

马楠,周秀骥,颜鹏,等. 一种改进的 TSI3563 积分浊度误差校正方法. 应用气象学报, 2015, 26(1): 12-21.
doi:10.11898/1001-7313.20150102

一种改进的 TSI3563 积分浊度误差校正方法

马楠¹⁾ 周秀骥¹⁾²⁾ 颜鹏³⁾ 赵春生^{1)*}

¹⁾(北京大学物理学院大气与海洋科学系,北京 100871)

²⁾(中国气象科学研究院,北京 100081) ³⁾(中国气象局气象探测中心,北京 100081)

摘 要

TSI3563 型积分式浊度计是一种性能出色的气溶胶散射系数观测仪器,然而由于仪器设计所固有的限制,TSI3563 型浊度计观测结果包含有角度截断和非朗伯体光源两项系统性误差,会使观测结果较真值偏小 10% 左右。因此,需要对 TSI3563 型浊度计的观测结果进行校正才能得到较为精确的散射系数观测值。该研究利用 2009 年华北平原 HaChi 气溶胶外场观测数据测试了现有校正方法,结果显示,传统的校正方法在我国华北平原这样的高气溶胶污染地区并不适用。为此,提出一种改进的校正方法,利用同时观测的 PM₁ 和 PM₁₀ 数据,在校正方案中加入超微米粒子体积比这一参量,对于不同体积比采用不同的校正函数。利用实际观测数据检验后发现,改进方法的校正效果相对于传统方法有很大改善。

关键词: 气溶胶散射系数; TSI3563 三波段积分浊度计; 角度截断和非理想光源误差

引 言

大气气溶胶可以通过直接散射和吸收太阳辐射影响地球大气的辐射收支,该效应称为气溶胶的直接辐射效应^[1]。气溶胶的直接辐射效应决定于气溶胶的辐射特性,包括气溶胶消光系数(或光学厚度)、不对称因子(相函数)和单次散射反照率。其中,气溶胶单次散射反照率在气候强迫研究中尤其重要,其微小变化可能导致气溶胶辐射强迫的较大变化。要准确估算气溶胶的辐射强迫,单次散射反照率观测的准确度应在 ±0.03 以内^[2]。而单次散射反照率是气溶胶散射系数与消光系数的比值,因此,散射系数的测量需要有足够的准确度。

TSI3563 三波段积分浊度计是一种高灵敏度的测量气溶胶散射系数的仪器(TSI, Inc, Shoreview, MN USA, Model 3563)^[3],在全球范围内被广泛应用于气溶胶散射系数的观测。TSI3563 浊度计的积分测量角度范围为 7°~170°,同时可以利用一个旋

转板将 7°~90°之间的入射光挡住,从而实现半球后向散射信号的测量。积分角度(理想的积分角度为 0°~180°)和光源(理想光源为严格的朗伯发光体)的非理想性使 TSI3563 浊度计的测量结果包含有一定的系统性偏差,分别称为角度截断误差和非理想光源误差^[4]。对细粒子来讲,其角度截断误差一般小于 10%,但对粗粒子而言,其角度截断误差可以很大。而非理想光源误差一般在 1%~5%之间。因此,在利用 TSI3563 积分浊度仪测量气溶胶散射系数时,需要对测量结果进行校正。

我国华北平原是全世界气溶胶污染最严重的地区之一,气溶胶的理化性质具有一定的独特性。本文以我国华北平原地区的气溶胶数谱和光学特性等观测数据为基础,对几种常见的 TSI3563 积分式浊度计角度截断和非理想光源误差校正方法进行比较,包括 Anderson 等^[5]提出的校正方法和基于 Mie 散射模型模拟浊度计观测的校正方法,指出现有校正方法存在的问题,并基于现有方法,提出一种改进的校正方法。

2014-03-02 收到, 2014-09-16 收到再改稿。

资助项目:国家重点基础研究发展计划(2011CB403402),公益性行业(气象)科研专项(GYHY201006047, GYHY200906038),中国气象科学研究院基本科研业务专项课题(2008Z011)

* 通信作者, email: zcs@pku.edu.cn

1 现有的 TSI3563 积分式浊度计校正方法

TSI3563 积分式浊度计问世后,几种针对其角度截断和非理想光源误差的校正方法也被提出。这些方法的目的是给出理想散射系数($\sigma_{sp,ideal}$)和浊度计测量的包含误差的散射系数($\sigma_{sp,measure}$)之间的比值,即校正因子

$$C = \frac{\sigma_{sp,ideal}}{\sigma_{sp,measure}}。 \quad (1)$$

常用的校正方法有两种:一是利用 Mie 散射模型模拟 TSI3563 浊度计的测量,基于计算得到的测量值和真值给出校正因子 C 。另一种是建立校正因子与其他观测量的简单关系,从而通过其他观测量推断出校正因子 C ;Anderson 等^[5]提出的校正方法(下文简称为 AO98 方法)属于第 2 种,这种方法不需要额外的辅助观测,简单易行,因此是目前应用最为广泛的校正方法。本章将基于在我国华北平原开展的 Haze in China (HaChi)外场试验中得到的气溶胶观测数据,对 AO98 方法和基于 Mie 散射模型的校正方法进行比较,并对方法中存在的问题进行细致分析。

Haze in China (HaChi)外场试验是 2009 年在天津市武清区进行的针对大气气溶胶物理特性的大型外场观测。观测站位于天津市武清区气象局观测场内($39^{\circ}22'58.8''N$, $117^{\circ}1'1.2''E$, 海拔高度为 7.4 m)。气溶胶观测仪器安置于一个移动实验室中,室内温度保持在 $22^{\circ}C$ 。气溶胶由离地面 7 m 的 PM_{10} 进气口进入,经过干燥后达到低于 30% 的相对湿度,之后由分流器将气流分给不同仪器。

在 HaChi 试验期间,采用双差分式迁移率粒径谱仪^[6](Twin Differential Mobility Particle Sizer, TDMPMS)对 3~800 nm 斯托克斯粒径的气溶胶数浓度谱分布进行观测。同时采用空气动力学粒径谱仪(Aerodynamic Particle Sizer, APS, TSI, Inc, Shoreview, MN USA, Model 3321)对 0.5~10 μm 空气动力学粒径的气溶胶数浓度谱分布进行了观测。TDMPMS 和 APS 观测的时间分辨率均为 10 min。对 TDMPMS 数据进行多电荷校正,对 TDMPMS 和 APS 数据进行了管路内损失的校正。将 APS 测量的空气动力学粒径转化为斯托克斯粒径后,与 TDMPMS 测量的谱分布进行拼接,即得到 3~10 μm 粒径范围的干燥状态气溶胶数浓度谱分布。观测期

