折射率和粒子尺度对大气气溶胶光散射特性的影响

张学海[1,2],戴聪明[2],武鹏飞[2],崔生成[2],黄宏华[2],刘 铮[3],毛宏霞[3],苗锡奎[4],魏合理[2]

(1. 河南工业大学 信息科学与工程学院,河南 郑州 450001;
2. 中国科学院安徽光学精密机械研究所 中国科学院大气光学重点实验室,安徽 合肥 230031;
3. 北京环境特性研究所 光学辐射重点实验室,北京 100854;
4. 中国洛阳电子装备试验中心 光电对抗测试评估技术重点实验室,河南 洛阳 471003)

摘 要:采用 Mie 散射方法计算了小尺度范围内,0.65 μm 波长大气气溶胶粒子光学特性与折射率、粒子尺度参数的关系,并分析了折射率虚部对气溶胶粒子散射相函数的影响。结果表明:在小尺度范围内,气溶胶粒子散射特性受折射率、尺度参数影响较大,折射率实部和尺度参数对消光效率因子等非散射角散射参量的影响存在一定程度的对称性。同时还发现,在特殊散射角位置,无论对于单粒子还是对于多分散粒子群系统,气溶胶粒子(群)的散射相函数与折射率虚部基本无关,不同折射率虚部的散射相函数在前向散射方向存在交点,交点位置随粒子尺度参数的变化基本为高斯分布。随着粒子尺度参数的增大,交点位置向前向小角方向移动,并逐步趋于离散。这一结论对了解大气气溶胶粒子的散射效应具有一定的参考意义。

关键词:气溶胶; 复折射率; 尺度参数; 散射; 相函数
中图分类号:P40;O4 **文献标志码**:A **DOI**:10.3788/IRLA201746.1211001

Effect of the refractive index and particle size parameter on light scattering properties of atmosphere aerosol

Zhang Xuehai[1,2], Dai Congming[2], Wu Pengfei[2], Cui Shengcheng[2], Huang Honghua[2], Liu Zheng[3], Mao Hongxia[3], Miao Xikui[4], Wei Heli[2]

(1. School of Information Science and Engineering, Henan University of Technology, Zhengzhou 450001, China;
2. Key Laboratory of Atmospheric Optics, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China;
3. Science and Technology on Optical Radiation Laboratory, Beijing Institute of Environmental Features, Beijing 100854, China;
4. Key Laboratory of Electro-Optical Countermeasures Test & Evaluation Technology, Luoyang Electronic Equipment Test Center of China, Luoyang 471003, China)

Abstract: The effects of reflective index and particle size parameters on optical properties of atmosphere aerosol particles were studied by using Mie scattring method at the wavelength of 0.65 μm over small scales. The influence of the imaginary part of refractive index on the aerosol particle scattering phase function was analyzed. The results show that, in the small scale, the light scattering properties are

收稿日期:2017-04-10; **修订日期**:2017-05-20
基金项目:国家自然科学基金青年科学基金(41505023);光电对抗测试评估技术重点实验室基金(GKCP2016001);省属高校基本科研业务费专项资金项目青年支持计划(2017QNJH02);河南工业大学高层次人才科研启动基金(2017BS026)
作者简介:张学海(1987-),男,讲师,博士,主要从事大气气溶胶光学特性方面的研究。Email:zhangxuehai2012@163.com
通讯作者:魏合理(1965-),男,研究员,博士生导师,主要从事红外辐射大气传输、卷云红外辐射特性方面的研究。
Email: hlwei@aiofm.ac.cn

sensitive to the refractive index and size parameter. The influence of the real part of refractive index and size parameter on non-scattering angle optical parameters is a degree of symmetry. It was also found that in the special position of the scattering angle, no matter the single particle or polydisperse particles, the scattering phase function are independent of the imaginary part of refractive index, scattering phase functions of different imaginary part of refractive index have an intersection point in the forward direction, the intersection point takes Gaussian distribution with the increase of particle size parameter. With the increase of particle size parameter, the intersection point would move to the small forward direction, and gradually become discrete. This work is of reference value in studying the scattering properties of aerosols and their climatic effects.

