

文章编号: 1001-4322(2007)07-1066-05

## 内混合强吸收气溶胶粒子光散射的等效性\*

黄红莲, 黄印博, 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, 合肥 230031)

**摘 要:** 以黑碳和水两种成分组成的内混合单分散气溶胶粒子为例, 根据其各消光效率因子、吸收效率因子和散射相函数, 分析了用等效折射率来描述含有不同成分的内混合气溶胶系统的适用性。结果表明: 在瑞利散射区和几何光学区内, 内核(碳粒)体积比为 0.01, 0.1, 0.5, 0.9 时, 消光效率在大多数尺度参数下等效性都很好, 但在米散射区内相对较差; 当体积比大于 0.3 时, 其吸收效率、消光效率等效性较好; 除瑞利散射区外, 散射相函数在各体积比下的等效性都很差。当考虑内混合气溶胶粒子系统的散射和吸收特性时, 一般不难找到等效折射率, 但在光散射技术中, 应用相函数反演等效折射率的可靠性还有待商榷。

**关键词:** 大气气溶胶; 光散射; 内混合; 等效折射率; 等效性

**中图分类号:** P427.1

**文献标识码:** A

激光在大气中传输时, 大气气溶胶粒子的吸收和散射效应不但直接导致激光能量的衰减, 而且由于吸收激光能量所产生的非线性热晕效应还会造成传输光束的偏移、光斑的畸变和扩展等<sup>[1-2]</sup>。目前, 在激光工程应用中, 当考虑气溶胶粒子的吸收和散射效应时, 往往假定其为单一成分的均匀体。但是, 实际大气中的气溶胶粒子体系是由各种不同成分组成的混合物, 其主要成分及所处的混合状态随着它的生存时期和地理位置的不同而不同, 没有固定的折射率, 特别是其虚部变化范围很大, 甚至有量级上的差别, 很难精确测定<sup>[3-4]</sup>。大气中有有机碳和元素碳是大气气溶胶的主要吸收物质, 难溶于水, 在其成长过程中往往容易在碳外表包裹一层水壳或硫酸盐溶液, 从而形成可溶性外壳包裹着不溶性内核的内混合分层球粒子<sup>[5-6]</sup>。

目前, 国内外对气溶胶系统等效折射率适用性的报道较少<sup>[7]</sup>, 而且大都针对多分散系统, 由于气溶胶粒子的折射率和谱分布对散射特征量均有影响, 这样就容易混淆粒子的折射率和谱分布的作用。为了把气溶胶的折射率和谱分布的作用分开, 本文以不需要考虑谱分布影响的单分散气溶胶粒子为研究对象, 对单分散系统下的强吸收内混合气溶胶粒子的光散特性进行等效性分析。

## 1 计算原理和模拟过程

以含有黑碳和水(在 0.55  $\mu\text{m}$  处的折射率分别为 1.75-0.44i 和 1.333-1.96 $\times 10^{-9}$ i)的内混合气溶胶粒子体系为研究对象, 选用分层球模型<sup>[8-9]</sup>, 假设单个粒子中均只含有黑碳和水这两种成分, 并以黑碳作为内核, 其外包裹一层均匀的水壳。内核半径为  $a$ , 而整个粒子的半径为  $b$ , 则内核与整个气溶胶粒子的体积比为  $f$ ,  $f = a^3/b^3$ 。在已知粒子所含成分的折射率和内核的体积比后, 即可使用分层米散射程序(DMIELAY)来计算其光散射量<sup>[9]</sup>, 如消光、散射、吸收效率因子  $Q_{\text{ext}}$ ,  $Q_{\text{sca}}$ ,  $Q_{\text{abs}}$  和散射相函数  $P$  等。然后将上述气溶胶粒子等效为尺度参数  $x = 2\pi b/\lambda$  ( $\lambda$  为光波波长), 折射率  $m = n - ik$  的均匀球粒子。其中, 等效粒子折射率的实部  $n$  和虚部  $k$  均由等步长增加的一组数据组成, 在不同的折射率下, 用米散射理论分别计算其等效光散射量  $Q_{e,\text{ext}}$ ,  $Q_{e,\text{sca}}$ ,  $Q_{e,\text{abs}}$ ,  $P_e$  等。由此得到的各光散射量与用 DMIELAY 程序计算所得参量的相对误差  $\epsilon$  最小时, 对应的折射率就是内混合系统的等效折射率  $m_e = n_e - ik_e$ <sup>[7]</sup>, 相对误差  $\epsilon$  的表达式为

$$\epsilon = \sqrt{\frac{\epsilon_{Q_{\text{ext}}}^2 + \epsilon_P^2}{2}} = \sqrt{\frac{(\frac{Q_{e,\text{ext}} - Q_{\text{ext}}}{Q_{\text{ext}}})^2 + (\frac{P_e - P}{P})^2}{2}} \quad (1)$$

