

Нефелометрический метод измерения массовых концентраций городских аэрозолей и их респирабельных фракций

С.А. Лысенко, М.М. Кугейко*

Белорусский государственный университет
220030, г. Минск, пр. Независимости, 4, Беларусь

Поступила в редакцию 27.09.2013 г.

Предложен метод определения массовых концентраций взвешенных в воздухе частиц размерами ≤ 1 ; $\leq 2,5$; ≤ 10 и > 10 мкм по измеренным коэффициентам рассеяния света исследуемым объемом воздуха на длинах волн $\lambda_1 \leq 0,55$ и $\lambda_2 \geq 1,0$ мкм для углов рассеяния $\theta_1 \leq 5^\circ$ и $\theta_2 = 15 \div 45^\circ$. Массовые концентрации взвешенных частиц рассчитываются на основе их устойчивых статистических связей с измеряемыми коэффициентами. Для получения аналитических выражений, аппроксимирующих эти связи, использовалась оптико-микрофизическая модель городского аэрозоля, принятая Всемирной метеорологической организацией, с варьируемыми концентрациями, параметрами распределения по размерам и комплексными показателями преломления частиц аэрозольных компонентов (сажевой, водорастворимой и пылевой). Проведено сравнение статистических связей, получаемых в модельном приближении, с независимыми расчетными и экспериментальными данными. Оценены погрешности метода в условиях общей вариативности микрофизических параметров городского аэрозоля.

Ключевые слова: городской аэрозоль, массовые концентрации, нефелометрический метод, множественные регрессии; urban aerosol, mass concentration, nephelometric method, multiple regressions.

Введение

В настоящее время проблемы экологии волнуют жителей всех крупных городов и районов с развитой промышленностью и интенсивным автотранспортным движением. Результаты многочисленных эпидемиологических исследований однозначно указывают на взаимосвязь загрязнения воздуха с уровнем сердечно-сосудистых и респираторных заболеваний у населения. Серьезную угрозу для здоровья человека представляют взвешенные в воздухе аэрозольные частицы и в первую очередь мелкодисперсные (респирабельные), способные глубоко проникать в органы дыхательной системы человека и накапливаться в легких (вливая тем самым на поступление вредных веществ в кровь). Согласно американским и европейским стандартам по качеству атмосферного воздуха уровень загрязненности воздуха респирабельными частицами характеризуется массовыми концентрациями PM_x частиц с аэродинамическим диаметром $x \leq X$, где $X = 1,0; 2,5$ и 10 мкм.

Традиционные методы контроля загрязнений атмосферного воздуха взвешенными частицами включают осаждение частиц на волокнистом фильтре и исследование осадка. Их преимущество состоит в воз-

можности прямого измерения массовой концентрации аэрозоля. К недостаткам следует отнести длительность и трудоемкость измерений, необходимость высокой квалификации персонала. Для непрерывного и автоматизированного мониторинга аэрозольного загрязнения воздуха наиболее подходящими являются оптические измерители, которые можно разделить на два типа. Первый тип основан на использовании данных светорассеяния от всего исследуемого объема воздуха, а второй — на анализе света, рассеянного одиночной частицей.

Принцип действия измерителей первого типа заключается в посылке лазерного излучения с длиной волны λ в измерительную камеру и регистрации рассеянного света фотоприемником, расположенным под углом θ по отношению к источнику излучения. К таким измерителям относятся серийно выпускаемые приборы Аэрокон-П ($\lambda = 0,67$ мкм, $\theta = 45^\circ$), Аэрокон-С ($\lambda = 0,67$ мкм, $\theta = 20^\circ$), KANOMAX-3431 ($\lambda = 0,78$ мкм, $\theta = 70^\circ$), TM-data ($\lambda = 0,88$ мкм, $\theta = 70^\circ$) и ряд других аналогичных им приборов. Длины волн и углы, используемые в известных приборах, определяют максимальную чувствительность результатов измерений к массовой концентрации субмикронного аэрозоля [1–3]. Это накладывает принципиальные ограничения на применение данных приборов для измерения концентрации мелких и крупных частиц аэрозоля (PM_1 , PM_{10} и $PM_{>10}$), поскольку в измерительном сигнале преобладает вклад фракции $PM_{2,5}$.

* Сергей Александрович Лысенко (lisenko@bsu.by); Михаил Михайлович Кугейко (kugeiko@bsu.by).