Key words: aerosol; complex refractive index; size parameter; scattering; phase function

0 引 言

大气气溶胶对气候变化有重要的影响，气溶胶粒子通过吸收和散射太阳辐射，直接或间接改变地气系统的能量收支平衡。复折射指数 $m=n_r-in_i$ 和气溶胶粒子的粒子尺度是表征大气气溶胶粒子微物理特性的重要参数。鉴于在讨论气溶胶散射的文献[1-3]常用折射率来表征复折射指数，在文中以下部分也采用这种表述,若不特别说明,文中的折射率即指复折射指数。折射率实部主要和光散射有关;折射率虚部主要与光吸收有关，是大气气溶胶吸收特性的重要参数,决定了大气气溶胶在辐射和气候效应中的作用是加热还是冷却[4],而粒子尺度又直接决定了粒子散射能力的大小,粒子尺度越大,前向散射越强。因此近年来,对大气气溶胶粒子复折射率和粒子尺度的测量和理论研究愈来愈引起重视[1-12]。阎逢旗等开发了一种利用光学粒子计数器和能见度仪联合测量大气气溶胶折射率虚部的方法[1]。李学彬等分析了折射率虚部在不同散射角上对双散射角激光光学粒子计数器响应曲线的影响[2-3]。张学海等针对气溶胶前向和后向散射特性进行了理论分析,得到了其前向和后向散射特性与粒子尺度及折射率虚部的定量化关系[11-12]。这些粒子计数器的工作原理都是测量粒子在某一方向的散射量来确定粒子的尺度和数密度的，而气溶胶的折射率和粒子尺度谱严重影响粒子的散射特性分布。在实际大气中,由于气溶胶粒子化学成分的不同而导致气溶胶粒子的折射率虚部 n_i 变化范围很大,给气溶胶粒子折射率虚部的实际测量造成了困难。目前关于气溶胶尺度和折射率的反演研究,大多还是采用等效球形理论,因此讨论关于球形粒子的尺度和复折射率对光学特性的影响具有重要的实用价值。针对折射率在分析气溶胶粒子光学特性中的重要性，文中根据 Mie 散射理论,通过数值模拟计算,分析研究了气溶胶粒子折射率、尺度参数对其光学特性的影响。得出了不同折射率虚部散射相函数交点位置随尺度参数的变化关系，对反演气溶胶粒子尺度参数和和气溶胶光学特性观测具有一定的参考意义。

1 米散射理论

对于一束平面极化光照射到粒子上，且入射光的波长和粒子线度相近时，球形粒子对光的散射吸收可以用 Mie 散射理论来处理,Mie 散射理论给出了球形粒子在远场条件下的散射场振幅 a_n、b_n 以及粒子内部电磁场振幅 c_n、d_n 的计算表达式,称为 Mie 散射系数,具体形式为[9]:

$$a_n=\frac{\psi'_n(y)\psi_n(x)-m\psi_n(y)\psi'_n(x)}{\psi'_n(y)\xi_n(x)-m\psi_n(y)\xi'_n(x)} \tag{1}$$

$$b_n=\frac{m\psi'_n(y)\psi_n(x)-\psi_n(y)\psi'_n(x)}{m\psi'_n(y)\xi_n(x)-\psi_n(y)\xi'_n(x)} \tag{2}$$

$$c_n=\frac{m[\psi'_n(y)\xi_n(x)-\psi_n(y)\xi'_n(y)]}{\psi'_n(y)\xi_n(x)-m\psi_n(y)\xi'_n(x)} \tag{3}$$

$$d_n=\frac{m[\psi'_n(x)\xi_n(x)-\psi_n(y)\xi'_n(y)]}{m\psi'_n(y)\xi_n(x)-\psi_n(y)\xi'_n(x)} \tag{4}$$