间,采用 TSI3563 型积分式浊度计对干燥状态下气溶胶散射系数和半球后向散射系数进行观测,仪器测量时间分辨率为 1 min。在观测开始和结束时利用 CO_2 标准气体对浊度计进行了标定。仪器每天自动进行 1 次零点检测,用于数据零点校正。

1.1 基于 Mie 散射模型模拟浊度计测量的校正方法

基于 Mie 散射模型模拟积分浊度计测量的校正方法,即以同时测量的气溶胶数浓度谱分布和其他一些观测量为基础,在考虑积分浊度计非理想性的前提下,利用 Mie 散射模型模拟积分浊度计的测量,从而得到测量值和真值,计算校正因子 C 。

基于 Mie 散射理论^[7],散射效率因子 Q_{sp} 可以通过对散射强度函数 $|S(\theta, x, \bar{m})|$ 在散射角 $0^{\circ} \sim 180^{\circ}$ 内积分,得

$$Q_{sp} = \frac{1}{x^2} \int_{\theta} |S(\theta, x, \bar{m})|^2 \sin\theta d\theta。 \quad (2)$$

其中,尺度数 $x = \pi D_p / \lambda$, D_p 是粒子的体积等效粒径, λ 是入射光的波长, θ 是散射角, \bar{m} 是粒子的复折射指数。对于 TSI3563 浊度计,由于角度截断,式(2)中的积分上下限达不到 0° 和 180° ,而是约为 7° 和 170° 。同时,浊度计内的光源存在非理想的角度响应。所以在模拟 TSI3563 浊度计的测量时,式(2)中的 $\sin\theta$ 项被替换为一个预先测定的角度响应函数 $f(\theta)$ ^[4]:

$$Q_{sp} = \frac{1}{x^2} \int_0 \left[\frac{1}{x^2} \int_{\theta} |S(\theta, x, \bar{m})|^2 f(\theta) d\theta \right] d\theta。 \quad (3)$$

由气溶胶散射系数的定义,TSI3563 浊度计观测的散射系数为

$$\begin{aligned} \sigma_{sp} &= \int_{D_p} \sigma'_{sp} \cdot N(\lg D_p) \cdot d\lg D_p \\ &= \int_{D_p} Q_{sp} \cdot \left(\frac{\pi}{4} D_p^2 \right) \cdot N(\lg D_p) \cdot d\lg D_p \\ &= \int_{D_p} \left[\frac{1}{x^2} \int_{\theta} |S(\theta, x, \bar{m})|^2 f(\theta) d\theta \right] \cdot \\ &\quad \left(\frac{\pi}{4} D_p^2 \right) \cdot N(\lg D_p) \cdot d\lg D_p。 \quad (4) \end{aligned}$$

式(4)中, σ'_{sp} 为气溶胶散射截面, $N(\lg D_p)$ 为实测的气溶胶数浓度谱分布。若将式(4)中的角度响应函数 $f(\theta)$ 替换为 $\sin\theta$,则可计算出实际的散射系数。利用两次计算的散射系数即可计算得到校正因子 C 。

在计算散射强度函数 $|S(\theta, x, \bar{m})|$ 时,需要知道粒子的复折射指数 \bar{m} ,但这个量无法直接得到,需要

基于气溶胶的化学组分来进行估算。本研究采用气溶胶两组分模型,即按各组分对光吸收性的不同,将气溶胶组分为黑碳和非光吸收成分^[8]。非光吸收成分主要包括硫酸盐、硝酸盐、铵盐、有机碳等,这些成分的复折射指数较为相似,对光的吸收性远小于黑碳。已有文献给出的黑碳的复折射指数差异很大,这里将黑碳的复折射指数假定为这些文献给出的折射指数的平均值 $\bar{m}_{\text{BC}} = 1.80 - 0.54i$ 。非光吸收成分的复折射指数假定为 $\bar{m}_{\text{non}} = 1.55 - 10^{-7}i$ ^[9]。对于气溶胶中不同成分的混合状态,由于没有直接的观测结果,所以本研究假定所有成分均匀内混合,这也是最常用的一种气溶胶混合状态假定^[10]。为了得到均匀混合下气溶胶的复折射指数,这里利用实际观测得到的黑碳质量浓度和气溶胶数浓度谱分布推算得到气溶胶中黑碳的体积混合比

$$f_{\text{BC}} = \frac{M_{\text{BC}}}{\rho_{\text{BC}} \cdot \int_{D_p} \left(\frac{\pi}{6} D_p^3 \right) \cdot N(\lg D_p) \cdot d \lg D_p}, \quad (5)$$

式(5)中, M_{BC} 为观测得到的黑碳质量浓度, ρ_{BC} 为黑碳密度,假定为 $1.5 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$, 则内混合气溶胶的复折射指数可按体积加权平均表示如下:

$$\bar{m} = f_{\text{BC}} \cdot \bar{m}_{\text{BC}} + (1 - f_{\text{BC}}) \cdot \bar{m}_{\text{non}}. \quad (6)$$

1.2 AO98 方法

AO98 方法是 Anderson 和 Ogren 针对 TSI3563 浊度计角度截断和非理想光源误差提出的一种非常巧妙的校正方法^[5]。对于 $5 \mu\text{m}$ 以下的粒子,随着粒子粒径的增大,其前向散射占总散射的比例也会单调增加,而这部分前向散射正是被截断而无法观测到的部分。因此,随着粒子粒径的增大,校正因子 C 也会相应增大。也就是说,在实际观测中,校正因子 C 决定于所观测气溶胶的粒径分布。 \AA ngström 指数(α)正是与气溶胶粒径分布相关的量。Schuster 等^[11]指出, \AA ngström 指数对于气溶胶有效半径和亚微米粒子占有所有粒子的体积比非常敏感。还有