式中:  $\epsilon_{Q_{\text{ext}}}$ ,  $\epsilon_P$  分别表示消光效率因子的相对误差和散射相函数的相对误差。

在等效性分析中, 尺度参数选取从 0.1~100.0 共 31 个等对数间隔点, 折射率实部由 1.10~1.90(步长为

\* 收稿日期: 2006-10-09; 修订日期: 2007-03-28

基金项目: 国家 863 计划项目资助课题

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; honglian@126.com, ybhuang@aiofm.ac.cn.

0.02)共41个数据组成,折射率虚部是由 $1.0 \times 10^{-8} \sim 1.0$ (等对数间隔)共161个数据组成的,并对 $0 \sim 180^\circ$ 的181个散射角计算4个散射相函数。另外,由于米散射的振荡结构,散射相函数在特定的尺度参数下难以进行合适的比较,所以对尺度参数为 $x$ 的散射光学量,对以 $x$ 为中心、 $0.1x$ 范围内的101个点进行了微尺度平均<sup>[10]</sup>。

当内核体积比分别为0.01,0.1,0.5和0.9时,对内混合体的散射、吸收和消光效率因子以及相函数与等效粒子各光散射量的相对误差进行了数值计算和分析,并着重分析了吸收效率因子和散射相函数的等效性。因为前者的精确测量到目前为止仍然是非常困难的,而后者经常被用来反演粒子的折射率和谱分布。

