 其对大气辐射平衡、大气环境质量和人体健康都有重大影

响, 因此广泛受到大气化学、大气环境、气象、气候、激光大气传输等诸多领域的关注^[1-3]。在激光大气传输过程中, 气溶胶粒子的吸收和散射不但直

收稿日期: 2006-05-24; 修改日期: 2006-08-18

E-mail: honglian511@tom.com

接造成激光能量的衰减,而且由于其吸收激光能量所产生的非线性热晕效应,还会导致传输光束的偏移、光斑畸变和扩展等。因此,气溶胶粒子对激光大气传输影响的研究,已成为激光工程应用中一项重要的基础工作。

在目前的激光工程应用中,考虑气溶胶粒子系统的影响时,往往假定其为单一成分的均匀体,一般都不区分其混合状态^[4-5]。然而,实际的大气气溶胶并不是单一成分的,而是由不同成分组成的混合体,如海洋型气溶胶一般由海盐和硫酸盐、硝酸盐等一些可溶性物质及有机成分组成^[6-7]。研究表明,当气溶胶粒子中的各种不同成分所处的混合状态不同时,其光散射特性有明显差异^[7-11]。对气溶胶粒子混合状态的研究,目前通常是分两种理想的情况,即外混合状态和内混合状态。饶瑞中曾对外混合气溶胶粒子光散射的等效性进行了详细的分析^[12],但有关内混合气溶胶粒子光散射特性的分析国内外至今未见公开报道。因此,本文将着重就内混合状态下气溶胶粒子的消光特性及其对激光大气传输的影响进行分析。

本文选取典型的清洁海洋型气溶胶粒子为例,并采用分层球模型:假设其中含有海盐和水两种成分,将海盐粒子作为内核,其外包裹一层均匀的水壳。海盐和水在 $0.55 \mu\text{m}$ 处的折射率分别为 $1.500-1.0 \times 10^{-8}i$ 和 $1.333-1.96 \times 10^{-9}i$,这两种成分组成的单分散和多分散内混合气溶胶粒子系统作为本文研究的对象。

2 原理和方法

2.1 气溶胶粒子系统的两种混合状态

对气溶胶粒子的两种混合状态即外混合状态和内混合状态而言,由于混合方式的不同,使得含有相同成分的气溶胶粒子系统的各光散射量也有所不同,以下将首先对两种混合状态的概念及各散射光学量的计算方法进行简要的介绍。

所谓外混合状态是指每个气溶胶粒子只含有一种成分,具有不同成分的气溶胶粒子各自独立地存在于整个气溶胶系统中。对于外混合气溶胶系统,可根据每种成分(也就是每个气溶胶粒子)的谱分布和复折射率计算各自的光散射量(如消光系数 K_{ext} 、相函数 P 、光学厚度 τ_A 等),然后根据混

合比对单个粒子的光散射量进行线形叠加,从而得到整个系统的光散射量,如消光系数可表示为

$$K_{\text{ext}} = \frac{\sum_i n_i K_{\text{ext}(i)}}{\sum_i n_i}, \quad (1)$$

其中 n_i 为外混合系统中第 i 种成分气溶胶粒子的混合比。

所谓内混合状态是指系统中的单个粒子是由多种气溶胶成分组成的混合体,每个粒子表现出多种成分共同的物理、化学特性。所以在知道各种成分的微物理性质及其混合比后,可根据气溶胶粒子的尺度谱分布函数 $n(r)$, 计算整个内混合系统的各光散射量,如散射截面可由下式得到

$$C_{\text{sca}} = \frac{\int_{r_{\text{min}}}^{r_{\text{max}}} C_{\text{sca}} n(r) dr}{\int_{r_{\text{min}}}^{r_{\text{max}}} n(r) dr}, \quad (2)$$

由此得到的气溶胶粒子各光散射量不是每种成分各光散射量的简单线形叠加,因此,它可能会更好地反映一些实际的气溶胶粒子的光学特性。

2.2 均匀球形粒子和分层球形粒子的光散射算法

对内混合状态的计算,一般选择均匀球模型或分层球模型(即核-壳模型),且均把气溶胶粒子等效为球形粒子。但两者又有所不同,前者是把气溶胶粒子看作均匀球粒子,认为每个气溶胶粒子内的各成分均匀混合,即反映的是各成分平均的物理、化学特性;而后者则是把气溶胶粒子当作一个同心球,其内的每种成分各自独立地形成一个均匀的同心球壳,有几种成分就把同心球分为几层^[13-15]。

