

Соотношения между оптическими и микрофизическими параметрами конденсационной изменчивости приземного аэрозоля

С.А. Терпугова, М.В. Панченко, М.А. Свириденков¹, Т.А. Докукина*

*Институт оптики атмосферы им. В.Е. Зуева СО РАН
634021, г. Томск, пл. Академика Зуева, 1*

*¹Институт физики атмосферы им. А.М. Обухова РАН
119017, г. Москва, Пыжевский пер., 3*

Поступила в редакцию 23.01.2009 г.

Анализируются результаты измерений зависимостей оптических характеристик аэрозоля от относительной влажности воздуха в ходе искусственных конденсационных процессов. Рассчитаны зависимости факторов конденсационного роста от размера сухих частиц аэрозоля, и выполнен их статистический анализ. Получено регрессионное соотношение между измеряемым оптическим параметром конденсационной изменчивости и параметром Хенела для объемной концентрации. Показана возможность оценки параметра Хенела по значениям показателя преломления сухих и увлажненных частиц.

Ключевые слова: аэрозоль, светорассеяние, микроструктура, конденсационная активность, обратная задача.

Введение

Трансформация частиц атмосферного аэрозоля в поле переменной относительной влажности [1] изменяет их микрофизические и оптические свойства и тем самым радиационно-климатическое воздействие [2, 3]. Кроме прямых радиационных эффектов, гигроскопичность атмосферного аэрозоля определяет и способность частиц служить ядрами конденсации облачных капель и вследствие этого косвенно влияет на радиационный баланс системы «земля–атмосфера» [2–4]. Исследованию связей оптических характеристик аэрозоля с относительной влажностью воздуха как в природных условиях, так и при искусственном увлажнении посвящено большое количество работ [1, 5]. Для описания конденсационной активности частиц разных размеров вводится фактор роста:

$$GF = r(RH_2)/r(RH_1), \quad (1)$$

где RH – относительная влажность воздуха; r – радиус частиц.

Обычно в качестве RH_1 и RH_2 используется влажность 30 и 80% соответственно. В настоящее время при изучении частиц нанометрового диапазона размеров для оценки GF широко применяются тандемы дифференциальных анализаторов подвижности

(TDMA) [6, 7]. Для исследования более крупных частиц, как правило, анализируются пробы, собранные с помощью импакторов [8], и проводятся измерения с применением фотоэлектрических счетчиков частиц аэрозоля [9, 10].

С 1998 г. в Институте оптики атмосферы СО РАН ведется мониторинг конденсационной активности приземного аэрозоля с помощью нефелометра ФАН по измерениям коэффициента направленного светорассеяния D под углом 45° [11–13]. Начиная с 2004 г. регулярно измеряются 7 оптических параметров аэрозоля (рассеяние под углом 45° на трех длинах волн – 410, 510, 630 нм и поляризационные составляющие коэффициента направленного светорассеяния под углом 90° на двух – 450 и 520 нм). Такой набор информации дает возможность решить обратную задачу светорассеяния и попытаться оценить как интегральные микрофизические параметры конденсационной изменчивости, так и факторы роста частиц различных размеров [12]. Прежде чем приступить к массовой обработке результатов многолетних наблюдений, нами на основе данных измерений, выполненных в 2004–2005 гг., был проведен анализ соотношений между различными оптическими и микрофизическими характеристиками конденсационного роста аэрозоля.

Методика определения параметров конденсационной активности

Измерения зависимостей оптических характеристик аэрозоля от относительной влажности воздуха

* Светлана Александровна Терпугова (swet@iao.ru); Михаил Васильевич Панченко (pmv@iao.ru); Михаил Алексеевич Свириденков (misv@mail.ru); Татьяна Александровна Докукина.

(гигрограмм) выполнялись с помощью аппаратного комплекса на основе серийного нефелометра-поляриметра ФАН. Забираемый из атмосферы воздух сначала искусственно осушался до относительной влажности $RH \sim 20\text{--}30\%$, а затем увлажнялся до $RH \sim 90\%$.