## 2 结果分析

图1分别为内核4种体积比下等效折射率实部 $n_e$ 、虚部 $k_e$ 及吸收和消光效率因子的相对误差与尺度参数的变化关系。

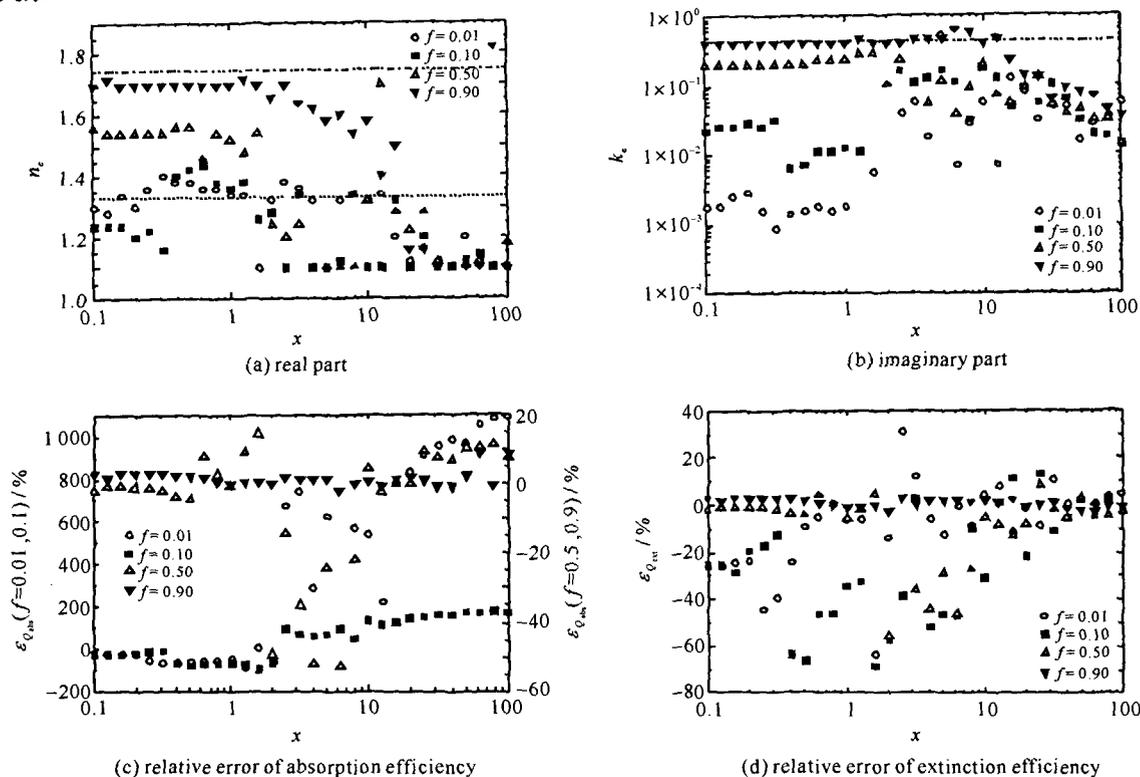


Fig. 1 Equivalent refractive index's real part, imaginary part, relative error of absorption and extinction efficiency vs size parameters at four different volume ratios

图1 4种体积比下等效折射率实部、虚部及吸收效率因子、消光效率因子的相对误差与尺度参数的变化关系

### 2.1 等效折射率的实部

由图1(a)可以看出,当 $f=0.01$ 和 $0.1$ 时,在多数尺度参数下等效折射率的实部 $n_e$ 都小于外壳水的折射率实部1.333,这可能是由于强吸收物质——黑碳在混合体中所占份额太少所致。在 $f=0.5$ 和 $0.9$ 时, $n_e$ 与 $x$ 的关系和弱吸收时的规律相似,即:当 $x < 1$ (瑞利散射区)时, $n_e$ 基本与尺度参数 $x$ 无关,只是随着黑碳所占份额的增加而逐渐增加;当 $1 < x < 20$ (米散射区)时, $n_e$ 起伏较大,其值在 $1.10 \sim 1.70$ 之间变化,无规律可循;而 $x > 20$ (几何光学区)时, $n_e$ 变得相对比较稳定,并且与体积比无关,在各种体积比下大都集中在 $1.10 \sim 1.20$ 之间。

### 2.2 等效折射率的虚部

如图1(b)所示,在各种体积比下,等效折射率的虚部 $k_e$ 与尺度参数 $x$ 的关系具有明显的区域性。当 $x < 1$ 时, $k_e$ 大小比较稳定,基本与 $x$ 无关,而是与体积比 $f$ 密切相关,随黑碳所占份额的增加而逐渐增加;当 $1 < x < 20$ 时, $k_e$ 起伏较大,其变化范围在 $10^{-4} \sim 0.5$ 之间,等效值并不在两种成分折射率虚部的范围之内,甚至比黑碳的折射率虚部(0.44)还大,即有一薄水壳黑碳粒子的吸收效率比纯黑碳粒子的吸收效率还要大,这一结论与文献[11-12]一致;当 $x > 20$ 时,不同体积比下 $k_e$ 大都集中在 $10^{-2}$ 附近。

由图 1(a),(b)可以看出,等效折射率的实部和虚部都并非介于两种成分折射率实部和虚部之间。有时等效折射率实部会比外壳——水的折射率实部还小,但都不大于内核——黑碳的实部;有些等效折射率虚部甚至比内核的折射率虚部还大,但不小于外壳的值。即便是在黑碳所占份额非常小的情况下,如  $f=0.1$  时,等效折射率的虚部也远大于外壳水的折射率虚部  $10^{-9}$ 。所以无论对等效折射率的实部还是虚部而言,都是比较难以确定的。此外,在几何光学区,不同体积比的情况下,内混合气溶胶粒子等效折射率的实部和虚部随尺度参数的增大,都逐渐趋于一致。这是因为在数值计算中仅使用了消光效率因子来计算最小相对误差  $\epsilon$ ,而没有考虑吸收或散射效率因子。消光效率因子随尺度参数的增大逐渐趋向于定值 2,与粒子的成分无关,从而致使在几何光学区,气溶胶粒子等效折射率的实部和虚部都逐渐趋于一致。这说明在大尺度参数下,确定内混合气溶胶系统等效折射率方法的适用性还有待商榷。