式中:x 为尺度参数,$x=2\pi r/\lambda$;r 为球的半径;$y=mx$;m 为微粒与外部介质的相对折射率;$\psi_n(x)$和 $\xi_n(x)$分别为 Bessel 函数和 Hankel 函数。通过这些散射系数的组合可以计算出粒子的光学特性参数，如消光效率因子、吸收效率因子、不对称因子等,以及依赖散

射角的散射相矩阵(包括散射相函数)等。文中所使用的散射相函数均为归一化散射相函数,即满足:

$$\frac{1}{4\pi}\int_0^{2\pi}\int_0^{\pi}P(\theta)\sin\theta\mathrm{d}\theta\mathrm{d}\phi=1 \tag{5}$$

式中:$P(\theta)$为归一化散射相函数;θ 为散射角。

2 研究内容

2.1 非散射角散射参量

文中采用 Mie 散射方法计算了 0.65 μm 波段,不同折射率实部、虚部以及粒子直径的球形气溶胶粒子的散射参量,其中当计算折射率实部对气溶胶粒子散射特性影响时,折射率虚部为 1e-5,此时,气溶胶粒子基本无吸收;当计算折射率虚部对气溶胶粒子散射特性影响时,折射率实部为 1.52,为自然界普遍存在的折射率实部。

从图 1~3 中可以看出,气溶胶粒子的非散射角光学参量(包括消光效率因子、吸收效率因子和不对称因子)随折射率、粒子直径 D_e 的变化存在相似性和差异性。

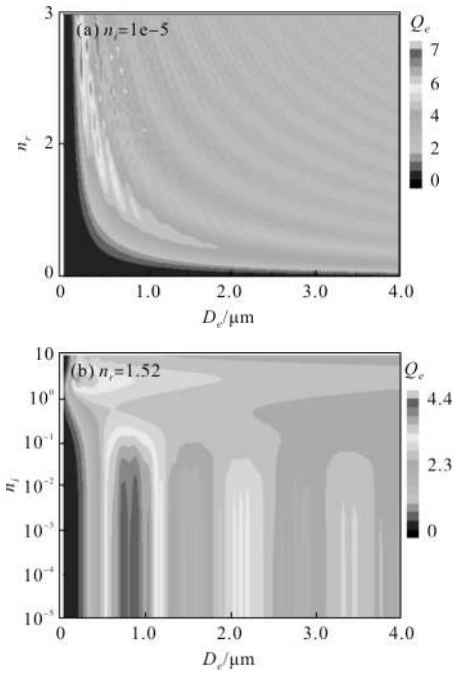


图 1 气溶胶粒子的消光效率因子Q_e随折射率实部、虚部以及粒子直径的变化

Fig.1 Dependence of the extinction efficiency factor on the particle dimension and refractive index (real and imaginary part) of aerosol particles

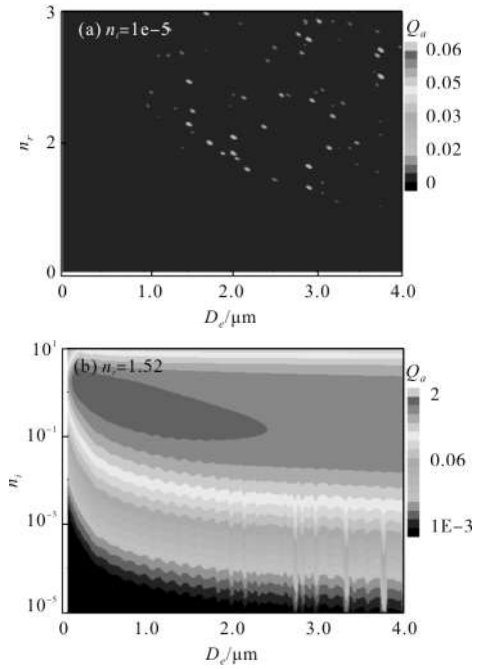


图 2 气溶胶粒子的吸收效率因子随折射率实部、虚部以及粒子直径的变化

Fig.2 Dependence of the absorption efficiency factor on the particle dimension and refractive index(real and imaginary part) of aerosol particles