В 2004 г. измерения проводились не реже одного раза в сутки последовательно на трех длинах волн. Таким образом, за один цикл измерений, который длился около 40 мин, мы получали 7 гигрограмм. Стабильность ситуации контролировалась дополнительным нефелометром, непрерывно регистрировавшим коэффициент направленного светорассеяния под углом 45° на длине волны 510 нм. Естественно, при такой длительности записи серии гигрограмм было не так много ситуаций, в которых аэрозольные параметры оставались неизменными в течение цикла.

В 2005 г. методика измерений и программа регистрации данных были модернизированы. Процесс увлажнения останавливался по достижении 90% (иногда, дополнительно, и 70%), и регистрировались 7 параметров рассеянного излучения. При такой схеме время одного цикла сократилось до ~ 15 мин, что обеспечило большее число реализаций, полученных в стабильных условиях.

Обратная задача решалась итерационным методом. В силу структуры входной информации наиболее надежно распределение частиц по размерам восстанавливается в диапазоне радиусов $0,05\text{--}0,6$ мкм [11]. Использовалось приближение непоглощающего аэрозоля. Действительная часть показателя преломления определялась по критерию гладкости спектра размеров. Подробнее решение обратной задачи по данным измерений на нефелометре-поляриметре ФАН описано в [11].

В принятой нами схеме восстановления те реализации, для которых среднеквадратическая оптическая невязка для сухого или увлажненного аэрозоля превышала 7% , из дальнейшего рассмотрения исключались. Для анализа были отобраны 74 набора гигрограмм, полученных в 2004, и 265 — в 2005 г.

Зависимость фактора конденсационного роста от размера частиц оценивалась из сопоставления интегральных счетных распределений

$$N(r_j) = \int_{r_j}^{\infty} \frac{dN}{dr} dr. \quad (2)$$

Обозначим распределения, соответствующие сухому и увлажненному аэрозолю, как N_d и N_w . Если $N_d(r_1) = N_w(r_2)$, то фактор роста для частиц с радиусом r_1 равняется r_2/r_1 . Этот метод был предложен А.Г. Лактионовым [9] для интерпретации измерений конденсационной активности с использованием фотоэлектрических счетчиков. Его применение возможно при двух допущениях.

1. Фактор роста является функцией размера, а все частицы одного размера имеют близкую конденсационную активность.

2. Если $r_{1d} < r_{2d}$, то $r_{1w} < r_{2w}$.

Первое допущение может заведомо не выполняться в ситуациях с несколькими источниками аэрозоля различной природы, что подтверждается в ряде случаев и данными натуральных измерений [14]. Однако в значительном числе атмосферных ситуаций распределение частиц, полученных при увлажнении квазимонодисперсного аэрозоля, является одномодовым [14], и его можно охарактеризовать средним фактором роста.

Практическая реализация подхода Лактионова затрудняется тем, что распределение частиц по размерам восстанавливается для дискретного набора радиусов. Поэтому для определения фактора роста нами была использована интерполяция обратной функции $r_w(N)$ кубическими сплайнами в точках $N_i = N_d(r_i)$. Отношение r_{wi} к r_{di} принималось за фактор роста для сухой частицы с радиусом r_d . Факторы роста рассчитывались в диапазоне $0,11\text{--}0,47$ мкм. Выбор правой границы обусловлен тем, что для больших радиусов в некоторых случаях частицы вырастали до размеров, выходящих за пределы диапазона, в котором решалась обратная задача. Учитывая, что в искусственных конденсационных процессах не всегда удается провести измерения строго при одних и те же значениях начальной и конечной влажности, вместо фактора роста удобно анализировать параметр Хенела η , соответствующий эмпирической формуле [15]:

$$r(RH) = r(RH = 0)(1 - RH)^{-\eta}, \quad (3)$$

откуда

$$\eta = -\frac{\ln(r(RH)/r(RH = 0))}{\ln(1 - RH)} = -\frac{\ln GF}{\ln(1 - RH)}. \quad (4)$$

Применительно к измерениям при двух значениях относительной влажности RH_1 и RH_2 получаем следующую формулу для определения параметра Хенела:

$$\eta = -\frac{\ln GF}{\ln((1 - RH_2)/(1 - RH_1))}. \quad (5)$$

Статистические свойства зависимостей параметра конденсационной активности от размера частиц

Среднемесячные значения $\eta(r)$ по данным измерений в 2005 г. приведены на рис. 1.