### 2.3 吸收效率因子

吸收效率因子与折射率虚部密切相关,其准确测定将直接关系到折射率虚部的确定。图 1(c)左、右纵坐标轴分别为  $f=0.01, 0.1$  和  $f=0.5, 0.9$  时吸收效率因子的相对误差随尺度参数的变化。 $f=0.01, 0.1$  时,当  $x<1$  时,吸收效率因子的相对误差较小;但当  $x>1$  时,吸收效率因子的相对误差随着尺度参数的增大而逐渐增大。而当黑碳所占体积比较大时(如  $f=0.5, 0.9$  时),在瑞利散射和几何光学区域内,吸收效率因子的相对误差都较小;即便在米散射区域内吸收效率因子的相对误差较大,最大的相对误差( $f=0.5$ )也仅为  $-52.63\%$ 。

为了进一步分析吸收效率因子的相对误差与体积比  $f$  的关系,我们计算了其它体积比下吸收效率因子的相对误差,结果发现:当黑碳所占份额较小( $f<0.1$ )时,吸收效率的相对误差一般很大,但随着黑碳所占份额的增加,吸收效率的相对误差将逐渐减小。因此,若内核——黑碳所占份额大于一定程度时,就可以利用吸收效率的分析来确定其等效粒子。

### 2.4 消光效率因子

如图 1(d)所示,在  $f=0.01$  和  $0.1$  时,消光效率的相对误差在个别的尺度参数下会比较大,其最大的误差分别为  $-63.10\%$  和  $-68.41\%$ ,这与外混合气溶胶粒子光散射的等效性分析一致<sup>[7]</sup>。当  $f=0.5$  和  $0.9$  时,消光效率的相对误差均不大并且起伏较小,当  $f=0.9$  时,在图 1(d)中所有的尺度参数下消光效率的相对误差均在  $5\%$  以内;而对  $f=0.5$  时,其相对误差在大多数尺度参数下也在  $10\%$  以内,即使在米散射区,其最大值也仅为  $-46.03\%$ 。因此,在不同体积比下,仅考虑消光特性时,一般不难找到等效的气溶胶粒子。

因此,在瑞利散射区内,当  $f=0.01, 0.1$  时,在大多数尺度参数下,吸收、消光效率因子的等效性都很好,但是当  $x=0.3$  左右,等效折射率的实部和虚部及消光效率因子有一个明显的突变,而对于弱吸收气溶胶粒子,在整个瑞利散射区内,折射指数和消光效率都几乎没有起伏。这说明内混合气溶胶粒子的等效性与其所含成分的关系较为密切,当强吸收成分——黑碳所占份额较少( $f=0.01, 0.1$ )时,即便是在瑞利散射区,个别尺度参数下其等效性也相对较差,从而使消光效率的相对误差也相对较大。

### 2.5 散射相函数

图 2 为 4 种体积比下散射相函数的相对误差  $\epsilon_p$  与尺度参数的变化关系。由图 2 可知,在不同体积比下,当  $x<1.0$  时, $\epsilon_p$  一般都比较小(不大于  $50\%$ ),但是随着  $x$  的增大, $\epsilon_p$  逐渐增大并且起伏加剧。特别是当  $f=0.5$  时,即便作了微尺度平均之后,两个相邻尺度参数间  $\epsilon_p$  的起伏有些依然很大,甚至高达  $400\%$ 。另外,散射相函数不同于消光效率和吸收效率的变化规律,其相对误差并不随着黑碳所占份额的增加而减小,而是在  $f=0.5$  时, $\epsilon_p$  最大,在其它体积比  $f=0.1, 0.01, 0.9$  时, $\epsilon_p$  相对较小。

在光散射技术中,一些散射方向上 4 个散射相函数( $M_1, M_2, S_{21}, D_{21}$ )常常被用来反演气溶胶粒子的谱分布和折射率,特别是参量  $D_{21}$  由于其对粒子的谱分布和折射率相当敏感,应用更加广泛<sup>[13-14]</sup>。

图 3 给出了  $f=0.1, x=0.2, 2.0, 20$  时,单个散射相函数  $D_{21}$  的相对误差随散射角的变化关系。由图 3 可以看出, $D_{21}$  的相对误差随着尺度参数的增加而逐渐增大,并且起伏也随之加剧。如当  $x=0.2$  时, $D_{21}$  的相对误差随散射角的变化几乎没有起伏;当  $x=2.0$  时,也仅是在  $120^\circ$  散射角附近有一个比较大的起伏;但是,当  $x=20$  时,在大多数散射角下, $D_{21}$  的相对误差都在  $100\%$  以上,并且起伏较大。相对而言,在后向散射角  $130^\circ \sim 170^\circ$  之间  $D_{21}$  的相对误差的变化比较稳定。其它三个散射相函数  $M_1, M_2, S_{21}$  的相对误差随散射角的变化关系与此类似,即尺度参数较大时,其相对误差的变化也随之逐渐加剧,仅在某些角度( $140^\circ \sim 160^\circ$ )下比较稳定。

