



气溶胶粒度谱不同观测方法的比较*

秦 瑜 毛 节 泰

(北京大学地球物理系)

一、引 言

大气中悬浮粒子的大小谱分布是大气气溶胶物理特性的重要参量,无论是大气污染、大气光学传输或是云和降水物理的研究都从各自需要出发对其进行研究。

气溶胶粒度谱的测量大致可分为三类方法:^[1]

1. 直接测量。利用惯性沉降或热、电沉降法将粒子沉降在取样片上,或用一定孔径的滤膜过滤空气,使粒子沉积在膜片上,然后用各种方法进行读数或计测。膜片上的粒子可用光学或电子显微镜逐个测量,最后得到粒子的谱分布。热、电沉降多用于取小尺度的粒子。惯性沉降法取得的粒子尺度也有一定的范围。如多级撞击式取样器,各级粒子尺度有一些重迭。滤膜孔径大小不同,流速不同,粒子取样尺度的下限也不同。

2. 个别粒子的光、电特性测量。如用光电粒子计数器,对通过光束的单个粒子用光电系统和相应的电子线路对粒子散射光产生的光脉冲进行逐个甄别计数,从而实现自动检测粒子的谱分布。为了得到正确的谱分布,对光路的均匀性和电路的稳定性提出了很高的要求,但仍有粒子因出现在光路边缘,信号偏小;从而使判断尺度偏小,这就是边缘效应。当粒子浓度过高,在光束中同时出现二个以上粒子,使小粒径的粒子浓度减低而大粒径的粒子浓度增大,这就是符合误差。

3. 粒子总体光学特征参数测量,如光学

厚度,消光系数,散射方向性函数等。用这些特征量随光波长或角度变化的多个量值测量反演粒子谱分布。这样的仪器有积分散射度计(nephelometer),激光雷达,望远光度计等。这些光学参数的测量不难实现自动检测,但利用光学参数反演粒子谱时对测量误差十分敏感,反演结果未必是唯一的,需要用优化方法计算得到近似解。

这三种方法目前都有应用,但尚很少见到同时应用三种方法测量结果的比较。为了检验这些方法的适用范围,我们在1984年春于北京进行了对比测量,得到了一些有意义的结果。

二、测 量 方 法

1. 滤膜法 我们用稍作改装的KB-40型空气采样泵,采用直径25mm,孔径 $0.4\mu\text{m}$ 的聚碳酸酯滤膜(Nuclepore)取样,抽气速度为 $1\text{m}^3/\text{h}$,采样时间为0.5到2小时。采样后将膜片制成样片,用S4-10型扫描电子显微镜和光学显微镜照相和读数。Nuclepore滤膜属静电型塑料膜,孔呈圆形,大小均匀。在所用的条件下可取到直径 $0.1\mu\text{m}$ 的粒子。直径 $0.3\mu\text{m}$ 以上的粒子可按100%取样考虑。我们将这种方法的结果作为绝对法,粒子尺度取直径在 $0.2\mu\text{m}$ 以上。

2. 光电粒子计数器方法 采用苏州净化设备厂生产的Y09-4型尘埃粒子计数器。仪

* 参加观测和资料整理的还有蔡旭晖、黎洁、邵选民。

器共分六档 (0.3—0.5—1.0—2.0—5.0—10.0 和 $>10.0\mu\text{m}$), 可轮流显示各档粒子的浓度。每次采样时间为 1min, 采样体积为 1l。工厂给出仪器可用的最高计数浓度为 $3.5 \times 10^4/l$, 但实际大气中的浓度常常要超过此值, 常在 $5.0 \times 10^4/l$ 左右, 因此有比较明显的符合误差。粒子计数器的另一个特点是采样体积小 (1l), 为了和其它方法比较, 我们采用了多次读数平均 (7 次)。