Для измерения малых концентраций пыли в атмосферном воздухе и в воздухе помещений высокой чистоты широко используются оптические измерители второго типа (счетчики частиц). В них отдельные частицы протягиваются через сфокусированный лазерный луч и регистрируется свет, рассеянный каждой частицей. Интенсивность светового импульса позволяет оценить некоторый эквивалентный размер частицы, а количество световых импульсов определяет число аэрозольных частиц. Этот принцип заложен, например, в коммерчески доступных приборах AERO TRAK 9303, KANOMAX-3887, Fluke 983 и A3-10. К недостаткам таких счетчиков следует отнести их высокую стоимость (формируемую, главным образом, за счет встроенного вакуумного насоса и сложной оптической схемы), влияние на результат измерений формы и показателя преломления частиц, а также неприемлемо низкую эффективность счета частиц размером $\leq 0,3$ мкм (вследствие большой вероятности попадания в освещаемый объем нескольких таких частиц). Известны также приборы, использующие оптические измерения двух отмеченных выше типов, например GRIMM (модели 180, EDM 107/165 и EDM365) и DUSTTRAK DRX. Такие приборы позволяют выполнять измерение загрязнения воздуха с привязкой к различным фракциям частиц (PM_1 , $PM_{2,5}$, PM_{10}), однако являются слишком дорогостоящими, для того чтобы на их основе можно было создавать автоматизированные сети контроля городского воздуха.

Таким образом, недостатки существующих анализаторов аэрозольных загрязнений воздуха обуславливают необходимость разработки новых, простых и надежных методов, позволяющих выполнять измерения массовой концентрации аэрозоля в широком диапазоне его физико-химических свойств с разделением на фракции PM_1 , $PM_{2,5}$, PM_{10} и $PM_{>10}$.

Метод определения PM_X

Хорошо известно, что вклады частиц разных размеров в суммарную интенсивность рассеянного ими света различаются в зависимости от угла рассеяния θ . Крупные частицы определяют рассеяние под малыми углами ($\theta \leq 5^\circ$), тогда как в боковом рассеянии ($\theta = 15 \div 45^\circ$) преобладает вклад более мелких частиц. Поэтому, регистрируя свет, рассеянный под разными углами, можно выполнять анализ фракционного состава аэрозоля. Кроме того, точность анализа может быть повышена за счет оптимального выбора длины волны света, поскольку наибольшая эффективность рассеяния света соответствует частицам, размер которых близок к длине волны падающего на них излучения.

В связи с вышесказанным для определения концентраций аэрозольных фракций предлагается использовать следующую схему измерений. В измерительный объем последовательно посылается излучение с длинами волн $\lambda_1 \leq 0,55$ и $\lambda_2 \geq 1,0$ мкм, информативными относительно мелкодисперсных и грубодисперсных аэрозольных фракций соответственно. Рас-

сеянный свет улавливается фотоэлементами, установленными под углами $\theta_1 \leq 5^\circ$ и $15^\circ \leq \theta_2 \leq 45^\circ$ к падающему лучу. По детектируемым сигналам определяются коэффициенты аэрозольного светорассеяния $\beta(\lambda_i, \theta_j)$, где $i = 1, 2$ и $j = 1, 2$. Массовые концентрации PM_1 , $PM_{2,5}$, PM_{10} и $PM_{>10}$ рассчитываются путем решения обратной задачи по интерпретации коэффициентов $\beta(\lambda_i, \theta_j)$.

Учитывая малый объем измерительной информации, для решения обратной задачи наиболее предпочтительно использовать регрессионный метод [4, 5], позволяющий рассчитывать искомые микрофизические параметры аэрозоля на основе их множественной регрессии с оптическими характеристиками аэрозоля, измеряемыми в эксперименте. В данном случае коэффициенты $\beta(\lambda_i, \theta_j)$ содержат как спектральную, так и пространственную составляющие информации и не допускают простой одномерной интерпретации, поэтому для удобства их анализа необходимо получить более однородную структуру данных. Значения $\ln\beta(\lambda_i, \theta_j)$ можно рассматривать как компоненты вектора измерений \mathbf{b} . Разложим \mathbf{b} по системе собственных векторов \mathbf{v}_n ($n = 1, \dots, 4$) его ковариационной матрицы, образующих ортогональный базис. Коэффициенты этого разложения ξ_n (линейно-независимые компоненты) любой случайной реализации \mathbf{b} находятся по формуле [6]:

$$\xi_n = \mathbf{v}_n(\mathbf{b} - \bar{\mathbf{b}}), \quad (1)$$

где $\bar{\mathbf{b}}$ — средний вектор измерений с компонентами $\overline{\ln\beta(\lambda_i, \theta_j)}$. Для определения массовых концентраций PM_1 , $PM_{2,5}$, PM_{10} и $PM_{>10}$ можно использовать полиномиальные регрессии вида

$$\ln PM_X = a_{00,X} + \sum_{n=1}^4 \sum_{k=1}^K a_{nk,X} (\xi_n)^k, \quad (2)$$

где K — степень полинома; $a_{00,X}$ и $a_{nk,X}$ — коэффициенты регрессии, получаемые на основе «обучающего» ансамбля случайных реализаций PM_X и $\beta(\lambda_i, \theta_j)$.