研究指出,气溶胶数谱处于粗粒子主导时, \AA ngström 指数小于 1; 而处于细粒子主导时, \AA ngström 指数大于 2^[12-13]。因此,AO98 方法将校正因子 C 参数化为相应波长 \AA ngström 指数的一次函数,即

$$C_i = a_i + b_i \cdot \alpha_i, \quad (7)$$

式(7)中, C 为散射系数校正因子, α 为 \AA ngström 指数, a 和 b 为已确定参数, i 表示不同波长。由于 TSI3563 浊度计同时测量 450, 550 nm 和 700 nm 的散射系数,所以 \AA ngström 指数并不需要额外的观测,而可以直接用浊度计自身观测的 3 个波段散射系数推算:

$$\alpha_{450 \sim 550 \text{ nm}} = \frac{\lg(\sigma_{450 \text{ nm}} / \sigma_{550 \text{ nm}})}{\lg(550/450)}, \quad (8)$$

$$\alpha_{450 \sim 700 \text{ nm}} = \frac{\lg(\sigma_{450 \text{ nm}} / \sigma_{700 \text{ nm}})}{\lg(700/450)}, \quad (9)$$

$$\alpha_{550 \sim 700 \text{ nm}} = \frac{\lg(\sigma_{550 \text{ nm}} / \sigma_{700 \text{ nm}})}{\lg(700/550)}. \quad (10)$$

其中, $\sigma_{450 \text{ nm}}$, $\sigma_{550 \text{ nm}}$ 和 $\sigma_{700 \text{ nm}}$ 分别为 TSI3563 浊度计在 3 个波长下测量的气溶胶散射系数。式(7)中 3 个波长下的参数 a 和 b 已通过理论计算估计得到。Anderson 等随机生成了一系列双模态的气溶胶数浓度谱分布,同时假定气溶胶复折射指数在某一范围内变化^[5]。利用 Mie 散射模型计算了每个谱分布下 3 个波段的校正因子和 \AA ngström 指数。将校正因子与 \AA ngström 指数进行线性拟合,即得到了 3 个波长下的参数,如表 1 中所示。在实际观测中,常在采样口对气溶胶粒径进行切割,通常的切割方式是 PM_{10} 和 PM_{10} ,即除去 $1 \mu\text{m}$ 以上和 $10 \mu\text{m}$ 以上的粒子。由于校正因子对于气溶胶粒径非常敏感,文献^[5]对 PM_{10} 切割和 PM_{10} 切割这两种采样方式分别给出了参数 a 和 b 。

表 1 Anderson 和 Ogren 提出的校正公式中所用参数^[5]

Table 1 Parameters used in the correction function of Anderson and Ogren's method(from Reference [5])

参数	450 nm		550 nm		700 nm	
	PM_{10} 切割					
a	1.365	1.165	1.337	1.152	1.297	1.120
b	-0.156	-0.046	-0.138	-0.044	-0.113	-0.035
C_{ave}	1.290	1.094	1.290	1.073	1.260	1.049

除此之外,文献^[5]还给出了通过理论计算得到的所有可能的校正因子变化范围的平均值(C_{ave}),如

表 1 所示。这里将利用这些常数 C_{ave} 进行校正也作为一种潜在的校正方法,在下文中进行讨论。

1.3 关于现有方法的讨论

1.3.1 基于 Mie 散射模型模拟浊度计测量的校正方法

对于 TSI3563 浊度计的角度截断和非理想光源误差校正,一般认为基于 Mie 散射模型模拟浊度计测量的校正方法是最为理想的校正方法。这种方法基于单个粒子的散射行为,同时考虑了浊度计由角度截断和非理想光源造成的角度响应,因此在物理上是正确的。

但该方法也存在一些问题:首先,气溶胶的复折射指数较难获得。本文借助同期观测的黑碳浓度,基于气溶胶两组分假定,加权平均得到气溶胶的复折射指数。对于黑碳和非光吸收成分各自的复折射指数,则需要根据已有文献进行假定,这必然会给校正结果带来一定的不确定性。如果没有同期黑碳浓度的观测,则需要直接对气溶胶的复折射指数进行估计,会给校正带来更大的不确定性。其次,计算中对气溶胶混合状态的假定可能与实际不符。气溶胶中各组分的混合方式在一定程度上决定了气溶胶的光学性质^[14]。对于气溶胶两组分假定,常用的混合状态假定有均匀内混合、外混合和核-壳混合 3

种^[9],但实际气溶胶的混合状态可能远比这 3 种理想模型复杂。混合状态模型与实际情况间的差异也会给校正结果带来一定的不确定性。第三,Mie 模型中的一个基本假定是粒子为球形,但该假定在某些情况下可能不成立。积聚模态的气溶胶是由核模态的气溶胶经过碰并和凝结增长形成的,一般认为它们可以较好地符合球形粒子的假定。然而,核模态新鲜排放的黑碳和粗模态的沙尘粒子并不符合球形假定^[15-16],但在一般情况下,这两部分粒子对气溶胶整体光学性质的贡献较小,因此可以忽略其形状的影响^[9]。而在某些特殊天气情况下,例如浮尘、扬沙或沙尘暴天气,沙尘粒子对气溶胶光学的贡献比例可能很大,其形状因素对校正因子的计算可能会造成较大影响。

为了检验该方法对于上述假定和假设的敏感性,这里将依次改变上述假设参数和假定,重新计算整个观测期间的校正因子,得到平均的校正因子变化量。本文共设计了 9 种情形,包含一个初始情形,分别改变非光吸收成分的复折射指数、黑碳的复折射指数以及非光吸收成分的和黑碳的混合方式,如表 2 所示。

表 2 不同参数设置下 550 nm 校正因子 C_{550} 的夏季平均值及与参考情形的相对偏差

情形	$m_{r,non}$	$m_{i,non}$	$m_{r,BC}$	$m_{i,BC}$	混合状态	C_{550}	相对偏差/%
参考情形	1.53	10^{-7}	1.75	0.55	部分内混合、部分外混合	1.1174	0
情形 1	1.50	10^{-7}	1.75	0.55	部分内混合、部分外混合	1.1208	0.30
情形 2	1.55	10^{-7}	1.75	0.55	部分内混合、部分外混合	1.1150	-0.21
情形 3	1.53	10^{-7}	1.50	0.55	部分内混合、部分外混合	1.1190	0.14
情形 4	1.53	10^{-7}	2.00	0.55	部分内混合、部分外混合	1.1157	-0.15
情形 5	1.53	10^{-7}	1.75	0.44	部分内混合、部分外混合	1.1169	-0.04
情形 6	1.53	10^{-7}	1.75	0.66	部分内混合、部分外混合	1.1177	0.03
情形 7	1.53	10^{-7}	1.75	0.55	均匀内混合	1.1178	0.04
情形 8	1.53	10^{-7}	1.75	0.55	外混合	1.1171	-0.03