对均匀球模型而言,一般是用体平均法求解其折射率,由此得到折射率的实部和虚部分别为

$$\bar{n} = \sum_{i=1}^n n_i f_i, \quad (3)$$

$$\bar{k} = \sum_{i=1}^n k_i f_i. \quad (4)$$

上式中 n_i 和 k_i 分别是第 i 种成分折射率的实部和虚部, f_i 为第 i 种成分的体混合比。在得到单个粒子的平均折射率之后,再结合其尺度参数,使用

Wiscombe 编写的米散射程序 MIE 即可得到单个均匀球粒子的各光散射特性。

对分层球模型, 不能使用平均折射率, 而是要使用分层米散射程序 DMIELAY 来计算单个粒子的光散射量。以图 1 所示的双分层球形粒子为例, 其计算过程为: 首先确定作为内核的一种成分的折射率 $m_1 = n_1 - ik_1$ 和作为外壳的另一种成分的折射率 $m_2 = n_2 - ik_2$; 然后根据内核半径 a 和粒子总半径 b 确定两种成分的体混合比 $f = a^3/b^3$ 和 $1-f$, 相应的尺度参数为 $2\pi a/\lambda$ 和 $2\pi b/\lambda$; 再使用 Owen B Toon 编写的分层米散射程序 DMIELAY 即可计算其光散射量^[13]。DMIELAY 的本质与 MIE 一样, 也是基于米散射理论, 且当双分层球的内核半径为零时, 即可简化为均匀球的米散射问题。

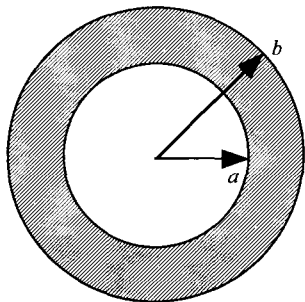


图 1 分层球粒子的示意图

Fig.1 Sketch map of spherical particle layer

对海洋型气溶胶粒子系统而言, 研究表明该系统大都处于内混合状态^[6-7], 而且多由可溶性和不溶性物质共同组成, 容易形成可溶性外壳包裹着不溶性内核的粒子。因此, 对该系统一般是选择分层球模型, 即把气溶胶粒子当作一个同心球, 其内的每种成分各自独立地形成一个均匀的同心球壳, 有几种成分就把同心球分为几层^[13-15]。

2.3 内混合气溶胶粒子系统的等效性分析

假设清洁海洋型气溶胶粒子只含有海盐和水这两种成分, 根据上文所述的核-壳模型结构, 确定了每种成分在 $0.55 \mu\text{m}$ 处的折射率以及体混合比后, 对单分散气溶胶粒子系统而言, 即可用分层米散射程序 DMIELAY 计算出单个粒子的各光散射量, 如消光、散射、吸收效率因子 Q_{ext} 、 Q_{sca} 、 Q_{abs} 和散射相函数 P 等。对多分散气溶胶粒子系统而言, 根据尺度谱分布函数, 通过对计算所得的单个粒子各光散射量进行谱分布积分, 即可得到整个

内混合系统的消光、散射、吸收截面 C_{ext} 、 C_{sca} 、 C_{abs} 和散射相函数 P 等各光散射量。

对于上述两种分散系统均可采用外混合气溶胶粒子光散射的等效性分析方法^[12], 来计算内混合气溶胶粒子的等效折射率。具体做法为: 将所研究的气溶胶粒子看作尺度参数为 $x = 2\pi b/\lambda$, 折射率为 $m = n - ik$ 的均匀球粒子, 用米散射理论计算其光散射量, 当由此得到的光散射量与内混合系统的光散射量的相对差别最小时 (对单分散系统用各效率因子的相对差别 $\varepsilon_{Q_{\text{ext}}}$ 、 $\varepsilon_{Q_{\text{sca}}}$ 、 $\varepsilon_{Q_{\text{abs}}}$, 对多分散系统用各截面的相对差别 $\varepsilon_{C_{\text{ext}}}$ 、 $\varepsilon_{C_{\text{sca}}}$ 、 $\varepsilon_{C_{\text{abs}}}$), 所对应的折射率就是内混合系统的等效折射率。

以下本文就将选择核-壳模型, 应用分层米散射程序 DMIELAY 考察在四种混合比 f : 0.99, 0.9, 0.5, 0.1 下的各光散射量, 并进行等效性的分析。由于文中所选的气溶胶粒子海盐和水这两种成分的折射率虚部都比较小, 因此暂不分析等效折射率的虚部, 而主要关注等效折射率的实部及气溶胶粒子系统消光特性的等效性分析。