3. 望远光度计方法 采用自制的多波段望远光度计^[2], 对不同距离目标物作能见度测量, 然后反演粒子谱。仪器有一个 $f = 300\text{mm}$ 的望远镜, 后接一个由马达驱动的转轮, 上置八片干涉滤光片, 再接光电检测和记录设备。转轮每分钟转一周, 轮流测量八个波段的光度。在反演气溶胶粒度谱时我们仅用了 6 个波长: 0.4048, 0.5000, 0.5940, 0.7630, 0.8815 和 $1.0600\mu\text{m}$ 。能见度测量的目标物采用同方向上两个反射率相似的砖墙, 离测点距离 $L_1 = 730\text{m}$, $L_2 = 30\text{m}$ 。气柱中粒子的消光系数 $\beta_{ex}(\lambda_j)$ 与目标物亮度 B_1, B_2 和天空亮度 B_0 的关系可写作

$$\beta_{ex}(\lambda_j) = \frac{1}{L_1 - L_2} \ln \left(\frac{B_1 - B_0}{B_2 - B_0} \right)$$

又因

$$\beta_{ex}(\lambda_j) = \int_0^{\infty} \pi r^2 Q_{ex}(m, \lambda_j, r) n(r) dr$$

其中 r 为粒子半径, m 为粒子折射率, λ_j 为光波波长, Q_{ex} 为单个粒子的消光效率。 $n(r)$ 为粒子数密度随尺度分布谱。反演粒度谱时采用随机最小二乘法。^[3] 由散射理论得知, 粒子最大消光效率出现于大约和波长相当的尺度上, 因而我们反演谱的上限也取直径 $3.0\mu\text{m}$ 。

三、测量结果

1984 年 4 月 17 日至 5 月 3 日共作了 9 天观测, 每天在下午二时进行。在观测日中包括了一般晴天, 扬尘天, 尘暴和阴天。能见

度为 3—15km。

图 1 给出了三种取样方法得到的粒度谱分布的典型情况。可以看出, 光电计数器法 (光电法) 所得的谱大小尺度粒子浓度相差最小, 即曲线最平坦, 滤膜法居中, 望远光度计方法 (光度法) 大小粒子浓度差最大。在半径 $0.2—1.0\mu\text{m}$ 区间, 三种方法符合较好, 而在二端偏离较大。由边缘效应和符合效应使光电法所测的粒子浓度随尺度分布趋于平均化, 从这里可以得到证实。特别在两端, 小粒子浓度因符合计数而减少, 大粒子浓度有所增加。

从按滤膜法测量的 11 个样本来看, 粒度谱更接近于两个对数正态分布的迭加, 这和 Whitby^[4] 的结果一致。我们取

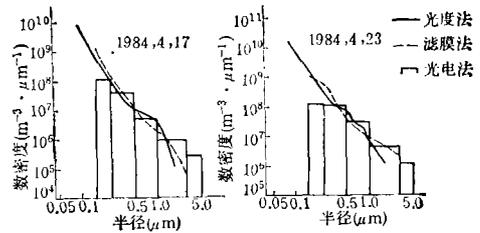


图 1 用三种方法同时测得的气溶胶粒度谱

$$n(r)dr = \frac{1}{\sqrt{2\pi r}} \left\{ \frac{1}{\sigma_1} \exp \left[-\frac{(\ln r/r_1)^2}{2\sigma_1^2} \right] + \frac{k}{\sigma_2} \exp \left[-\frac{(\ln r/r_2)^2}{2\sigma_2^2} \right] \right\}$$

其中 r_1, r_2 为大小两个几何平均半径, σ_1, σ_2 为方差, k 为第二峰值对第一峰值的浓度比。用正交设计法对上述五个参数进行拟合, 最后拟合误差一般在 20% 以内, 最小的仅 11%。

为了进一步看出三种方法测量之间的离散情况, 分别计算了三种方法两两对比的逐日和不同尺度的平均离差, 定义

$$\sigma_i^{AB} = \sqrt{\frac{\sum_{j=1}^{k_i} [\lg n_i^A(r_j) - \lg n_i^B(r_j)]^2}{k_i}}$$

$$\sigma_i^{AB} = \sqrt{\frac{\sum_{j=1}^{k_2} [\lg n_i^A(r_j) - \lg n_i^B(r_j)]^2}{k_2}}$$

i, j 分别代表不同的取样日期和半径分档, A, B 分别代表不同的取样方法, k_1, k_2 分别代表观测的日数和半径分档数. σ_i^{AB} 为固定某一半径 r_j , 考虑在各取样日, A、B 两种方