由表 2 可以看到,上述问题对于校正因子计算结果的影响有限。由于黑碳或非光吸收成分的复折射指数假定的不确定性给校正因子计算结果带来的影响仅为 0.3% 左右,而混合状态假定的不确定性给计算结果带来的影响小于 0.1%。因此,在非沙尘天气条件下,利用 Mie 散射模型模拟浊度计测量的校正方法是最为理想的方法。下文也将该方法作为参考方法,来评估其他方法的校正效果。

对于利用 Mie 散射模型模拟浊度计测量的校正方法,其应用的最大困难在于需要有同期观测的气溶胶数浓度谱分布。而气溶胶数浓度谱分布的观

测需要额外的仪器系统,日常维护和数据处理较为复杂,因此国内观测规模很小。所以,大多数气溶胶散射系数观测均无条件利用该方法进行校正。

1.3.2 AO98 方法

AO98 方法的优势在于不需要额外的观测数据,仅使用浊度计自身观测的散射系数即可得到校正因子,算法简单,易于实现。因此,是应用最为广泛的 TSI3563 浊度计角度截断和非理想光源误差校正方法。

但该方法存在很大问题。AO98 方法从根本上讲属于经验性的参数化方法,它将校正因子 C 参数

化为 Ångström 指数的一次函数。但事实上,校正因子 C 与 Ångström 指数虽然都决定于气溶胶的数浓度谱分布,但两者间并不存在明确的依赖关系。AO98 方法中参数化方案的系数 a 和 b 是 Anderson 和 Ogren 基于一系列假定的气溶胶谱分布,在 Mie 散射模型计算结果的基础上通过拟合得到的^[5]。在随机生成气溶胶谱分布时,气溶胶体积谱分布被假定为双模态对数正态分布,两个模态的几何标准差固定为 1.8,第 1 个模态的几何平均粒径为 0.2~0.4 μm 之间的随机值,第 2 个模态的几何平均粒径为 2~4 μm 之间的随机值。粒子的复折射指数实部在 1.40~1.52 之间取值,虚部在 0.00~0.01 之间取值。也就是说,AO98 方法中给出的系数 a 和 b 是基于上述生成的气溶胶谱分布样本计算得到的,

可能仅适用于满足或接近上述条件的实测样本。如果实际观测的气溶胶谱分布与上述谱分布假定差异较大,那么该方法对于校正因子 C 的参数化可能不再成立,利用该方法得到的校正因子 C 也将存在偏差。

对于 HaChi 冬季和夏季观测得到的约 7000 个 3 nm~10 μm 粒径范围的气溶胶数浓度谱分布,利用基于 Mie 散射模型模拟浊度计的校正方法计算得到了每个数谱对应的 3 个波段的校正因子,如图 1 所示。每个数谱对应的 Ångström 指数也由 Mie 散射模型模拟浊度计计算得到。由图 1 可以看到,由于 Ångström 指数主要决定于气溶胶数浓度谱分布^[12-13],因此 3 个波长下 Ångström 指数的分布非常相似。图 1 中黑色实线为 AO98 方法对于无粒径切割测量的校正因子参数化方案,黑色虚线为 AO98

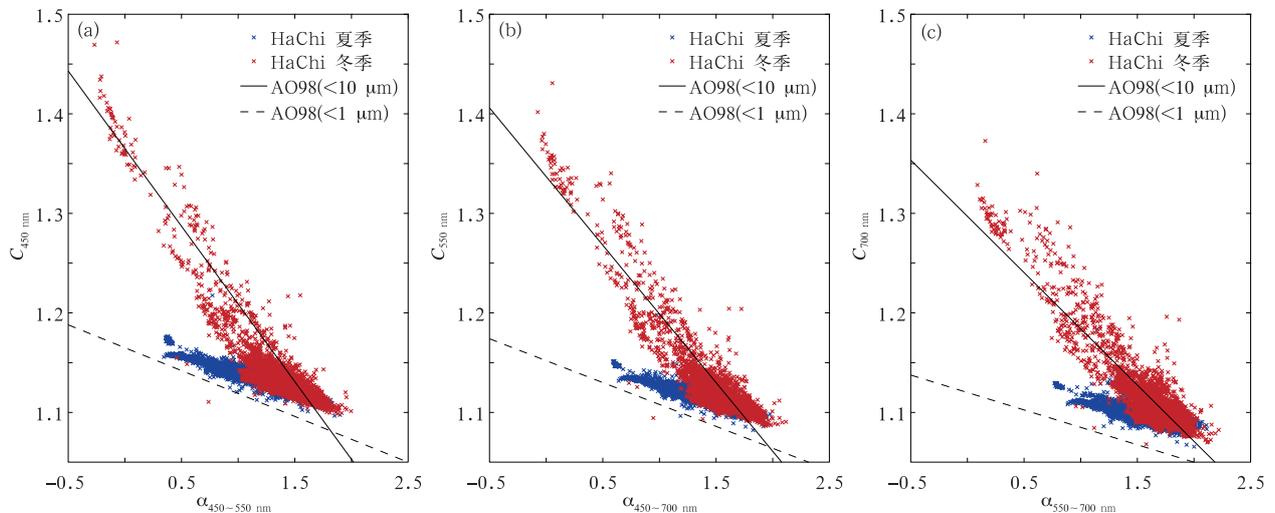


图 1 基于 HaChi 观测数据计算得到的 3 个波长下 TSI3563 型浊度计校正因子和 Ångström 指数

Fig. 1 Relationship between the correction factor and Ångström exponent calculated based on HaChi measurements