Оптико-микрофизическая модель городского аэрозоля

Набор «обучающих» данных, необходимый для нахождения векторов \mathbf{v}_n , $\bar{\mathbf{b}}$ и коэффициентов регрессии (2), сформирован на основе модели городского (или индустриального) аэрозоля, принятой Всемирной метеорологической организацией (ВМО) [7]. В рассматриваемой модели форма частиц аэрозоля предполагается сферической, а их внутренняя структура однородной. Это, с одной стороны, связано с известными трудностями решения задач дифракции электромагнитного излучения на неоднородных и несферических частицах и ограниченной областью применимости получаемых решений. С другой стороны, как будет показано ниже, для определения концентраций рассматриваемых фракций аэрозоля можно ограничиться измерениями интенсив-

ности рассеянного света в области углов $\theta \leq 20^\circ$, в которой индикатриса аэрозольного светорассеяния слабо зависит от структуры и формы рассеивающих частиц [8, 9].

Согласно модели ВМО [7] индустриальный аэрозоль состоит из трех компонентов: сажевого (1), водорастворимого (2) и пылевого (3). Каждому компоненту соответствует своя функция распределения объемов частиц по размерам:

$$\frac{dV_f}{d \ln x} = A_f \exp \left[-\frac{\ln^2(x/x_f)}{2 \ln^2 \sigma_f} \right], \quad (3)$$

где индекс f соответствует различным компонентам аэрозоля; x – диаметр частицы; dV_f – доля объема частиц f -й компоненты в диапазоне размеров $[\ln x, \ln x + d \ln x]$; x_f и σ_f – медианный диаметр и параметр полуширины для каждой моды; A_f – нормировочная константа, выбираемая из условия

$$\gamma_a \int_{x_{f,\min}}^{x_{f,\max}} \frac{dV_f}{d \ln x} d \ln x = \frac{M \mu_f}{\sum_{f=1}^3 \mu_f},$$

M – суммарная массовая концентрация всех компонентов аэрозоля; μ_f – относительная массовая концентрация частиц f -й компоненты; $[x_{f,\min}, x_{f,\max}]$ – диапазон размеров частиц f -й компоненты; γ_a – средняя плотность аэрозольного вещества, принятая в расчетах равной $1,0 \text{ г/см}^3$.

Диапазоны вариаций параметров μ_f , x_f и θ_f , принятые в соответствии с результатами работы [10], приведены в табл. 1.

Таблица 1

Диапазоны вариаций микрофизических параметров городского аэрозоля и границы спектра размеров частиц аэрозольных фракций

f	x_f , мкм	σ_f	μ_f	$x_{f,\min}$, мкм	$x_{f,\max}$, мкм
1	0,042–0,066	1,8	1	0,002	0,4
2	0,48–0,84	1,61–2,09	$\mu_1(1-10)$	0,020	5,0
3	12–36	2,5–3,7	$\mu_2(0,1-200)$	0,020	30

Параметры x_f и σ_f всех компонентов аэрозоля варьировались независимо друг от друга. Варьирование концентраций μ_f выполнялось в такой последовательности: $\mu_1 = 1$, $\mu_2 = \mu_1(1-10)$, $\ln \mu_3 = \ln(0,1\mu_2) - \ln(200\mu_2)$. Для массовой концентрации аэрозоля M используется диапазон $1-800 \text{ мкг/см}^3$, соответствующий широкому диапазону загрязненности воздуха (от фоновому уровню до экстремально запыленного). Следует отметить, что диапазон вариаций M не имеет особого значения, поскольку данный параметр линейно входит во все расчетные формулы.

Спектры комплексных показателей преломления (КПП) для компонент индустриального аэрозоля в модели ВМО полагаются фиксированными. Однако для сажевых и пылевых частиц в литературе

имеется несколько различных спектральных зависимостей КПП [7, 11–16]. Спектр КПП водорастворимых частиц также может изменяться в зависимости от влажности воздуха. В связи с этим спектры КПП сажевых и пылевых частиц ($f = 1$ и 3 соответственно) моделировались как линейные комбинации

$$m_f(\lambda) = \sum_i p_i m_{i,f}^*(\lambda) / \sum_i p_i,$$

где $m_{i,f}^*$ – КПП вещества частиц из [7, 11–16]; p_i – весовые коэффициенты, варьируемые в диапазоне 0–1. Комплексный показатель преломления водорастворимых частиц $m_2(\lambda)$ рассчитывался с учетом объемной доли воды ($w = 0-1$) в их составе как $w m_w(\lambda) + m_{ws}(\lambda)(1-w)$ (m_{ws} – КПП водорастворимых частиц, соответствующий модели ВМО; m_w – КПП воды [17]).