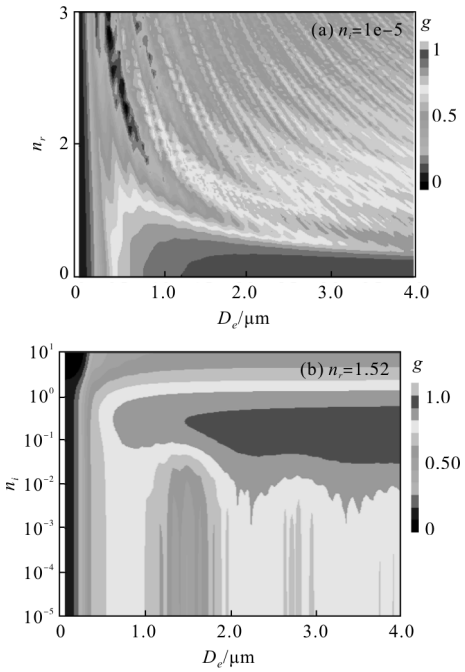


图 3 气溶胶粒子的不对称因子随折射率实部、虚部以及粒子直径的变化

Fig.3 Dependence of the asymmetry parameter on the particle dimension and refractive index (real and imaginary part) of aerosol particles

从图 1(a)可以看出,如同粒子直径对光散射特性影响一样,折射率实部也对气溶胶粒子的消光效率因子产生重要的影响,总体说来,气溶胶粒子消光效率因子 Q_e 随折射率实部增大而振荡并逐渐减小,随气溶胶粒子虚部增大在一定程度内维持然后逐渐减小。

从图 1(b)可以看出,折射率虚部对气溶胶粒子的消光效率因子影响较大。当折射率虚部小于 0.01 时,对 Q_e 基本没有影响,此时气溶胶粒子的 Q_e 随粒子直径的变化震荡逐渐减弱并最终趋向于 2,同时由于光的衍射和折射而产生干涉,会在特定位置出现毛刺现象[13];当折射率虚部在 0.01~1 范围内,Q_e 随粒子直径的变化震荡程度减弱,同时毛刺现象消失,当折射率虚部继续增大时,吸收又开始减小,散射又有所增大,Q_e 随粒子直径的变化震荡程度继续减弱,甚至消失。这是由于气溶胶粒子吸收增强,导致不同的入射光线在粒子内部吸收减弱,由不同光线干涉作用因子的震荡也因此减弱。而当折射率虚部很大时,粒子变为金属导体,它将入射波全部反射,导致没有吸收。

从图 2 可以看出,气溶胶粒子的吸收效率因子 Q_a 随折射率实部变化不大,随折射率虚部增大而增大,直到折射率虚部超过 3 时又随折射率增大而减小。气溶胶粒子吸收效率因子 Q_a 随折射率虚部的变化趋势,为在实际应用中将大气气溶胶进行无吸收、弱吸收、强吸收以及金属粒子的分类提供了直观便捷的参考价值。

从图 3(a)可以也看出相似的特性,气溶胶粒子的吸收效率因子、不对称因子随折射率实部和粒子直径的变化也存在一定的对称性。当粒子折射率实部较小时(n_r<1.5),不对称因子在粒子直径较小时,失去波纹状特性,随着粒子直径的增大,波纹状特性重新出现。随着折射率实部的增大,不对称因子与折射率实部和粒子直径之间呈现的波纹特性可以明显呈现出来。

从图 3(b)可以看出,当折射率虚部较大且粒子直径较小时,不对称因子甚至可以出现负值,意味着对于折射率较大气溶胶粒子,后向散射光的强度甚至要强于前向,这也是由于当折射率虚部增大时,粒子反射增强所致,从而印证了之前关于其他非散射角光学参量的讨论。