方法对于 PM_{10} 粒径切割测量的校正因子参数化方案。对于 3 个浊度计观测波长,除了少数冬季样本点接近黑色实线外,大部分点都偏离黑色实线,即偏离 AO98 无粒径切割测量校正方案。样本点分布最为密集的区域具有与黑色虚线相似的斜率,但也显著偏离黑色虚线,即偏离 AO98 方法中 PM_{10} 粒径切割测量校正方案。在华北平原,与人类活动相关的一次气溶胶排放和气溶胶前体气体排放量均较高,使得华北平原成为全世界气溶胶污染最为严重的区域之一。该地区气溶胶数谱分布也因此具有一定的独特性,亚微米粒子体积占气溶胶总体积的比例较高,因此 AO98 方法中基于一些假定谱分布得到的

对于校正因子的参数化方案不再适用。将 AO98 方法直接应用于华北平原这样的高污染地区会给散射系数测量带来较大的偏差。

2 改进的 TSI3563 积分式浊度计校正方法

2.1 对 AO98 方法的改进

本节将在 AO98 方法的基础上,提出一种改进的 TSI3563 积分式浊度计校正因子的参数化方法。由之前的讨论可知,AO98 方法对校正因子的参数化是基于一些假定的数谱分布得到的,由于假定的数谱变化较小,代表性较差,所以不适用于像华北平

原这样的高气溶胶污染地区。

与 AO98 方法类似,为了得到更优的校正因子参数化方案,本研究也假定了一系列气溶胶谱分布计算得到校正因子和 Ångström 指数间的关系。气溶胶体积谱分布被假定为双模态对数正态分布,两个模态的几何标准差均固定为 1.8,第 1 个模态的几何平均粒径在 100~500 nm 范围内随机生成,第 2 个模态的几何平均粒径在 1~5 μm 范围内随机生成,第 1 模态和第 2 模态的体积比在 0~0.7 之间随机取值。在对粒子复折射指数进行假定时,采用气溶胶辐射光学计算中常用的两组分模型,即假定干燥状态下气溶胶由黑碳和非光吸收成分构成^[8]。如 1.1 节所述,假定黑碳成分的复折射指数为 $\tilde{m}_{\text{BC}} = 1.80 - 0.54i$,假定非光吸收成分的复折射指数为 $\tilde{m}_{\text{non}} = 1.55 - 10^{-7}i$ 。假定气溶胶混合状态为均匀内混合,黑碳的体积比在 0~0.2 内随机取值,粒子的复折射指数由两组分体积加权平均得到。

图 2 展示了利用随机生成的 50000 个数谱计算得到的校正因子和 Ångström 指数的关系,点的颜色表示数谱对应的大于 1 μm 粒子体积占总体积的比例(f_{vsm})。图中彩色实线为利用式(11)进行拟合的结果,黑色实线为 AO98 无粒径切割观测校正函数,黑色虚线为 AO98 PM₁ 粒径切割观测校正函数。由于 450 nm,550 nm 和 700 nm 波长下的结果非常类似,图 2 只给出了 550 nm 波长的结果。由图 2 可以看到,样本点的分布非常离散,与理想的线性分布相差较远。因此,AO98 方法中将无粒径切割观测时的校正因子参数化为 Ångström 指数的线性函数必然会带来较大误差。将所有样本的 f_{vsm} 以 0.1 为间隔用不同颜色区分后可以看到,样本点的分布与 f_{vsm} 关系密切,同样 f_{vsm} 范围内的样本点呈准线性分布。当 f_{vsm} 接近于 0 时,样本点与 AO98 方法中 PM₁ 粒径切割观测的校正因子参数化方案基本符合。

考虑到校正因子对于 f_{vsm} 的依赖关系,这里将 f_{vsm} 包含在校正因子的参数化方案里,根据 f_{vsm} 值所处的范围,分别给出校正因子对于 Ångström 指数的校正函数。另外,为了更好地拟合样本点,这里还将 AO98 方法中的线性函数变为二次函数,即

$$C = a \cdot \alpha^2 + b \cdot \alpha + c. \quad (11)$$

其中,系数 a, b 和 c 根据 f_{vsm} 所处的范围取不同值。

对之前生成的 50000 个样本按 f_{vsm} 值所在范围分别进行拟合,得到了不同 f_{vsm} 范围下的系数 a, b 和 c 的值,如表 3 所示。需要说明的是,这里将 f_{vsm} 按 0.1 间隔分档是经验性的,如果分档更细可能效果会更好,但系数 a, b 和 c 的量也将大大增加。考虑到校正的实际效果(见 2.2 节),本文认为按 0.1 对 f_{vsm} 进行分档已经可以达到较好的校正效果。

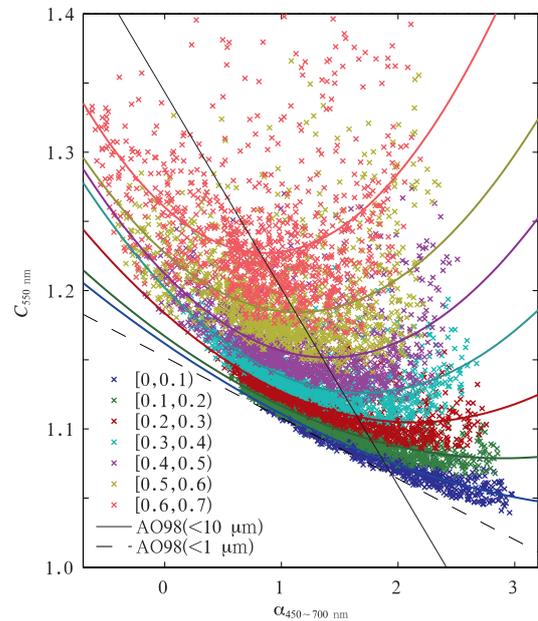


图 2 基于随机生成的气溶胶谱分布计算得到的 550 nm 下浊度计校正因子和 Ångström 指数的关系

Fig. 2 Relationship between the correction factor and Ångström exponent at 550 nm wavelength calculated from randomly generated aerosol number size distributions

另外,本方案中给出的最大 f_{vsm} 范围为 0.6~0.7,未给出 f_{vsm} 在 0.7 以上时的校正因子参数化结果。由图 2 可以看到,随着 f_{vsm} 的增大, f_{vsm} 每一档对应的样本点分散程度也逐渐增加,即拟合得到的参数化曲线对于实际样本的代表性越来越差。在华北平原,一般情况下 f_{vsm} 均在 0.5 以下,因此,这里只给出 $f_{\text{vsm}} < 0.7$ 时的校正因子参数化方案。对于一些极端情况,如沙尘天气,该方法可能不再适用。