При заданных спектрах $m_f(\lambda)$ и параметрах функции распределения (3) полидисперсный коэффициент аэрозольного светорассеяния рассчитывается по известным формулам Ми [18]. Массовые концентрации PM_X аэрозольных фракций рассчитываются путем интегрирования функций (3) с учетом ограничений по верхнему размеру частиц:

$$\text{PM}_X = \sum_{f=1}^3 \int_{x_{f,\min}}^X \frac{dV_f}{d \ln x} d \ln x.$$

Оптико-микрофизические корреляции

На основе описанной выше модели сформирован ансамбль из 10^3 случайных реализаций PM_X и $\beta(\lambda, \theta)$, где $\theta = 1 \div 180^\circ$, $\lambda = 0,355; 0,532; 1,064; 1,25; 1,56; 1,67$ и $2,14$ мкм. Выбранный набор длин волн обусловлен необходимостью проведения нефелометрических измерений аэрозоля в окнах прозрачности атмосферы, соответствующих минимальному поглощению света газовыми составляющими атмосферы [4]. Кроме того, значения $\lambda = 0,355; 0,532; 1,064$ мкм соответствуют коммерчески доступным и высокоэффективным лазерным источникам излучения.

С целью оптимизации измерений аэрозольного светорассеяния рассмотрим корреляции между PM_X и $\beta(\lambda, \theta)$. Анализ спектрально-угловой зависимости коэффициента парной корреляции $\rho_1(\lambda, \theta)$ между массовой концентрацией мелкодисперсных частиц PM_1 и $\beta(\lambda, \theta)$, представленной на рис. 1, а, показывает, что $\rho_1(\lambda, \theta)$ возрастает с уменьшением λ , причем угол θ , соответствующий максимуму $\rho_1(\lambda, \theta)$, составляет 15° при $\lambda = 0,355$ мкм, 20° при $\lambda = 0,532$ мкм и 40° при $\lambda = 1,064$ мкм.

Аналогичный коэффициент корреляции $\rho_{>10}(\lambda, \theta)$ для грубодисперсных частиц ($\text{PM}_{>10}$), как видно из рис. 1, б, напротив, быстро убывает с уменьшением λ , причем значения θ , соответствующие наибольшей корреляции между $\text{PM}_{>10}$ и $\beta(\lambda, \theta)$, локализуются во все более узкой области углов вблизи $\theta = 0^\circ$.

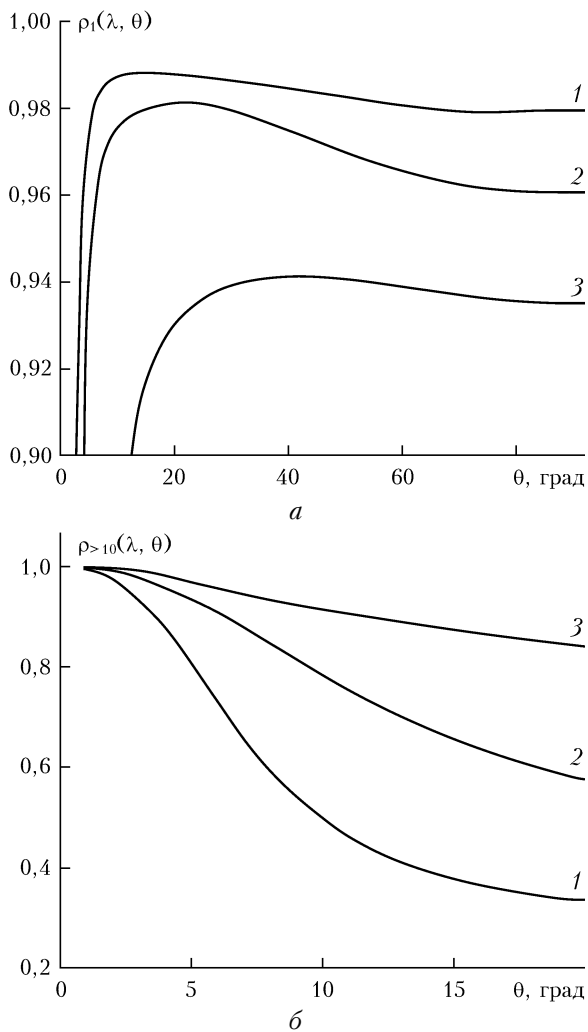


Рис. 1. Зависимость коэффициентов корреляции между аэрозольным коэффициентом направленного рассеяния и массовыми концентрациями PM_1 (а) и $PM_{>10}$ (б) от угла рассеяния: а – $\lambda = 0,355$ (1); 0,532 (2); 1,064 мкм (3); б – $\lambda = 1,064$ (1); 1,56 (2); 2,14 мкм (3)

Такое качественное поведение коэффициентов $\rho_1(\lambda, \theta)$ и $\rho_{>10}(\lambda, \theta)$ является вполне предсказуемым и объясняется зависимостью $\beta(\lambda, \theta)$ от параметра $\delta = \pi x / \lambda$ и увеличением вытянутости вперед индикатрисы рассеяния частиц с ростом δ . При этом следует иметь в виду, что углы рассеяния менее 5° не представляют практического интереса по причине технической сложности регистрации рассеянного излучения, а также в связи с существенным влиянием дифракции на оптических элементах излучателя. Однако, как следует из рис. 1, б, повысить точность определения $PM_{>10}$ по измерениям аэрозольного светорассеяния в области приемлемых для практики углов можно путем увеличения длины волны зондирующего излучения. Так, при увеличении λ с 1,064 до 2,14 мкм коэффициенты корреляции между $PM_{>10}$ и $\beta(\lambda, 5^\circ)$ увеличиваются от 0,80 до 0,97.