2.2 单粒子散射相函数特征

光在某个给定方向单位立体角中散射的能量和所有方向上平均单位立体角中的散射能量之比,称为散射相函数。它表征散射能量随角度分布。文中采用 Mie 散射理论计算了单分散粒子系统球形粒子的散射相函数随折射率虚部的变化情况。

图 4 给出了粒子折射率实部为 1.52 时,不同折射率虚部、粒子直径下球形粒子的散射相函数。当折射率虚部小于 0.01 时,两种折射率虚部粒子的散射相函数随散射角的变化趋势基本相同,仅由于粒子吸收增强而导致散射相函数的震荡减弱;随着折射率虚部的继续增加,吸收继续增强,散射相函数在后向散射方向上继续减弱;当折射率虚部大于 1 时,散射相函数逐渐趋于平滑,同时后向散射增强,当折射率虚部为 10 时,粒子直径为 0.04 μm 的后向散射相函数甚至要强于前向。这和前述折射率虚部很大时,

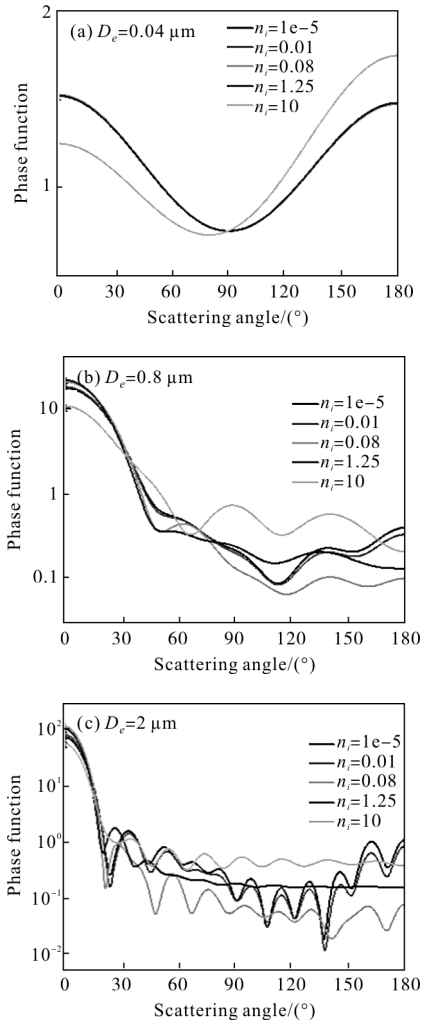


图 4 不同折射率、粒子直径气溶胶粒子的散射相函数

Fig.4 Scattering phase function with different refractive index and particle dimension

反射增强相符合。

同时可以看出，不同折射率虚部粒子的散射相函数存在一交点，即在该散射角位置，散射相函数与粒子的折射率虚部无关。且随着粒子直径的增大，交点位置逐步向前向小散射角方向移动并逐渐分离。宫纯文等[14]在研究不同取向比粒子散射相函数特性时，也曾发现相同表面积等效球尺度下，不同取向比粒子的散射相函数的曲线也存在一个交点，且随着粒子尺度的增加，交点所在散射角度值逐渐向前向小角度移动，即存在特殊散射角位置，粒子的散射强度与粒子尺度无关。如图 4(a)所示，当粒子直径很小时，不同折射率虚部粒子的散射相函数的交点在散射角 90°附近。随着粒子直径的增大，交点位置逐步向前向小散射角方向移动并逐渐分离(如图 4(c)所示)，但是选取散射相函数最接近的散射角作为交点，仍然可以发现一定的规律。

由于粒子散射特征主要取决于粒子的尺度参数 x($x=2\pi r/\lambda$)，即粒子尺度与波长的比值，因此笔者计算了不同尺度参数粒子的散射相函数随折射率虚部的变化，发现都存在该交点位置。图 5 给出了计算的交点位置随尺度参数 x 的变化。