法所得的粒子浓度比 $n_i^A(r_j)/n_i^B(r_j)$ 对数的方差, 而 σ_i^{AB} 则是指第 i 天用两种不同方法所测各种粒子浓度比 $n_i^A(r_j)/n_i^B(r_j)$ 对数的方差. 上面二种离差均是浓度比对数的离差, 因此当 $\sigma = 0.3$, 则浓度比为 2, $\sigma = 1$, 浓度差为一个量级. 现将结果列于表 1.

从表 1 可以看出, 九天江' 中以光电法

表 1 逐日平均离差 σ_i^{AB}

日期	光电-滤膜	光电-光度	光度-滤膜
4.17	0.607	0.578	0.451
4.18	0.258	0.586	0.621
4.19	0.182	0.650	0.650
4.23	0.500	0.971	0.670
4.24	0.658	0.644	0.861
4.26	0.440	0.907	0.587
4.29	0.290	0.668	0.580
4.30	0.329	0.729	0.798
5.3	0.401	1.219	1.064

表 2 尺度平均离差 σ_r^{AB}

$r(\mu\text{m})$	光电-滤膜	光电-光度	光度-滤膜
0.2	0.344	0.698	0.453
0.35	0.214	0.358	0.400
0.7	0.435	0.479	0.619
1.6	0.372	1.309	1.148
3.5	0.811		

和滤膜法之间平均离差最小, 为 0.182—0.658, 相当于浓度比 1.52—4.55 倍. 而光电法和光度法离差最大, 为 0.578—1.219, 相当于浓度比 3.78—13.46 倍, 从表 2 可以看出以 $r = 0.35\mu\text{m}$ 为最好, 其中光电法与滤膜法离差仅 0.214, 浓度比为 1.64 倍. 光电法与光度法离差在 $1.6\mu\text{m}$ 处最大, 为 1.309, 浓度比为 20.37 倍. 从趋势看, 光电法与滤膜法半径在 $0.20—1.6\mu\text{m}$ 间隔内离差很接近. 由比较结果看, 光电法在 $0.2—1.6\mu\text{m}$ 半径区间, 光度法在 $0.2—1.0\mu\text{m}$ 区间内所得的粒子浓度分布还是和实际结果基本相符的.

四、 讨 论

1. 使用光电粒子计数器和望远光度计作

粒度谱测量, 可以实现自动记录, 得到大容量的资料, 有利于环境监测. 在 $0.2—1.0\mu\text{m}$ 半径范围内, 光电法和光度法都可以考虑采用.

2. 光电法在大、小粒子两端会造成较大的误差, 整个谱分布比实际平坦, 有平均化倾向. 即使粒子尺度的档分得再细, 此缺点也难以避免. 如果为计数器配置适当的稀释器或适当降低抽气速度, 控制粒子通过光场时的密度, 这一缺点可望有所改善.

3. 望远光度计法在测量光学参数的同时得到粒度谱分布, 方法简便, 一举二得. 可是, 受粒子光学效应与波长有关的影响, 只适于测量 $0.1—1.0\mu\text{m}$ 尺度的粒度谱. 如对粒度谱反演的初值加以改进, 可使小粒子端拟合得更好.