在实际应用中, f_{vsm} 可由各类 PM 监测仪得到。通常这些仪器给出的均为气溶胶质量浓度,在对气溶胶密度进行假定后,可得到体积浓度,从而计算出 f_{vsm} ,应用于上述浊度计误差校正方法中。

表3 改进的校正方法中校正函数对于不同 f_{vsm} 范围的参数选择
Table 3 Parameters for different f_{vsm} range used in the improved method

f_{vsm}	450 nm			550 nm			700 nm		
	a	b	c	a	b	c	a	b	c
[0.0, 0.1)	0.0073	-0.0630	1.1738	0.0069	-0.0577	1.1617	0.0078	-0.0536	1.1450
[0.1, 0.2)	0.0095	-0.0648	1.1794	0.0105	-0.0609	1.1670	0.0162	-0.0665	1.1559
[0.2, 0.3)	0.0136	-0.0727	1.1930	0.0174	-0.0741	1.1836	0.0302	-0.0959	1.1833
[0.3, 0.4)	0.0206	-0.0878	1.2127	0.0265	-0.0898	1.2020	0.0419	-0.1088	1.1959
[0.4, 0.5)	0.0275	-0.0990	1.2334	0.0310	-0.0865	1.2120	0.0442	-0.0868	1.1904
[0.5, 0.6)	0.0310	-0.0994	1.2554	0.0329	-0.0751	1.2273	0.0445	-0.0604	1.1967
[0.6, 0.7)	0.0443	-0.1155	1.2951	0.0443	-0.0765	1.2602	0.0531	-0.0442	1.2220

2.2 改进的 AO98 方法的校正效果

为了评估改进后的方法的校正效果,本节将基于 HaChi 观测期间得到的约 7000 个气溶胶谱分布样本,利用改进后的方法计算 TSI3563 浊度计 3 个工作波段下的散射系数校正因子,并与参考方法计算结果进行比较。同时,为了比较各种方法的校正效果,这里还给出了其他校正方法结果与参考方法的差异。校正因子的参考值由 2.1 节介绍的 Mie 散射模型模拟浊度计的方法利用实测谱分布计算得到。需要说明的是,本节中的计算完全基于实际测量的 3 nm~10 μm 粒径范围内的气溶胶谱分布样本,AO98 方法和改进方法中所需的 Ångström 指数由 Mie 散射模型计算得到,改进方法中所需的 f_{vsm} 由气溶胶谱分布直接计算得到。

图 3 展示了基于 7000 个观测谱分布计算得到

的 3 个波段下各方法校正结果与参考方法校正结果之间差异的频率分布。除了 AO98 无粒径切割观测的校正方法和上文给出的改进方法,作为参考,这里还给出了其他一些校正方案的结果,包括 AO98 PM₁ 粒径切割观测的校正利用 AO98 给出的平均校正因子进行校正、以及不进行校正的结果。

由图 3 可以看到,若不对浊度计观测的散射系数进行校正,那么散射系数相对于参考值将偏低 10% 左右。如果利用 AO98 无粒径切割观测校正方法对散射系数进行校正,那么得到的散射系数相对于参考值普遍偏大,且校正结果相对于参考值偏差的分布较宽,对于 550 nm 波段来说,偏差分布于 -3%~8% 之间。而如果利用 2.1 节提出的改进方法进行校正,结果相对于参考值来说偏差分布非常窄,且基本以 0 为中心。

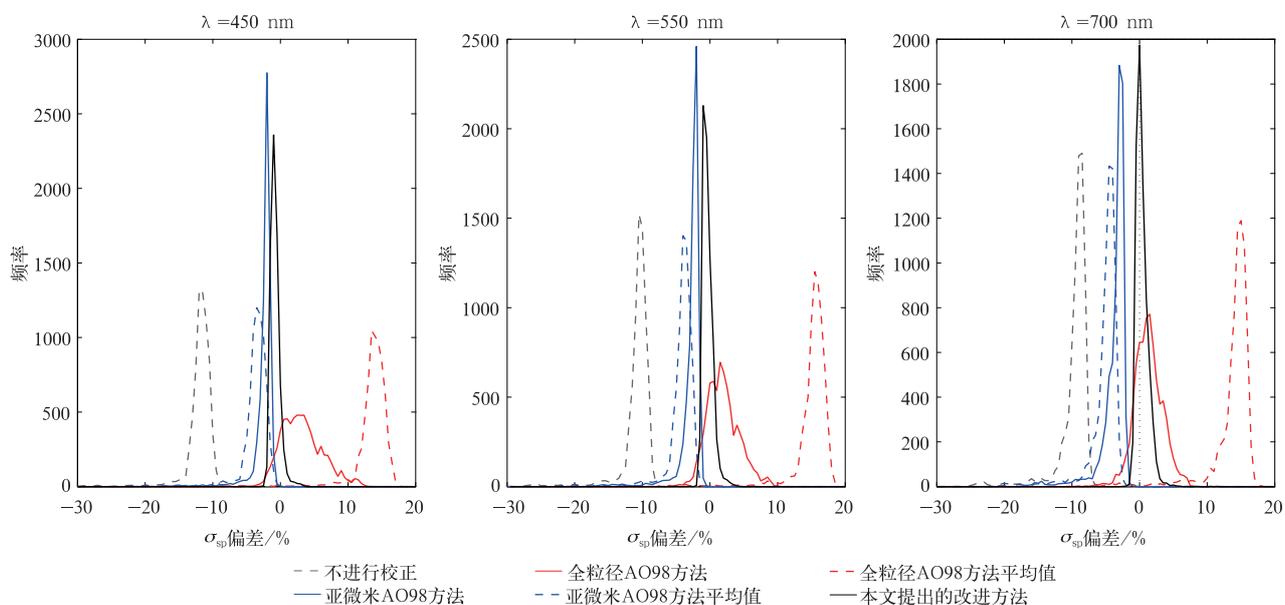


图3 基于观测的气溶胶谱分布计算的不同方法校正结果与参考值差异的频率分布

Fig. 3 Frequency distributions of the bias between correction factor calculated with different methods and reference values