Для всех месяцев, кроме мая и июля, наблюдается максимум $\eta(r)$ в районе $0,15\text{--}0,2$ мкм. Март выделяется из всего годового ансамбля повышенными значениями конденсационной активности аэрозоля, что соответствует результатам многолетних измерений зависимостей коэффициентов направленного светорассеяния от относительной влажности воздуха [13]. В мае и в июле наибольшие значения фактора роста отмечаются для частиц размерами порядка $0,3$ мкм.

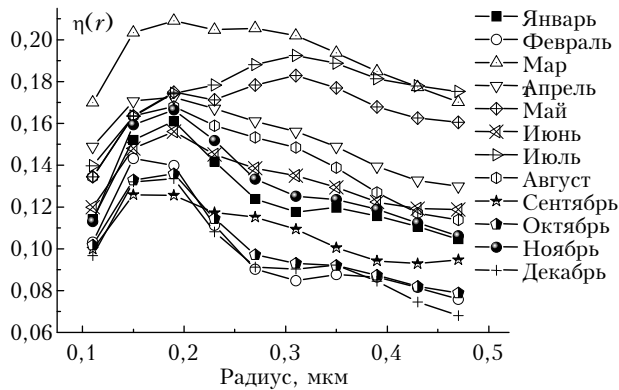


Рис. 1. Усредненные за месяц зависимости $\eta(r)$

Для более детального рассмотрения закономерностей изменчивости параметра Хенела были рассчитаны статистические характеристики по методу главных компонент для двух годичных массивов. Напомним основные свойства главных компонент (эмпирических ортогональных функций) [16]. Собственные векторы ковариационной матрицы образуют ортогональный базис, разложение по которому обеспечивает наилучшую среднеквадратическую аппроксимацию реализации случайного вектора при фиксированном числе членов разложения, а собственные числа ковариационной матрицы равны дисперсиям соответствующих коэффициентов разложения случайного вектора по оптимальному базису. Коэффициенты разложения некоррелированы между собой и имеют нулевое среднее.

Соотношение между компонентами собственных векторов с первыми номерами указывает на основные тенденции изменчивости исследуемого случайного вектора. «Скорость» убывания собственных чисел ковариационной матрицы и отношение их нарастающей суммы к следу матрицы позволяют определить количество параметров, достаточное для оптимального восстановления эмпирических функций, или их дискретных аналогов, а также оценить среднюю ошибку аппроксимации.

Изменчивость связи между параметрами конденсационной активности частиц разных радиусов наиболее наглядно иллюстрирует корреляционная матрица $\eta(r)$ (рис. 2). Видно, что корреляция между параметрами Хенела для любой пары радиусов превышает 0,5. Вместе с тем темп уменьшения коэффициентов корреляции падает с увеличением радиуса частиц. В области 0,31–0,47 мкм в 2004 г. и 0,27–0,47 мкм в 2005 г. значения коэффициентов корреляции превосходят 0,9. Анализируемые массивы зависимостей $\eta(r)$ можно считать в первом приближении однопараметрическими – первое собственное число ковариационной матрицы соответствует 84% полной дисперсии по данным 2004 г. и 89% по данным 2005 г., а второе – 11 и 7% соответственно. Значения первого и второго собственных векторов, а также средние по годичным ансамблям значения $\eta(r)$ приведены на рис. 3. В связи с тем что собственные векторы являются дискретными аналогами собственных функций [16], значения компонент собственных векторов соединены отрезками прямых.