表 3 非球形粒子订正因子 K

形 状	K	说 明
球	1	
球 壳	$1.44(\Delta R/R)^{1/3}$	R 为球半径, ΔR 为球壳厚, $\Delta R/R \ll 1$
半 球 盖	$1.23(\Delta R/R)^{1/3}$	R 为球半径, ΔR 为半球盖厚度, $\Delta R/R \ll 1$, 下落方向为赤道面朝下
正 方 体	0.921	
椭 球	$5X^{1/3}/(4+X)$	旋转轴 C 平行于地面, $X=C/R > 1$, R 为旋转半径
	$2.5X^{1/3}/(1.5+X)$	$X=C/R < 1$, 旋转轴 C 垂直于地面
针 状 体	$1.5X^{-2/3}(\ln 2X - 0.5)$	旋转轴平行于地面, $X=C/R \gg 1$
	$1.5X^{-2/3}(\ln 2X + 0.5)$	旋转轴垂直于地面, $X=C/R \gg 1$
盘 状	$0.375X^{1/3}f_1(X)^*$	旋转轴平行于地面, $X=C/R \ll 1$
	$0.375X^{1/3}f_2(X)^{**}$	旋转轴垂直于地面, $X=C/R \ll 1$
柱 状 体	$1.72X^{-2/3}(\ln 2X - 0.72)$	圆柱高为 h, 半径为 R, 旋转轴平行于地面, $X=h/2R$
	$0.86X^{-2/3}(\ln 2X + 0.5)$	旋转轴垂直于地面

$$* f_1(X) = 2X/(1-X^2) + [2(1-2X^2)/(1-X^2)^{3/2}] \tan^{-1}[(1-X^2)^{1/2}/X]$$

$$** f_2(X) = -X/(1-X^2) - [(2X^2-3)/(1-X^2)^{3/2}] \sin^{-1}(1-X^2)^{1/2}$$

4. 滤膜法作为三种方法中绝对法使用,也有一定的缺点。在大粒子端,仅有几个,十几个 μm 尺度的粒子,空间浓度过小,读数的代表性难以得到保证。

5. 上面所讨论的三种方法均属光学粒径的测定,即测定粒子的几何平均(或等效)半径,而较少涉及粒子的其它物理特性,如质量密度、形状和表面结构等。几何平均半径在大气光学、能见度等领域中有广泛的应用。在环境污染监测工作中对粒子的沉降、清除等动力学过程有较大的兴趣。这时粒子运动的情况不仅取决于其大小,而且和其形状、密度、表面结构等多种因子有关。因此近年来常用空气动力学当量半径来描述粒子的大小。所谓空气动力学当量半径是考虑二个粒子同时在空气中下落,其中一个为球形粒子,密度为 $1\text{g}/\text{cm}^3$, 而另一个为任意形状和密度的粒子,当这两个粒子下落速度相同时,前一个球状粒子的半径即为后一个粒子的空气动力学当量半径。对密度不是 $1\text{g}/\text{cm}^3$ 的球状粒子,其空气动力学当量半径为

$$r_a = r_p \sqrt{\rho_p}$$

其中 r_p 为球状粒子的实际半径, ρ_p 为球状粒子的密度, r_a 为其空气动力学当量半径。对非球状的粒子,则需考虑复杂的形状订正因子。Lerman^[5] (1979) 曾讨论过几种形状粒子的订正因子 K, 其定义为

$$K = R_e^2/R^2$$

其中 R_e 为非球形粒子的等效半径 ($R_e = (3V_p/4\pi)^{1/3}$, V_p 为粒子体积), R 为 Stokes 沉降速度与非球形粒子相同的球状粒子的半径。表 3 列出 Lerman 的一些结果。利用这些订正因子,就可以在几何平均半径和空气动力学当量半径间建立起适当的联系,以便把测量结果推广使用。

参 考 文 献

- [1] T. 艾伦著, 喇华璞、童三多、施娟英译, 颗粒大小测定, 62 页, 中国建筑工业出版社第一版, 北京, 1984 年。
- [2] 毛节泰、李建国, 大气科学, 8(2), 170(1984)。
- [3] Heintzenberg J., et al., *Appl. Opt.*, 20(8), 1308 (1981)。
- [4] Whitby K. T., *Atmos. Environ.*, 12(1), 135 (1978)。
- [5] Lerman A., *Geochemical Processes: Water and Sediment Environments*, p. 262, Wiley, New York, 1979.