Таким образом, для одновременного определения концентраций мелкодисперсных и грубодисперсных частиц аэрозоля необходимо проводить измере-

ния аэрозольного светорассеяния под углами $\theta_1 = 5^\circ$ и $\theta_2 = 15^\circ$ на длинах волн $\lambda_1 = 0,355$ и $\lambda_2 = 2,14$ мкм, поскольку коэффициенты $\beta(\lambda_1, \theta_2)$ и $\beta(\lambda_2, \theta_1)$ практически однозначно связаны с концентрациями PM_1 и $PM_{>10}$. В то же время коэффициенты $\beta(\lambda_1, \theta_1)$ и $\beta(\lambda_2, \theta_2)$ тесно коррелируют с массовыми концентрациями других фракций аэрозоля, а именно с $PM_{1-2,5} = PM_{2,5} - PM_1$ и $PM_{2,5-10} = PM_{10} - PM_{2,5}$. Результаты расчетов коэффициентов корреляции $\rho_{1-2,5}(\lambda, \theta)$ и $\rho_{2,5-10}(\lambda, \theta)$, отвечающих этим фракциям, показывают, что максимумы $\rho_{1-2,5}$ и $\rho_{2,5-10}$ примерно соответствуют вышеуказанным значениям λ_i и θ_j . При этом очевидно, что совместная обработка всех четырех коэффициентов $\beta(\lambda_i, \theta_j)$ по формулам (1) и (2) позволит повысить точность определения концентрации каждой фракции по сравнению с использованием парных корреляций. Векторы \mathbf{v}_n , \mathbf{b} и коэффициенты регрессии (2), отвечающие оптимальной схеме нефелометрического измерителя PM_X , приведены в табл. 2 и 3 (для размерностей величин PM_X и β , равных соответственно $[мкг/м^3]$ и $[км^{-1} \cdot ср^{-1}]$).

Таблица 2

Средние значения и собственные векторы ковариационной матрицы $\ln \beta(\lambda, \theta)$

λ , мкм	θ , град	$\overline{\ln \beta(\lambda, \theta)}$	\mathbf{v}_1	\mathbf{v}_2	\mathbf{v}_3	\mathbf{v}_4
0,355	5	-2,3420	0,5145	-0,3677	-0,4636	0,6206
	15	-3,5399	0,4840	-0,6111	0,4742	-0,4091
2,14	5	-3,5678	0,4887	0,5801	0,5501	0,3494
	15	-4,9681	0,5120	0,3936	-0,5075	-0,5704

Таблица 3

Коэффициенты a_{nk} , x уравнений регрессии (2)

n, k	X , мкм			
	1,0	2,5	10	> 10
0, 0	1,4155	1,9910	2,6219	2,2536
1, 1	0,4790	0,5133	0,5051	0,4657
1, 2	0,0000	-0,0002	-0,0002	0,0005
1, 3	-0,0002	-0,0001	-0,0001	0,0000
2, 1	-0,6672	-0,5072	0,0089	0,6720
2, 2	-0,0099	-0,0366	0,0988	0,0141
2, 3	-0,0033	-0,0062	0,0007	0,0024
3, 1	0,6164	-0,3890	-0,0825	1,6109
3, 2	-0,0125	0,2876	0,0981	-0,2215
3, 3	0,4131	0,0348	0,0729	-0,0783
4, 1	-1,2784	0,1001	-0,1774	1,4384
4, 2	-1,0618	-0,2407	-0,2002	-2,0067
4, 3	3,8264	2,9235	2,1516	8,4568

Погрешности определения PM_X предлагаемым методом оценивались на основе «тестового» ансамбля реализаций PM_X и $\beta(\lambda_i, \theta_j)$, полученного путем наложения на коэффициенты $\beta(\lambda_i, \theta_j)$ из «обучающего» ансамбля случайных отклонений в пределах $\delta\beta$. Для каждой реализации $\beta(\lambda_i, \theta_j)$ из «тестового» ансамбля проводилось восстановление PM_X по формулам (1) и (2). Восстановленные значения массовых

концентраций PM_X^* сравнивались с их точными значениями, соответствующими обрабатываемым коэффициентам $\beta(\lambda_i, \theta_j)$. После перебора всех реализаций вычислялись абсолютная (ΔPM_X) и относительная (δPM_X) погрешности восстановления PM_X , а также коэффициент корреляции между заданными и восстановленными значениями $PM_X(\rho_X^*)$. Значения PM_X^* , полученные по формулам (1) и (2) при $\delta\beta = 10\%$, в зависимости от соответствующих известных значений PM_X представлены на рис. 2. Эти результаты дают наглядное представление о точности определения PM_X предлагаемым методом в условиях общей вариативности микрофизических параметров городского аэрозоля. Количественные оценки точности восстановления PM_X при $\delta\beta = 0$ и 10% представлены в табл. 4. Видно, что данные, получаемые на основе рассматриваемых оптических измерений, обладают высокой информативностью относительно всех экологически значимых фракций аэрозоля, а решение обратной задачи по формулам (1) и (2) является устойчивым к погрешностям оптических измерений.