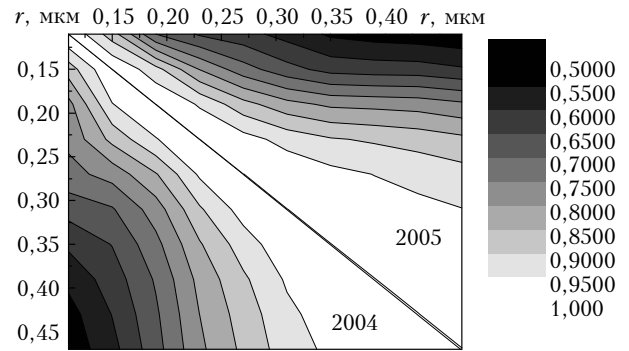


Рис. 2. Корреляционные матрицы $\eta(r)$

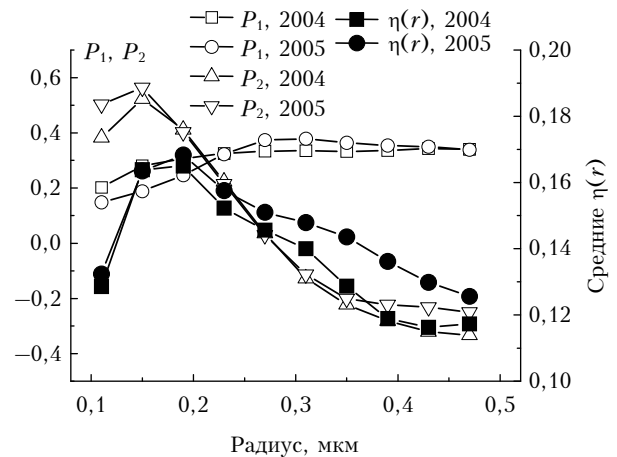


Рис. 3. Первый P_1 и второй P_2 векторы ковариационных матриц $\eta(r)$, а также средние $\eta(r)$ для двух годичных ансамблей

Как следует из рис. 3, и в 2004, и в 2005 г. максимальной конденсационной активностью обладают в среднем частицы радиусами 0,15–0,2 мкм. В то же время поведение компонент первых собственных векторов в зависимости от размера сухой частицы свидетельствует о том, что с ростом конденсационной активности функции $\eta(r)$ становятся более пологими. Поведение же компонент вторых векторов в некотором роде подобно типичным зависимостям $\eta(r)$: максимум на 0,15 мкм и убывание при больших значениях радиуса сухой частицы. Отметим, что как системы собственных векторов, так и средние значения $\eta(r)$ близки для двух годичных ансамблей.

Результаты статистического анализа зависимостей параметра Хенела от размера частиц не противоречат данным работы [17], где аналогично анализировался ансамбль факторов роста, полученный при измерении оптических характеристик аэрозоля при его искусственном осушении путем нагрева воздуха, проходящего через рабочий объем спектроляриметра. Тенденция уменьшения фактора роста с увеличением размера частиц, выявленная при анализе нефелометрических данных в Томске, соответствует результатам, полученным другими методами и в других регионах [8, 9].

Связи между оптическими и микрофизическими характеристиками конденсационной активности

Анализируемые в данной статье параметры конденсационной активности для коэффициента направленного светорассеяния γ , объемной концентрации ϵ и эффективного радиуса частиц ϵ_r рассчитывались по формуле, аналогичной (3), с заменой радиуса частиц на соответствующий оптический или микрофизический параметр, а показатель степени η — на γ , ϵ или ϵ_r .

При мониторинге конденсационной изменчивости аэрозоля по одному оптическому параметру — коэффициенту направленного светорассеяния под углом 45° на длине волны 510 нм предполагается, что измеряемый параметр пропорционален объемной концентрации частиц, а рассчитанное значение оптического параметра конденсационной активности γ пропорционально «объемному» параметру Хенела. Однако в силу того что при конденсационном процессе происходят как перестройка распределения частиц по размерам, так и изменение показателя преломления, коэффициенты пропорциональности различны для сухой основы и увлажненного аэрозоля. Кроме того, понятие «объемная концентрация субмикронного аэрозоля» является неопределенным без указания границ субмикронной фракции.