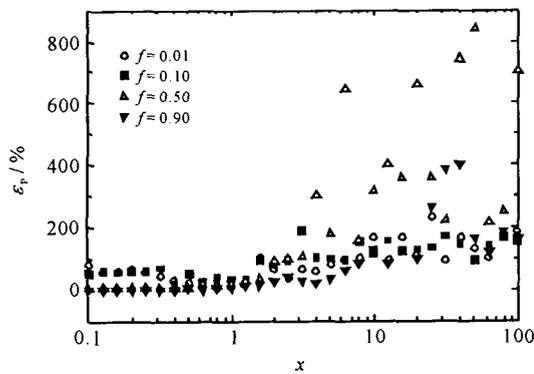


Fig. 2 Relative error of phase function  $P$  vs size parameters at four different volume ratios

图 2 不同体积比下总相函数相对误差与尺度参数的变化关系

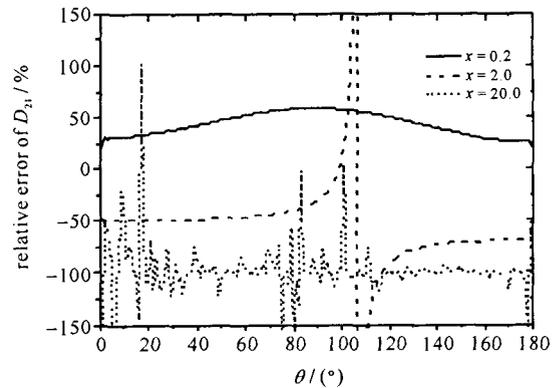


Fig. 3 Relative error of scattering matrix element  $D_{21}$

for three size parameters 0.2, 2.0, 20 at  $f=0.1$

图 3 当  $f=0.1$ ,  $x$  分别为 0.2, 2.0 和 20 时, 单个散射相函数的相对误差随散射角的变化

因此,用散射相函数反演气溶胶粒子的折射率或谱分布时,选择恰当的散射角是十分重要的。

### 3 结 论

本文以黑碳和水这两种成分组成的内混合单分散气溶胶粒子为例,根据其各效率因子和散射相函数,探讨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,并结合外混合强吸收气溶胶粒子和内混合弱吸收气溶胶粒子的等效性研究进行了对比分析,结果表明:对强吸收气溶胶粒子而言,在瑞利散射区( $x < 1$ ),  $f=0.01, 0.1$  时,虽然在个别尺度参数下消光效率的等效性较差,但就整体而言,在瑞利散射区和几何光学区( $x > 20$ )内,4 种内核体积比下消光效率在大多数尺度参数下等效性都很好;而在米散射区( $1 < x < 20$ )内相对较差。当强吸收物质所占体积比较大时(如  $f=0.5, 0.9$  时),吸收效率因子、消光效率因子的等效性都较好。因此,对一些激光工程应用而言,若主要关注大气气溶胶粒子的散射和吸收效应,在强吸收物质所占份额不太少的情况下,一般不难找到粒子的等效折射率。

除瑞利散射区外,散射相函数的相对误差都比吸收和散射效率因子大得多,并且随着尺度参数的增大而增大,其等效性一般很差。对单个的散射相函数,当尺度参数较大时,其相对误差起伏尤为剧烈,仅在个别散射角度上比较稳定,因此,在光散射技术中,只有在某些散射方向上进行计算,才能保证反演结果的可靠性。

另外,为了区分折射率和谱分布对光散射特性的影响,文中以不需考虑谱分布影响的单分散气溶胶粒子为研究对象,探讨了等效折射率的适用性和可靠性。但是,实际的大气气溶胶多为多分散系统,粒子的谱分布对散射特性的影响也是不可忽视的。因此,对多分散气溶胶系统我们也需要进行深入地分析,以准确了解实际大气气溶胶粒子的光散射特性。