作为参考,这里还利用 AO98 PM_{10} 粒径切割观测校正方法对本研究中的全粒径观测进行校正,由图 3 可以看到,虽然使用了针对亚微米粒子的校正方法,但校正结果非常好。校正后的散射系数相对于参考值偏差平均约为-2%,且偏差分布非常窄。如 1.3.2 节所述,由于人为污染严重,在大多数情况下华北平原的气溶胶分布中亚微米粒子的比例非常高,所以气溶胶的光学特性事实上主要是由亚微米粒子主导的。因此,应用针对亚微米测量的 AO98 方法反而会得到更好的校正结果。但这并不代表在华北平原可以直接使用针对亚微米测量的 AO98 方法进行全粒径段观测的校正,因为在华北平原也会出现超微米粒子较多的情况,如果一概使用针对亚微米测量的 AO98 方法,在这种情况下校正结果将出现较大偏差。另外,图 3 还展示了利用 AO98 方法给出的校正因子平均值进行校正的结果相对于参考值的偏差分布。可以看到,如果使用恒定校正系数对散射系数进行校正,校正结果与参考值偏差的

分布较宽,且都不同程度地偏离 0。

为了更好地衡量各个校正方法的优劣,图 4 统计了各个方法校正结果相对于参考值偏差小于某一值的样本百分率。由图 4 可以更清晰地看到,改进方法的校正效果明显优于其他方法。对于 550 nm 的情况而言,改进方法 80% 的校正结果偏差小于 1%,几乎 100% 的校正结果偏差小于 3%。其他方法的校正结果明显劣于改进方法的结果。对于 AO98 无粒径切割观测校正方法的结果,只有 30% 的样本偏差小于 1%,之后该比例随偏差的放宽逐渐增大,偏差小于 9% 的样本比例接近于 100%。而对于 AO98 PM_{10} 粒径切割观测校正方法来说,偏差小于 1% 的样本比例为 0,之后这个比例随偏差放宽迅速增大,90% 的样本偏差小于 4%。但需要注意的是,这个比例直到偏差值接近 20% 时才接近 100%。总体来讲,虽然改进的方法在不同波段上的表现略有差异,但均明显优于其他所有方法的校正效果。

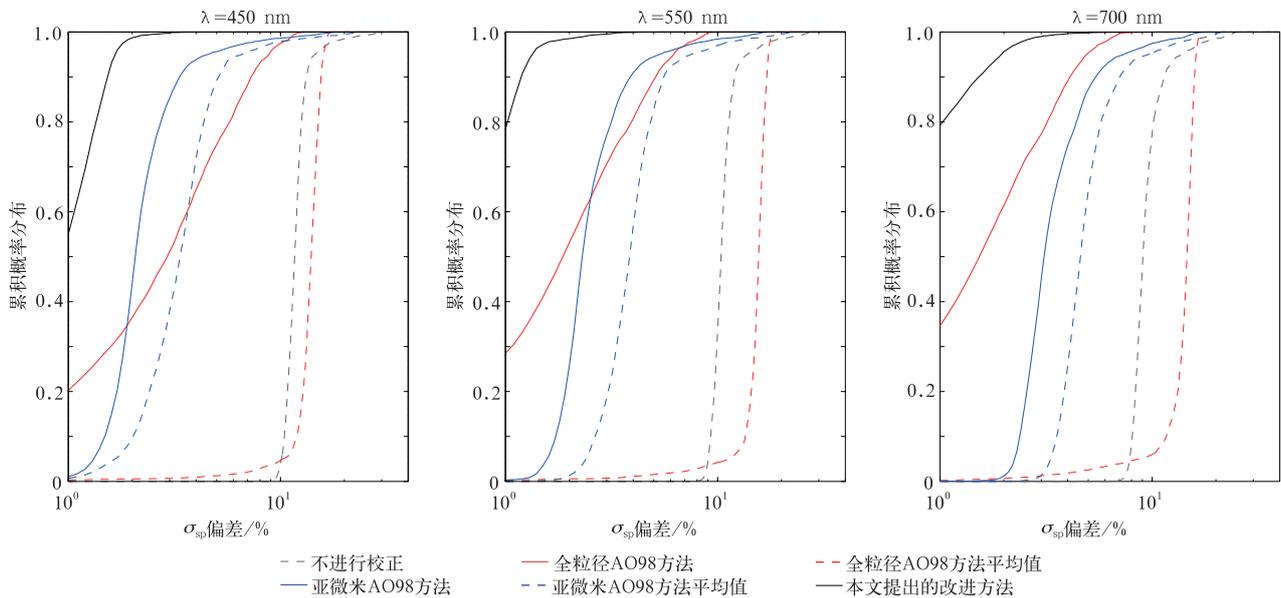


图 4 基于观测的气溶胶谱分布计算的不同方法校正结果与参考值差异的累积概率分布

Fig. 4 Cumulative distribution function of the bias between correction factor calculated with different methods and reference values

3 结 论

本研究基于 2009 年华北平原 HaChi 气溶胶外场观测中得到的气溶胶谱分布数据对 AO98 和基于 Mie 散射计算两种校正方法进行测试发现,由于华

北平原气溶胶污染严重,亚微米粒子比例很高,与 AO98 方法建立时所基于的假设并不相符,造成 AO98 校正方法的结果与作为参考的 Mie 方法结果相比差异较大且分布较宽。为此,本研究在 AO98 方法的基础上提出了一种改进的校正方法,利用同时观测的 PM_{10} 和 PM_{10} 数据,在校正方案中加入超

微米粒子体积比这一参量,对于不同的体积比采用不同的校正函数。利用实际观测的气溶胶谱分布数据测试后发现,新方法给出的校正系数与作为参考的 Mie 方法结果差异非常小,80%的样本差异在1%以内,几乎所有的样本与参考方法结果的差异都在3%以内。

本研究的主要结论如下:

1) 在气溶胶污染非常严重的华北平原地区,由于亚微米粒子比例较高,应用 AO98 无粒径切割观测校正方法校正 TSI3563 浊度计数据可能会带来高达10%的误差,因此需要谨慎使用。