Как показывают обсуждаемые здесь результаты и данные других авторов [8, 9], конденсационная активность может существенно зависеть от размера частиц. Поэтому желательно выяснить, с частицами каких размеров связан получаемый по экспериментальным данным параметр γ . Для снятия указанных выше неопределенностей рассмотрим те же массивы данных измерений при искусственном увлажнении аэрозоля, для которых проведен статистический анализ.

Следует отметить, что при переходе от измеряемых оптических свойств частиц к микрофизическим параметрам конденсационной активности происходит неизбежная потеря достоверности оценок. Естественно, что параметр γ для коэффициента направленного светорассеяния определяется надежнее, чем параметр Хенела для объемной концентрации, а конденсационная активность для объемной концентрации — точнее, чем зависимость параметра Хенела от размера частиц. Поэтому надо иметь в виду, что реально существующие корреляционные связи могут частично разрушаться вследствие ошибок измерений и специфики некорректных обратных задач.

Отметим также, что вследствие ограниченности входной оптической информации обратная задача решается в предположении отсутствия зависимости показателя преломления от длины волны и размера частиц. И если первое с достаточной точностью выполняется в диапазоне длин волн 410–630 нм [18], то второе заведомо неверно в силу зависимости фактора конденсационного роста от размера сухих частиц. Тем не менее, как будет показано ниже, и по изменению показателя преломления можно получать реалистические оценки конденсационной активности аэрозоля.

В предположении, что параметр η не зависит от размера частиц, и исходя из простейшего правила смеси, можно оценить зависимость показателя преломления от относительной влажности воздуха:

$$n = 1,33 + (n_d - 1,33)(1 - RH)^e, \quad (6)$$

где n_d — показатель преломления сухой частицы. При постоянном для частиц всех размеров η параметр e равен 3η . Учитывая, что наиболее надежно распределение частиц по размерам по измерениям на нефелометре ФАН восстанавливается в диапазоне 0,05–0,6 мкм, для объемной концентрации в этом интервале размеров также был рассчитан параметр конденсационной активности для объемной концентрации ϵ . В дальнейшем под объемной концентрацией субмикронной фракции аэрозоля, восстановленной по измерениям с помощью ФАН, будет пониматься суммарный объем частиц в диапазоне 0,05–0,6 мкм в единице объема воздуха. В случае если η не зависит от размера сухих частиц, параметр ϵ , так же как и e , равен утроенному параметру конденсационной активности для радиуса частицы.

На рис. 4 приведены коэффициенты корреляции различных параметров конденсационной изменчивости аэрозоля с параметрами Хенела в диапазоне 0,1–0,47 мкм.