Таблица 4

Оценки точности определения PM_X , соответствующие схеме нефелометрических измерений с $\lambda_1 = 0,355$, $\lambda_2 = 2,14$ мкм, $\theta_1 = 5^\circ$ и $\theta_2 = 15^\circ$, при погрешностях измерения $\beta(\lambda_i, \theta_j)$, равных $\delta\beta$

X , мкм	$\delta\beta$, %	ρ_X^*	ΔPM_X , мкг/м ³	δPM_X , %
1,0	0	0,9883	4,13	10,8
	10	0,9823	4,98	13,3
2,5	0	0,9919	4,34	7,9
	10	0,9914	4,66	9,2
10	0	0,9947	4,58	5,3
	10	0,9940	5,13	6,1
> 10	0	0,9965	2,96	7,6
	10	0,9835	6,59	14,7

Следует отметить, что предложенная схема нефелометрического измерителя PM_X обладает двумя существенными недостатками, касающимися используемых в ней длин волн оптического зондирования. Во-первых, в условиях слабозамутненной атмосферы в оптическом сигнале, детектируемом на $\lambda_1 = 0,355$ мкм,

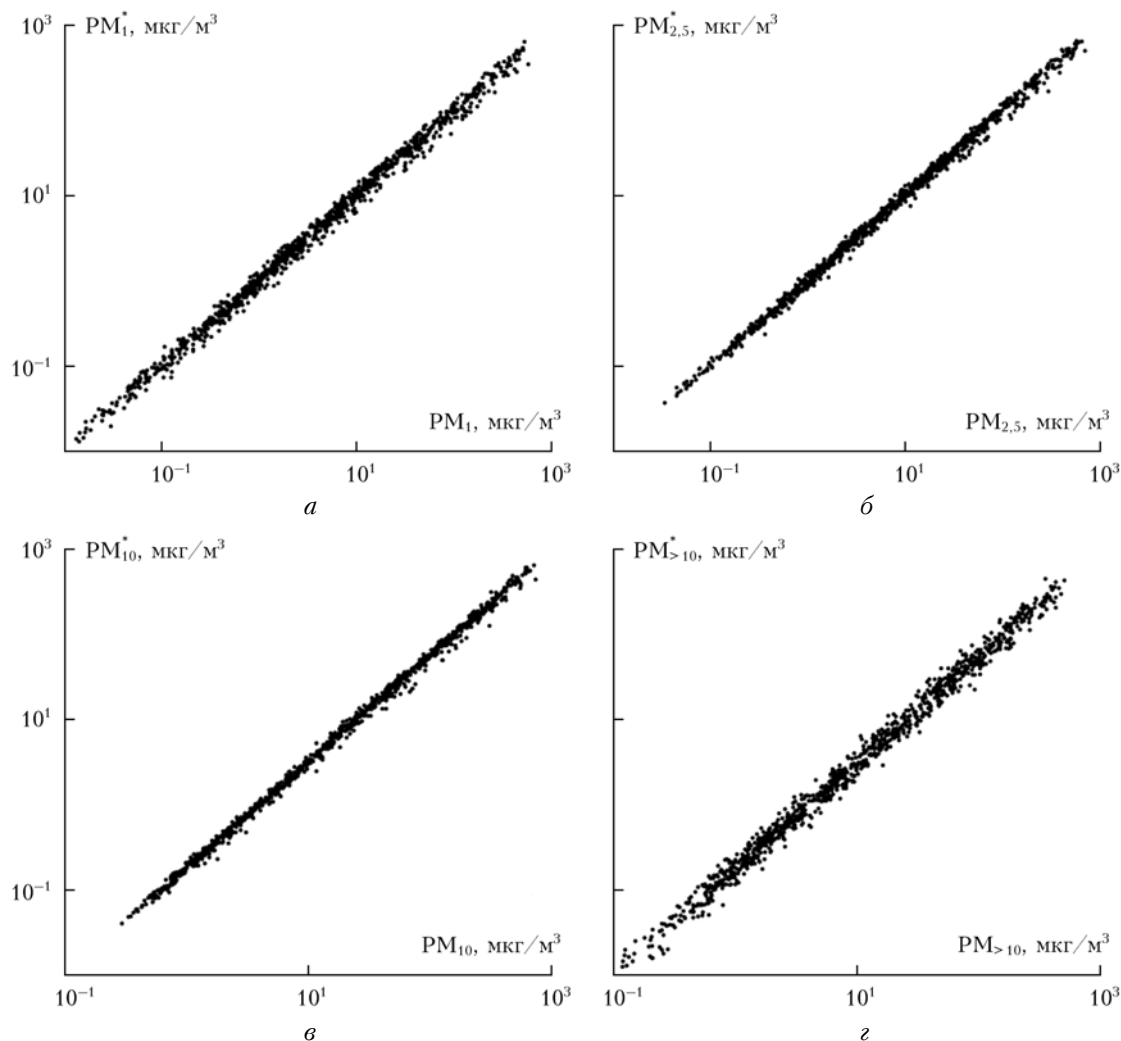


Рис. 2. Результаты замкнутых численных экспериментов по восстановлению массовых концентраций частиц с размерами ≤ 1 (а), $\leq 2,5$ (б), ≤ 10 (в) и > 10 мкм (г) из коэффициентов $\beta(\lambda_i, \theta_j)$ при наложении на $\beta(\lambda_i, \theta_j)$ случайных «возмущений» в пределах 10%

будет заметно проявляться вклад молекулярного рассеяния. В принципе, учет данного обстоятельства не представляет значительных сложностей, однако требует использования дополнительной априорной информации о температуре и давлении воздуха в месте измерений. Во-вторых, в настоящее время отсутствуют эффективные полупроводниковые и лазерные источники излучения с $\lambda_2 = 2,14$ мкм. Большое количество научных работ, посвященных разработке источников лазерного излучения в ИК-области спектра с приемлемыми для практики характеристиками, позволяет надеяться на появление в ближайшем времени серийно выпускаемых источников такого рода. Однако для того чтобы предлагаемый метод определения PM_X можно было уже сейчас использовать на практике, следует рассмотреть возможность его реализации на основе имеющейся элементной базы. Учтем также, что влияние молекулярного рассеяния на детектируемые сигналы можно существенно ослабить сдвигом λ_1 в сторону больших длин волн (по закону Рэля коэффициент молекулярного рассеяния убывает с увеличением λ как λ^{-4}).