2) 本研究提出了一种改进的 TSI3563 浊度计校正方法,可以给出非常接近于作为参考的 Mie 方法结果的校正因子,但改进的方法需要额外观测的 PM_{10} 和 $PM_{2.5}$ 体积浓度。因此,建议在对 TSI3563 型浊度计角度截断和非理想光源误差进行校正时,若有同时观测的气溶胶全粒径段谱分布,则应选择 Mie 方法进行校正;若没有谱分布观测,但有 PM_{10} 和 $PM_{2.5}$ 观测,则选择本文给出的改进方法;若没有上述观测资料,则可选择 AO98 对于无粒径切割观测的校正方法。

参考文献

- [1] Charlson R J, Schwartz S E, Hales J M, et al. Climate forcing by anthropogenic aerosols. *Science*, 1992, 255 (5043): 423-430.
- [2] Mishchenko M I, Cairns B, Hansen J E, et al. Monitoring of aerosol forcing of climate from space: Analysis of measurement requirements. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 2004, 88(1): 149-161.
- [3] Heintzenberg J, Charlson R J. Design and applications of the integrating nephelometer: A review. *J Atmos Ocean Technol*, 1996, 13(5): 987-1000.
- [4] Anderson T L, Covert D S, Marshall S F, et al. Performance characteristics of a high-sensitivity, three-wavelength, total scatter/backscatter nephelometer. *J Atmos Ocean Technol*, 1996, 13(5): 967-986.
- [5] Anderson T L, Ogren J A. Determining aerosol radiative properties using the TSI 3563 integrating nephelometer. *Aerosol Science and Technology*, 1998, 29(1): 57-69.
- [6] Birmili W, Stratmann F, Wiedensohler A. Design of a DMA-based size spectrometer for a large particle size range and stable operation. *J Aerosol Sci*, 1999, 30(4): 549-553.
- [7] Mie G. Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen. *Annalen der Physik*, 1908, 330(3): 377-445.
- [8] Wex H, Neusüß C, Wendisch M, et al. Particle scattering, backscattering, and absorption coefficients: An in situ closure and sensitivity study. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* (1984-2012), 2002, 107(D21): LAC 4-1-LAC 4-18.
- [9] Ma N, Zhao C S, Müller T, et al. A new method to determine the mixing state of light absorbing carbonaceous using the measured aerosol optical properties and number size distributions. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2012, 12(5): 2381-2397.
- [10] Ma N, Zhao C S, Nowak A, et al. Aerosol optical properties in the North China Plain during HaChi Campaign: An in-situ optical closure study. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2011, 11(12): 5959-5973.
- [11] Schuster G L, Dubovik O, Holben B N. Angstrom exponent and bimodal aerosol size distributions. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* (1984-2012), 2006, 111(D7), doi:10.1029/2005JD006328.
- [12] Eck T F, Holben B N, Reid J S, et al. Wavelength dependence of the optical depth of biomass burning, urban, and desert dust aerosols. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* (1984-2012), 1999, 104(D24): 31333-31349.
- [13] Westphal D L, Toon O B. Simulations of microphysical, radiative, and dynamical processes in a continental-scale forest fire smoke plume. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* (1984-2012), 1991, 96(D12): 22379-22400.
- [14] Khalizov A F, Xue H, Wang L, et al. Enhanced light absorption and scattering by carbon soot aerosol internally mixed with sulfuric acid. *The Journal of Physical Chemistry A*, 2009, 113(6): 1066-1074.
- [15] Katrinak K A, Rez P, Perkes P R, et al. Fractal geometry of carbonaceous aggregates from an urban aerosol. *Environmental Science & Technology*, 1993, 27(3): 539-547.
- [16] Okada K, Heintzenberg J, Kai K, et al. Shape of atmospheric mineral particles collected in three Chinese arid-regions. *Geophys Res Lett*, 2001, 28(16): 3123-3126.

A Modified Method to Correct the Measurement Error of TSI3563 Integrating Nephelometer

Ma Nan¹⁾ Zhou Xiuji¹⁾²⁾ Yan Peng³⁾ Zhao Chunsheng¹⁾

¹⁾ (*Department of Atmospheric and Oceanic Sciences, School of Physics, Peking University, Beijing 100871*)

²⁾ (*Chinese Academy of Meteorological Sciences, Beijing 100081*)

³⁾ (*Meteorological Observation Center of CMA, Beijing 100081*)

Abstract

TSI3563 integrating nephelometer is designed for high-quality in-situ aerosol scattering measurement, which is widely used all over the world. However, the scattering coefficient measured by TSI3563 nephelometer contain two systematic errors: The truncation error (i. e., the geometrical blockage of near-forward/backward-scattered light) and the non-Lambertian error (i. e., the slightly non-cosine weighted intensity distribution of illumination light provided by the opal glass diffusor). These errors need to be corrected since they can typically cause a bias of about 10% in the measured scattering coefficient. Based on the aerosol properties measured in North China Plain during Hachi (Haze in China) Project, the correction factor is calculated with a traditional method and the Mie model (taken as reference) which requires aerosol number size distribution and refractive index as input. The traditional correction method is widely used all over the world since it requires only data from nephelometer itself. However, results show the traditional method cannot provide a good estimation of the correction factor. Due to the high concentration of submicron aerosol in PM₁₀, aerosol number size distributions measured in North China Plain are different from those assumed in the traditional method. The traditional correction method is therefore inadequate for high-aerosol pollution region like North China Plain. It is found that the correction factor is sensitive on the volume fraction of supermicron aerosol in PM₁₀. Higher volume fractions would lead to higher correction factors.

A modified correction method is proposed. The volume fraction of supermicron aerosol which can be obtained from PM₁ and PM₁₀ measurement is used in the new method. For different volume fractions, different parameters are chosen for the calculation of correction factors. Testing with aerosol properties measured in North China Plain, the modified method provided a good estimation of the correction factors. 80% of correction factors calculated with the modified method are with a bias less than 1% and 100% are with a bias less than 3%. Compared with the traditional method, a distinct improvement is found in correction results. It suggests that to estimate the correction factor for TSI3563 nephelometer measurement, the Mie model should be the first choice if a real-time measurement of aerosol number size distribution is available. Otherwise, the modified method proposed should be used if a real-time PM₁ and PM₁₀ measurement is available. Without those parallel measurements, the traditional method can be the last choice to estimate the correction factor.

Key words: aerosol scattering coefficient; TSI3563 integrating nephelometer; truncation and non-Lambertian error