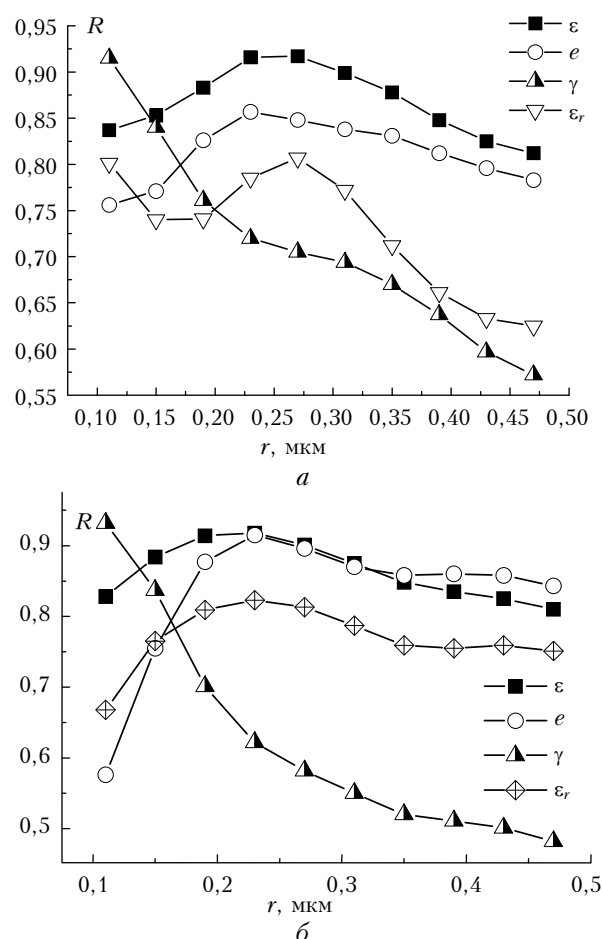


Рис. 4. Коэффициенты корреляции параметра Хенела $\eta(r)$ с ϵ , e , γ и ϵ_r (а — 2004 г., б — 2005 г.)

Обращает на себя внимание тот факт, что параметры конденсационной активности для объемной концентрации ε , для эффективного радиуса ε_r и для показателя преломления e лучше всего коррелируют с параметрами Хенела для частиц размерами 0,2–0,3 мкм, а оптический параметр конденсационной активности – с параметрами Хенела для более мелких частиц (по данным 2004 г. есть и второй максимум в корреляции эффективного радиуса).

Сопоставление параметров ε , γ и e (рис. 5) показало, что между ε и e не только существует достаточно тесная корреляционная связь (коэффициенты корреляции R равны 0,93 по данным измерений 2004 г. и 0,84 по данным 2005 г.), но и сами абсолютные значения этих величин близки, как это и следует из (6). В то же время связь с оптическим параметром несколько слабее ($R = 0,85$ и $0,82$ соответственно). Одной из причин этого является зависимость коэффициента пропорциональности между объемной концентрацией V и $D(45^\circ, 510 \text{ нм})$ от размера частицы и показателя преломления. В среднем, с увеличением относительной влажности отношение $D(45^\circ, 510 \text{ нм})/V$ уменьшается. Следовательно, $\gamma < \varepsilon$. По данным измерений 2004 и 2005 г. $\varepsilon = (1,34 \pm 0,04)\gamma$ и $(1,32 \pm 0,02)\gamma$ соответственно. Связь отношения $D(45^\circ, 510 \text{ нм})/V$ с показателем преломления по данным 2004 г. показана на рис. 6.

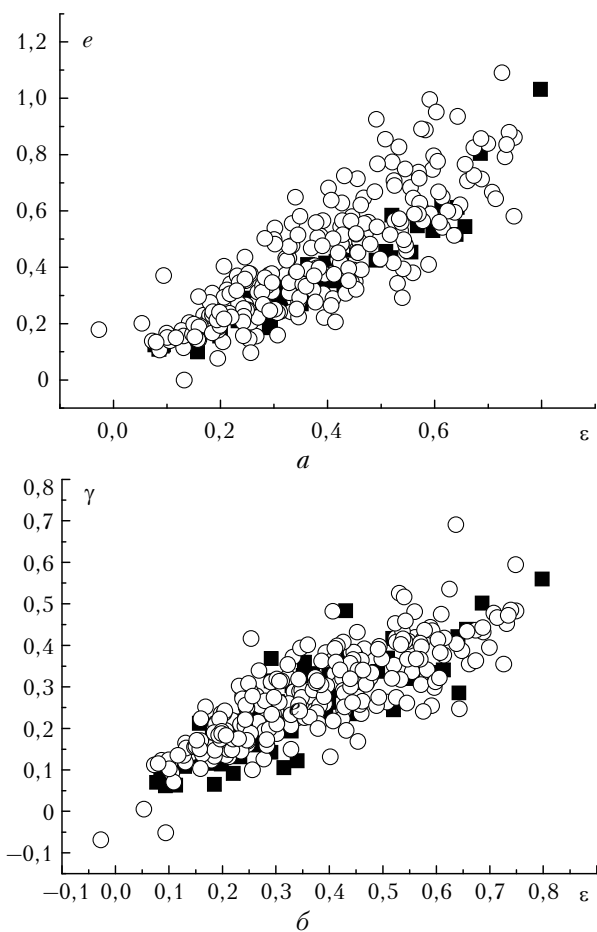


Рис. 5. Корреляционные связи между параметрами конденсационной активности (■ – 2004; ○ – 2005)