Рассмотрим схему нефелометрических измерений, в которой исследуемый объем воздуха освещается излучением с $\lambda_1 = 0,532$ и $\lambda_2 = 1,064$ мкм, а рассеянное излучение регистрируется под углами $\theta_1 = 5^\circ$ и $\theta_2 = 20^\circ$ по отношению к зондирующему лучу. Угол $\theta_2 = 20^\circ$ соответствует максимальной корреляции между PM_1 и $\beta(\lambda, \theta)$ при $\lambda = 0,532$ мкм (рис. 1, а). Исходя из аналогичной корреляции для $PM_{>10}$, угол θ_1 следовало бы уменьшить по сравнению с рассмотренным выше случаем, однако, как уже отмечалось, это сопряжено с рядом сложностей технического характера. Оценки точности определения PM_X с использованием рассматриваемой схемы измерений, полученные на основании замкнутых численных экспериментов по восстановлению PM_X из $\beta(\lambda_i, \theta_j)$, представлены в табл. 5.

Таблица 5

Оценки точности определения PM_X , соответствующие схеме нефелометрических измерений с $\lambda_1 = 0,532$, $\lambda_2 = 1,064$ мкм, $\theta_1 = 5^\circ$ и $\theta_2 = 20^\circ$

X, мкм	$\delta\beta$, %	ρ_X^*	ΔPM_X , мкг/м ³	δPM_X , %
1,0	0	0,9825	4,86	12,4
	10	0,9768	5,75	15,0
2,5	0	0,9888	5,08	9,0
	10	0,9850	5,94	11,0
10	0	0,9930	4,96	5,4
	10	0,9918	6,07	7,3
>10	0	0,9679	8,83	23,2
	10	0,9414	12,8	31,5

Видно, что результаты восстановления PM_1 , $PM_{2,5}$ и PM_{10} практически не отличаются от аналогичных результатов для оптимальной схемы нефелометрических измерений. В то же время точность восстановления $PM_{>10}$ для оптимальных измерений значительно выше. Однако норматив качества атмосферного воздуха для $PM_{>10}$, как и для PM_1 , пока

еще не введен ни в одной стране мира в силу недостаточности достоверных сведений о влиянии этих аэрозольных фракций на качество воздуха и условия жизни людей.

Сравнение модельных расчетов с экспериментальными данными

В связи с тем что при описанном выше статистическом моделировании существует некоторый произвол в выборе диапазонов вариаций модельных параметров, важно оценить достоверность оптико-микроструктурных корреляций, получаемых на основе используемой модели. Для этого проведено их сравнение с известными статистическими связями между оптическими и микрофизическими характеристиками аэрозоля, полученными по экспериментальным данным.