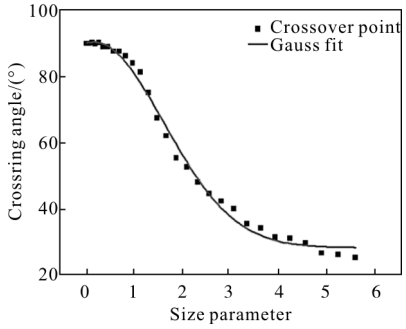


图 5 不同折射率虚部散射相函数交点随着尺度参数 x 的变化

Fig.5 Dependence of the crossover point of scattering phase function with different imaginary of complex refractive index on the size parameter x

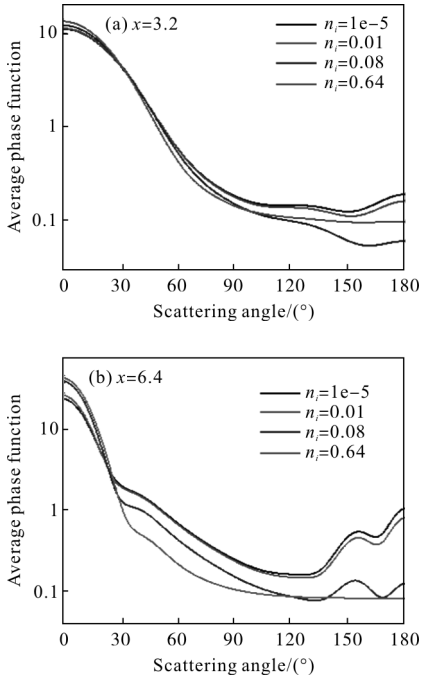
从图 5 可以看出，随着尺度参数 x 的变化，不同折射率相函数交点的散射角度值向小角范围移动，并基本符合高斯函数分布。该结果为计算不同化学性质的单粒子散射特性提供了一个依据，对气溶胶粒子散射特性的测量具有重要意义，可以根据文中结果选择合适的角度去观察粒子的散射特性。如气溶胶粒子计数器就是在一定的角度上通过观测散射强度来计数的，要求仪器在特定角度接收的散射信号随折射率变化不敏感且随粒子大小单调变化[9]，如果该角度观测的散射特性与气溶胶粒子的折射率虚部无关或受折射率虚部影响较小，则可以大大降低测量的不确定度。

2.3 平均散射相函数特征

由于实际大气中气溶胶都是以粒子群形式存在的，而且实际大气气溶胶粒子折射率虚部一般不大于 1，因此文中考虑到对于实际大气气溶胶粒子群，不同折射率虚部气溶胶粒子群的平均散射相函数是否依然存在交点，如果存在交点，交点位置是否随尺度参数的变化而变化，变化趋势是否依然符合高斯分布形式。文中按照实际大气中常见的正态谱分布形式对粒子群平均散射相函数展开研究，正态谱分布形式如下：

$$N(r)=\frac{C_1}{r}\exp\left[-\frac{(\ln r-\ln r_g)^2}{2\ln^2\sigma_g}\right] \tag{6}$$

式中：r 表示球形粒子半径；r_g 为众数半径；σ_g 为标准差。根据粒子谱分布，选取粒子半径 0.02~2 μm 范围内以 0.02 μm 为采样间隔选取 100 个粒子半径进行积分，通过改变 r_g 改变粒子平均半径，选用 σ_g=0.2。图 6 为 r_g 分别取 0.3、0.6、1.0 μm，对应得到的平均尺度参数分别为 3.2，6.4，10.7 时散射相函数结果。