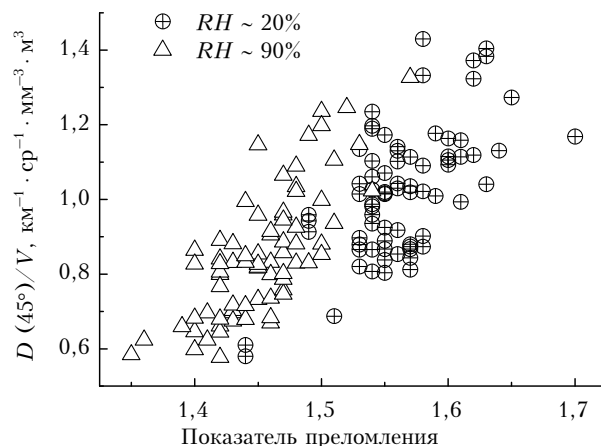


Рис. 6. Зависимость отношения $D(45^\circ, 510 \text{ нм})/V$ от показателя преломления для сухого и увлажненного аэрозоля

Отметим еще один методический аспект корреляционной связи между параметрами e и ε . Вопрос о выборе границ достоверности восстанавливаемого распределения частиц по размерам является достаточно сложным. Эти границы зависят от формы самого распределения и сдвигаются с изменением эффективного размера частиц. Попытка же восстановить распределение в той области, где оптической информации недостаточно, может существенно исказить такие интегральные параметры, как суммарная площадь или объем аэрозоля в единице объема воздуха. В то же время восстанавливаемый показатель преломления, как показывают модельные численные эксперименты, слабо чувствителен к выбору границ распределения. Поэтому оценка усредненного параметра Хенела по изменению показателя преломления может оказаться предпочтительнее, так как в первом приближении не зависит явно от интервала размеров, на котором решаются обратные задачи.

Заключение

Проведенный на достаточно большом статистическом массиве данных анализ соотношений между различными оптическими и микрофизическими параметрами конденсационного роста аэрозоля показывает, что применяемая методика позволяет с определенной степенью точности исследовать зависимость фактора роста и конденсационной активности частиц от их радиуса в диапазоне 0,1–0,5 мкм.

Если известно, какое вещество является основным растворимым компонентом субмикронной фракции аэрозоля, то по величине параметров конденсационной активности можно судить о его относительном содержании в сухой основе аэрозоля [19]. По зависимости же фактора роста от радиуса частицы можно оценить распределение растворимых веществ по размерам сухих частиц. Полученные нами зависимости качественно подобны результатам расчетов [9] для модели континентального аэрозоля. Но в то же время положения максимумов факторов роста несколько сдвинуты в сторону больших радиусов, в отличие от данных [9].

Полученные нами оценки являются необходимой, методически важной основой для обработки результатов многолетних измерений с целью изучения сезонной изменчивости микрофизических характеристик субмикронного аэрозоля в конденсационном процессе.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проекты № 06-05-64393, 07-05-00860).