3 单分散系统的结果分析

对单分散系统而言, 尺度参数 x 选取从 0.1~100 共 31 个等对数间隔, 如图 2 所示, 即为四种混合比下的等效折射率实部和消光效率因子的相对差别与尺度参数的关系。由图 2a 可以看出, 当尺度参数 $x < 1$ 即在瑞利散射区域内, 等效折射率的实部与混合比 f 密切相关, 其随海盐所占份额的减小而逐渐减小, 并且其大小与用均匀球模型计算所得的平均折射率相当一致; 而在米散射区内, 尺度参数 $1 < x < 20$ 时, 等效折射率的实部起伏较大, 特别是在后两种混合比下, 有些等效折射率实部的大小甚至不在两种粒子成分折射率实部的范围之内; 而当尺度参数 $x > 20$ 即在几何光学区域内, 不同混合比下等效折射率的实部趋于一致, 且相对比较稳定, 但是其大小仍然不在两种成分折射率实部的范围之内, 而是比水的实部 1.333 还小, 并大都集中在 1.10~1.20 之间。如图 2b 所示, 当尺度参数 $x < 1$ 或 $x > 20$ 时, 四种混合比下消光效率因子的相对差别均较小, 基本上在 20% 以内; 而当尺度参数 $1 < x < 20$ 时, 消光效率因子的相对差别比较

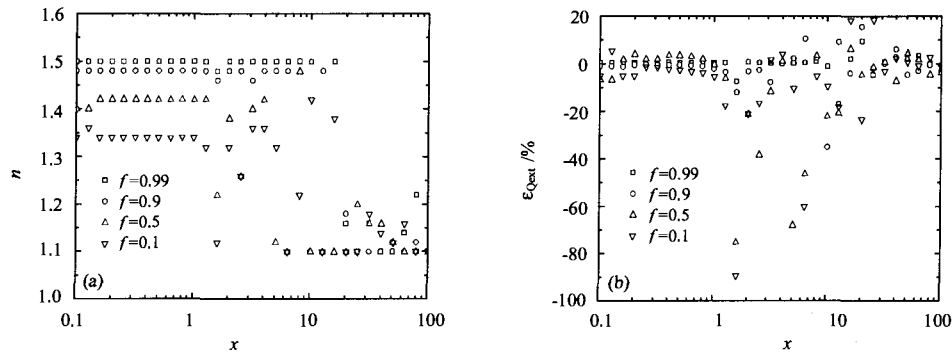


图 2 四种混合比下等效折射率实部 (a) 和消光效率因子的相对差别 (b) 随尺度参数的变化关系

Fig.2 The variation of equivalent refractive index's real part (a) and relative difference of extinction efficiency (b) with size parameters at four different mixture ratios

大, 并随着海盐所占份额的减小明显增大, 在四种混合比下, 最大的相对差别分别为: -17.05% 、 -35.11% 、 -75.16% 、 -89.27% 。

4 多分散系统的结果分析

对多分散系统而言, 假定气溶胶粒子符合荣格 (Junge) 谱分布, 积分区间为 $0.01 \sim 10 \mu\text{m}$ 。由方程 (2) 即可计算四种混合比下的消光截面, 从而得到等效折射率的实部和消光截面的相对差别, 如表 1 所示, 即为四种混合比下等效折射率实部和消光截面的相对差别。

表 1 四种混合比下等效折射率的实部和消光截面的相对差别

Table 1 Equivalent refractive index's real part and relative difference of extinction cross section at four different mixture ratios

Mixture ratios: f	0.99	0.9	0.5	0.1
Real part: \bar{n}	1.50	1.48	1.40	1.34
Error: $\varepsilon_{C_{\text{ext}}}$ (%)	0.95	2.64	1.07	9.17

由表可知, 对多分散系统而言, 等效折射率的实部和消光截面的相对差别都比单分散系统明显减小。等效折射率的实部随着海盐所占份额的减少而逐渐减小, 没有明显起伏, 并且等效折射率实部的大小也都在两种成分折射率实部的范围之内, 没有小于 1.333 的情况。消光截面的相对差别在四种混合比下也都较小, 前三种情况都在 3% 以内, 第四种情况也不超过 10%。这说明对于多分散系统而

言, 消光截面的等效性比较好, 而由此确定的等效折射率实部的误差也很小。实际的大气气溶胶多为多分散粒子系统, 所以对弱吸收的气溶胶粒子, 完全可以用上述方法计算等效折射率, 并进一步分析该系统的消光特性等。

5 结 论

以清洁海洋型气溶胶粒子为例, 利用米散射理论和分层球模型, 计算并分析了内混合状态下气溶胶粒子的消光特性, 据此分析了以等效折射率描述、具有不同折射率的各种成份组成的内混合气溶胶系统的适用性。结果表明: 对于单分散系统而言, 当尺度参数 $x < 1$ 或 $x > 20$, 即在瑞利散射和几何光学区域内, 不同混合比下消光效率因子的等效性较好; 而当尺度参数 $1 < x < 20$, 即在米散射区域内, 消光效率因子的等效性比较差。对于多分散系统而言, 在各种混合比下, 消光截面的等效性都相当好。实际的大气气溶胶体系大都为多分散粒子系统, 所以在激光大气传输的工程应用中, 对典型的海洋型气溶胶粒子, 一般不难找到合适的等效粒子, 即可使用一个等效折射率来描述由各种成分组成的内混合气溶胶粒子系统, 进而由此来计算光散射量如消光特性等。