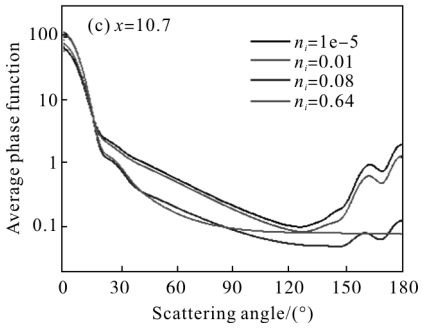


图 6 不同折射率虚部、平均尺度参数的气溶胶平均散射相函数

Fig.6 Mean scattering phase function with different imaginary part of the refractive index and mean size parameter

图 6 给出了粒子折射率实部为 1.52 时,不同折射率虚部、粒子平均尺度参数下球形粒子群的平均散射相函数。从图 6 可以看出,折射率虚部对粒子群平均散射相函数的影响主要集中在侧向及后向散射方向,随着吸收的增强,平均散射相函数在后向散射方向的散射强度减弱,而在前向散射方向增强。同时,不同折射率虚部粒子群的平均散射相函数依然存在交点,且交点位置的散射角度值随尺度参数的增大而向前向小角方向移动。

图 7 给出了交点位置的散射角度随平均尺度参数的变化趋势及其高斯拟合曲线图。可以看出对于多分散粒子群系统,交点位置和单分散粒子的变化趋势基本一致,均基本符合高斯函数分布。这验证了交点位置的可靠性和准确性,在解决实际大气由多种类型粒子组成的多分散系统粒子的粒子计数以及折射率虚部和尺度参数的反演中具有一定的参考价值。

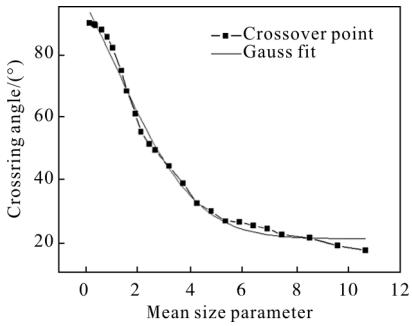


图 7 不同折射率虚部平均散射相函数交点随气溶胶粒平均尺度参数 x 的变化

Fig.7 Dependence of the crossover point of mean scattering phase function with different imaginary part of refractive index on the mean size parameter x of aerosol particles

3 结 论

文中从Mie 散射理论出发,计算了小尺度参数范围,球形气溶胶粒子的散射特性(包括消光效率因子、吸收效率因子、不对称因子和相函数)随折射率、尺度参数的变化。通过分析计算发现,不同尺度下,折射率对球形粒子散射特性的影响存在着相似与差异性。对于弱吸收粒子,折射率实部和粒子直径对气溶胶粒子的消光效率因子、不对称因子影响存在某种程度的对称性,仅当粒子直径(或折射率实部)很小时存在着差异。同时,随着折射率虚部的增加,由于粒子逐步由弱吸收向强吸收,最后向导体转变,导致粒子的消光效率因子、吸收效率因子、不对称因子在各个阶段存在不同的特性,散射参量的毛刺现象也随折射率虚部的增加而逐步消失。而在大气辐射传输计算中,经常采用不对称因子作为散射相函数的输入值,因此对同一不对称因子,可能存在两种甚至多种不同大小和折射率粒子,这样就会对气溶胶类型和尺寸反演方面造成影响。这部分研究对直观、便捷地区分粒子吸收类型提供了参考。同时研究还发现,对于单分散和多分散粒子系统,不同折射率虚部的气溶胶粒子的散射相函数存在着一个交点,且随着粒子尺度参数的增加,交点所在的散射角度值向前向小角方向移动并逐步趋于离散。交点位置与粒子尺度参数呈高斯分布。该结论对全面了解气溶胶粒子的光散射特性有一定的意义,对粒子计数器、能见度仪等利用特殊散射角散射能量差异进行测量能见度等参量的研究也有一定的参考意义。

参考文献:

[1] 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. 大气气溶胶粒子数密度谱和折射率虚部的测量[J]. 光学学报, 2003, 23(7): 855-859.