致 谢 本文在模拟计算中使用了 Owen B. Toon 编写的分层米散射程序,在此特向他表示谢意。

### 参考文献:

[1] 饶瑞中. 激光大气传输湍流与热晕综合效应[J]. 红外与激光工程, 2006, 35(2):130-134. (Rao R Z. Combined effect of turbulence and thermal blooming of laser propagation in atmosphere. *Infrared and Laser Engineering*, 2006, 35(2):130-134)

[2] 黄印博,王英俭. 激光传输大气参量测量精度要求的数值分析[J]. 强激光与粒子束, 2006, 18(5):720-724. (Huang Y B, Wang Y J. Effect of the measurement errors of atmospheric parameters on the laser propagation effects. *High Power Laser and Particle Beams*, 2006, 18(5):720-724)

[3] Levoni C, Cervino M, Guzzi R, et al. Atmospheric aerosol optical properties; a database of radiative characteristics for different components and classes[J]. *Appl Opt*, 1997, 36(30):8031-8041.

[4] 胡欢陵,许军,黄正. 中国东部若干地区大气气溶胶虚折射指数特征[J]. 大气科学, 1991, 15(3):18-23. (Hu H L, Xu J, Huang Z. Characteristics of imaginary part of aerosol refractive index in some places of eastern China. *Chinese Journal of Atmospheric Sciences*, 1991, 15(3):18-23)

[5] Buseck P R, Pósfai M. Airborne minerals and related aerosol particles: Effects on climate and the environment[J]. *Proc Natl Acad Sci USA*, 1999, 96(7):3372-379.

[6] Hasegawa S, Ohta S. Some measurements of the mixing state of soot-containing particles at urban and non-urban sites[J]. *Atmospheric Environment*, 2002, 36(24):3899-3908.

- [7] 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. (Rao R Z. Equivalence of light scattering by external mixture of atmospheric aerosol particles. *Acta Optica Sinica*, 1996, 16(8):1099-1108)
- [8] Aden A L, Kerker M. Scattering of electromagnetic waves from two concentric spheres[J]. *J Appl Phys*, 1951, 22(10):1242-1246.
- [9] Toon O B, Ackerman T P. Algorithms for the calculation of scattering by stratified spheres[J]. *Appl Opt*, 1981, 20(20):3657-3660.
- [10] Wiscombe W J, Mugnai A. Scattering from nonspherical Chebyshev particles. 2: Means of angular scattering patterns[J]. *Appl Opt*, 1988, 27(12):2405-2421.
- [11] Kattawar G W, Hood D A. Electromagnetic scattering from a spherical polydispersion of coated spheres[J]. *Appl Opt*, 1976, 15(8):1996-1999.
- [12] Fenn R W, Oser H. Scattering properties of concentric soot-water spheres for visible and infrared light[J]. *Appl Opt*, 1965, 4(11):1504-1509.
- [13] 赵凤生. 通过测量散射光的 Stokes 参量同时反演气溶胶折射指数和谐分布的一种方法[D]. 合肥: 中国科学院安徽光学精密机械研究所, 1989. (Zhao F S. Determination of the complex refractive index and the size distribution of atmospheric aerosols from measurements of scattered light. Hefei: Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, 1989)
- [14] Barakat R, Buder T E. Remote sensing of crosswind profiles using the correlation slope method[J]. *J Opt Soc Am*, 1979, 69(11):1604-1608.

## Equivalence of light scattering by strong absorbing aerosol particles in internal mixing state

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

(Center for Atmospheric Optics, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics,  
Chinese Academy of Sciences, P. O. Box 1125, Hefei 230031, China)

**Abstract:** For a monodispersion of water coated carbon particles in internal mixing state, the validity of equivalent refractive index for describing the internal mixture of aerosol particles with different complex refractive indexes is analyzed by their scattering efficiency and phase function. The equivalence of extinction efficiency is good in Rayleigh scattering's range and geometrical optics' range at different volume ratios of the carbon particle to the mixture, but the equivalence is not good in the range of Mie scattering. When the volume ratio of the strong absorbing material, carbon particle, is greater than 0.3, the equivalences of absorption efficiency and extinction efficiency are good. However, the equivalence of phase function is poor at different mixture ratios besides the range of Rayleigh scattering. Therefore, it is easy to obtain the particle's equivalent refractive index according to the scattering and absorption properties of aerosol particles, while it is still difficult to get the reliable equivalent refractive index by the phase function in light scattering techniques.

**Key words:** Atmospheric aerosol; Light scattering; Internal mixing; Equivalent refractive index; Equivalence