1. *Георгиевский Ю.С., Розенберг Г.В.* Влажность как фактор изменчивости аэрозоля // Изв. АН СССР. Физ. атмосфер. и океана. 1973. Т. 9. № 2. С. 126–138.
2. *Кондратьев К.Я.* Аэрозоль как климатообразующий компонент атмосферы. 2. Прямое и косвенное воздействие на климат // Оптика атмосфер. и океана. 2002. Т. 15. № 4. С. 301–320.
3. *Журавлева Т.Б.* Моделирование переноса солнечного излучения в различных атмосферных условиях. Часть I: Детерминированная атмосфера // Оптика атмосфер. и океана. 2008. Т. 21. № 2. С. 99–114.
4. *Twomey S.* Pollution and the planetary albedo // Atmos. Environ. 1974. V. 8. N 12. P. 1251–1256.
5. *Кабанов М.В., Панченко М.В., Пхалагов Ю.А., Вертенников В.В., Ужegov В.Н., Фадеев В.Я.* Оптические свойства прибрежных атмосферных дымок. Новосибирск: Наука, 1988. 201 с.
6. *Rader D.J., McMurry P.H.* Application of the Tandem Differential Mobility Analyzer to studies of droplet growth and evaporation // J. Aerosol Sci. 1986. V. 17. N 5. P. 771–787.
7. *Berg O.H., Swietlicky E., Krejci R.* Hygroscopic growth of aerosol particles in the marine boundary layer over the Pacific and Southern oceans during the First Aerosol Characterization Experiment (ACE I) // J. Geophys. Res. D. 1998. V. 103. N 13. P. 16,535–16,545.
8. *Meszaros A.* On the variation of the size distributions of large and giant particles as a function of the relative humidity // Tellus. 1971. V. 23. N 4–5. P. 441–453.
9. *Лактионов А.Г.* Равновесная гетерогенная конденсация. Л.: Гидрометеиздат, 1988. 160 с.
10. *Горчаков Г.И., Метревели Д.М.* Исследования микроструктуры приземного аэрозоля. Препр. / Ин-т физики атмосферы (М.). 1983. № 260. 30 с.
11. *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.
12. *Panchenko M.V., Sviridenkov M.A., Terpuгова S.A., Kozlov V.S.* Active spectral nephelometry as a method for the study of submicron atmospheric aerosols // Int. J. Remote Sens. 2008. V. 29. Iss. 9. P. 2567–2583.
13. *Панченко М.В., Терпугова С.А., Козлов В.С., Полькин В.В., Якушева Е.П.* Годовой ход конденсационной активности субмикронного аэрозоля в приземном слое атмосферы Западной Сибири // Оптика атмосфер. и океана. 2005. Т. 18. № 8. С. 678–683.
14. *Cocker D.R.III, Whitcock N.E., Flagan R.C., Seinfeld J.H.* Hygroscopic properties of Pasadena, California, aerosol // Aerosol Sci. and Technol. 2001. V. 35. N 2. P. 637–647.
15. *Hanel G.* The properties of atmospheric aerosol particles as function of relative humidity at the thermodynamic equilibrium with surrounding moist air // Adv. in Geophys. 1976. V. 19. N 1. P. 73–188.
16. *Обухов А.М.* О статистически ортогональных разложениях эмпирических функций // Изв. АН СССР. Сер. Геофиз. 1960. № 3. С. 432–439.
17. *Исаков А.А.* Некоторые статистические закономерности вариаций оптических и микрофизических характеристик приземного аэрозоля // Оптика атмосфер. и океана. 2003. Т. 16. № 5–6. С. 488–493.
18. *Зуев В.Е., Креков Г.М.* Оптические модели атмосферы. Л.: Гидрометеиздат, 1986. 256 с.
19. *Горчаков Г.И., Сидоров В.Н., Свириденков М.А.* О конденсационной активности фонового аэрозоля // Изв. АН СССР. Физ. атмосфер. и океана. 1982. Т. 18. № 9. С. 997–1000.

S.A. Terpuгова, M.V. Panchenko, M.A. Sviridenkov, T.A. Dokukina. **Relations between optical and microphysical parameters of the near-ground aerosol condensation variability.**

The results of measurements of the dependence of aerosol optical characteristics on the relative humidity of air in artificial condensation processes are analyzed. The dependences of the condensation growth factors on the dry particle size are calculated and their statistical analysis is performed. Regression relation between the measured optical parameters of condensation activity and the Hanel parameter for the aerosol volume concentration is obtained. The possibility of estimation of the Hanel parameter from values of the refractive index of dry and humidified particles is shown.