[2] Li Xuebin, Hu Shunxing, Xu Qingshan, et al. Characteristics measurement of extinction and refractive index of aerosol particles[J]. ***High Power Laser & Particle Beams***, 2007, 19(2): 207-210. (in Chinese)
李学彬, 胡顺星, 徐青山, 等. 大气气溶胶消光特性和折射

率的测量[J]. 强激光与粒子束, 2007, 19(2): 207-210.

[3] Li Xuebin, Xu Qingshan, Hu Huanling. New method to deduce imaginary part of refractive index of aerosol with double-scattering angles laser optical particle counter [J]. ***Acta Optica Sinica***, 2007, 27(3): 391-394. (in Chinese)
李学彬, 徐青山, 胡欢陵. 双散射角光学粒子计数器测量气溶胶折射率的新方法研究[J]. 光学学报, 2007, 27(3): 391-394.

[4] Yamamoto G, Tanaka M. Increase of global albedo due to air pollution[J]. ***Journal of the Atmospheric Sciences***, 1972, 29(8): 1405-1412.

[5] Cong P H, Robles-Kelly A, Hancock E R. Shape and refractive index from single-view spectro-polarimetric images[J]. ***International Journal of Computer Vision***, 2013, 101(1): 64-94.

[6] Yang B, Yan C, Zhang J, et al. Refractive index and surface roughness estimation using passive multispectral and multiangular polarimetric measurements [J]. ***Optics Communications***, 2016, 381: 336-345.

[7] Zhao F, Gong Z, Hu H, et al. Simultaneous determination of the aerosol complex index of refraction and size distribution from scattering measurements of polarized light [J]. ***Applied Optics***, 1997, 36(30): 7992-8001.

[8] Zhao F. Determination of the complex index of refraction and size distribution of aerosols from polar nephelometer measurements[J]. ***Applied Optics***, 1999, 38(12): 2331-2336.

[9] Liou K N. An Introduction To Atmospheric Radiation [M]. 2nd ed. Liao Guonan, Guo Caili, Zhou Shijian, Transl. Beijing: China Meteorological Press, 2004. (in Chinese)
Liou K N.大气辐射导论[M]. 2 版. 廖国男, 郭彩丽, 周诗健,译. 北京: 气象出版社, 2004.

[10] Wang G, Chakrabarti A, Sorensen C M, Effect of the imaginary part of the refractive index on light scattering by spheres [J]. ***Journal of the Optical Society of America A***, 2015, 32(7): 1231-1235.

[11] Zhang Xuehai, Wei Heli. Forward scattering properties of spherical particles based on the geometrical optics method and Mie scattering [J]. ***Infrared and Laser Engineering,*** 2015, 44(5): 1485-1490. (in Chinese)
张学海, 魏合理. 基于用几何光学和米散射法的球形粒子前向散射特性计算研究[J]. 红外与激光工程, 2015, 44(5): 1485-1490.

[12] Zhang Xuehai, Wei Heli, Dai Congming, et al. Influence of aspect ratio on the light scattering properties of spherical aerosol particles [J]. ***Acta Physica Sinica***, 2015, 64 (22): 224205. (in Chinese)
张学海, 魏合理, 戴聪明, 等. 取向比对椭球气溶胶粒子散射特性的影响[J]. 物理学报, 2015, 64(22): 224205.

[13] Lock J A, Yang L. Interference between diffraction and transmission in the Mie extinction efficiency [J]. ***Journal of the Optical Society of America A***, 1991, 8(7): 1132-1134.

[14] Gong Chunwen, Wei Heli, Li Xuebin, et al. The influence of the aspect ratio to the light scattering properties of cylinder ice particles [J]. ***Acta Optica Sinica***, 2009, 29 (5): 1155-1159. (in Chinese)
宫纯文, 魏合理, 李学彬, 等. 取向比对圆柱状冰晶粒子光散射特性的影响[J]. 光学学报, 2009, 29(5): 1155-1159.