另外, 在本文的计算分析中, 因为选择的清洁海洋型气溶胶是弱吸收类型的, 所以仅对消光效率因子 (截面) 的等效性进行了讨论。但对其它类型的大气气溶胶而言, 还需要对吸收特性和散射相函数等光散射量进行等效性分析, 以详细了解等效折射

率的适用性, 从而为其在激光大气传输和光散射技术中的应用提供依据。

参考文献:

- [1] Wang Mingxing, Zhang Renjian. Frontier of atmospheric aerosols researches [J]. *Climatic and Environmental Research*, 2001, **6**(1): 119-124 (in Chinese).
王明星, 张仁健. 大气气溶胶研究的前沿问题 [J]. *气候与环境研究*, 2001, **6**(1): 119-124.
- [2] Buseck P B. Airborne minerals and related aerosol particles: effects on climate and the environment [J]. *PNAS*, 1999, **97**(6): 3372-3379.
- [3] Rao Ruizhong. Modern atmospheric optics and its applications [J]. *Journal of Atmospheric and Environmental optics*, 2006, **1**(1): 2-13 (in Chinese).
饶瑞中. 现代大气光学及其应用 [J]. *大气与环境光学学报*, 2006, **1**(1): 2-13.
- [4] Li Guohua, Zhang Jingbin, Hu Huanling, et al. Sensitivity analyses of light scattering and extinction parameters to the aerosol refractive index [J]. *Acta Optica Sinica*, 1994, **14**(5): 551-553 (in Chinese).
李国华, 张敬斌, 胡欢陵, 等. 光散射和消光参量对气溶胶折射系数的敏感性分析 [J]. *光学学报*, 1994, **14**(5): 551-553.
- [5] Yan Fengqi, Hu Huanling, Zhou Jun. Measurements of number density distribution and imaginary part of refractive index of aerosol particles [J]. *Acta Optica Sinica*, 2003, **23**(7): 855-859 (in Chinese).
阎逢旗, 胡欢陵, 周 军. 大气气溶胶粒子数浓度谱和折射率虚部的测量 [J]. *光学学报*, 2003, **23**(7): 855-859.
- [6] Middlebrook A A. Observations of organic material in individual marine particles at Cape Grim during the first aerosol characterization experiment(ACE) [J]. *J.G.R.*, 1998, **103**(D13): 16475-16483.
- [7] Randles C A, Russell L M, Ramaswamy V. Hygroscopic and optical properties of organic sea salt aerosol and consequences for climate forcing [J]. *G.R.L.*, 2004, **31**:L16108.
- [8] Glen Lesins. A study of internal and external mixing scenarios and its effect on aerosol optical properties and direct radiative forcing [J]. *J.G.R.*, 2002, **107**(D10).
- [9] Ackerman T P, Toon O B. Absorption of visible radiation in atmosphere containing mixtures of absorbing and nonabsorbing particles [J]. *Appl. Opt.*, 1981, **20**(20): 3663-3668.
- [10] Mallet M, Roger J C. A study of the mixing state of black carbon in urban zone [J]. *J.G.R.*, 2004, **109**:D04202.
- [11] Levoni Chiara, Cervino Marco. Atmospheric aerosol optical properties: a database of radiative characteristics for different components and classes [J]. *Appl. Opt.*, 1997, **36**(30): 8031-8041.
- [12] Rao Ruizhong. Equivalence of light scattering by external mixture of atmospheric aerosol particles [J]. *Acta Optica Sinica*, 1996, **16**(8): 1099-1108 (in Chinese).
饶瑞中. 外混合气溶胶粒子光散射的等效性 [J]. *光学学报*, 1996, **16**(8): 1099-1108.
- [13] Toon O B, Ackerman T P. Algorithms for the calculation of scattering by stratified spheres [J]. *Appl. Opt.*, 1981, **20**(20): 3657-3660.
- [14] Li Kai, Massoli P. Scattering of electromagnetic-plane waves by radially inhomogeneous spheres: a finely stratified sphere model [J]. *Appl. Opt.*, 1994, **33**(3): 501-511.
- [15] Yang Wen. Improved recursive algorithm for light scattering by a multilayered sphere [J]. *Appl. Opt.*, 2003, **42**(9): 1710-1720.

作者简介: 黄红莲 (1980-), 女, 硕士研究生, 主要从事气溶胶光学特性的研究。