В работах [2, 19] М.А. Свириденковым и др. обнаружены устойчивые статистические связи коэффициентов аэрозольного светорассеяния на $\lambda = 0,51$ мкм под углом 45° (β_1) и на $\lambda = 1,2$ мкм под углом 3° (β_2) с объемными концентрациями субмикронной $H_{0,1-1,2}$ (частицы диаметрами 0,1–1,2 мкм) и грубодисперсной $H_{>2}$ (частицы диаметрами 2–20 мкм) фракций аэрозоля соответственно. Уравнения регрессии, описывающие эти связи, имеют вид [2, 19]: $H_{0,1-1,2} = 1,0\beta_1^{1,0}$ и $H_{>2} = 0,23\beta_2^{0,92}$, где H_{2-20} и $H_{0,1-1,2}$ измеряются в мм³/м³; β_1 и β_2 – в км⁻¹·ср⁻¹. Аналогичные регрессии можно получить и на основе смоделированного набора данных, т.е. в рамках используемой модели при заданной вариативности ее параметров. Совокупность точек ($\beta_1, H_{0,1-1,2}$) и ($\beta_2, H_{>2}$), соответствующих различным комбинациям модельных параметров (общим количеством 10³), представлена на рис. 3. Логарифмическая аппроксимация этих точек приводит к следующим уравнениям регрессии: $H_{0,1-1,2} = 1,29\beta_1^{1,04}$ и $H_{>2} = 0,25\beta_2^{1,00}$.

Коэффициенты полученных уравнений достаточно близки к аналогичным коэффициентам, соответствующим независимым экспериментальным ансамблям. Небольшие различия между теоретическими и экспериментальными зависимостями легко объяснимы физически.

Во-первых, экспериментальные ансамбли соответствуют значительно более узким диапазонам вариаций микрофизических параметров аэрозоля, чем смоделированный набор данных. Как видно из рис. 3, а, экспериментальное уравнение хорошо описывает статистическую связь между $H_{0,1-1,2}$, β_1 в диапазоне $H_{0,1-1,2} = 0,001 \div 0,06$ мм³/м³, соответствующем экспериментальному ансамблю [2]. В то же время теоретическая регрессия правомерна для значительно более широкого диапазона – $H_{0,1-1,2} = 10^{-5} \div 0,5$ мм³/м³.

Во-вторых, следует учесть, что концентрации $H_{0,1-1,2}$ и $H_{>2}$ в работах [2, 19] не измерялись непосредственно, а рассчитывались путем обращения данных оптических измерений. При этом в [19] использовалось распределение частиц по размерам в диа-

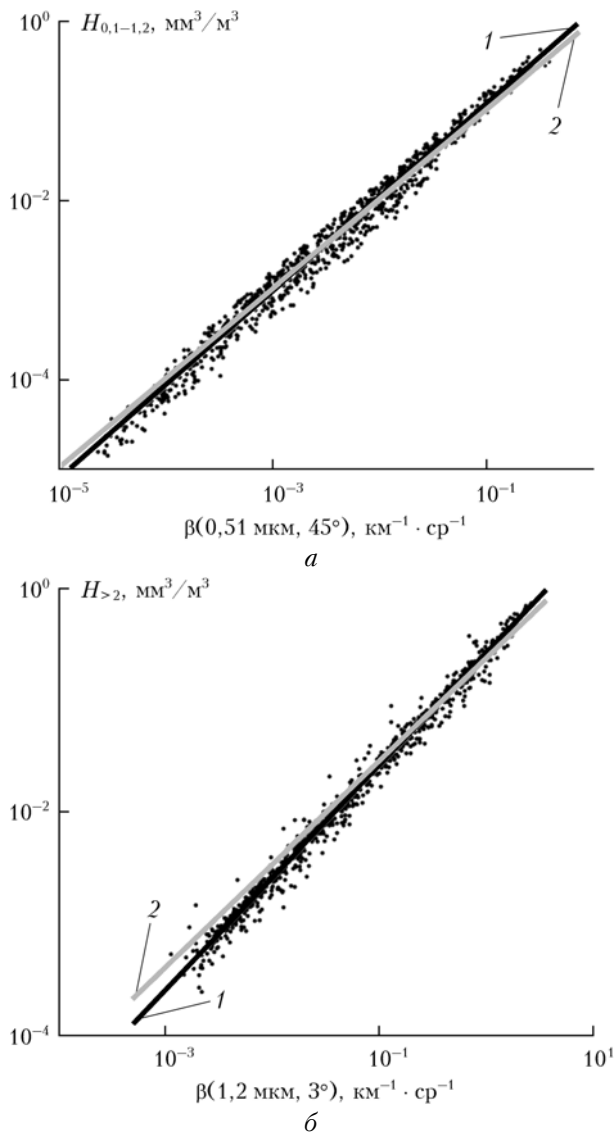


Рис. 3. Модельные совокупности точек $\beta(0,51 \text{ мкм}, 45^\circ)$, $H_{0,1-1,2}$ (а) и $\beta(1,2 \text{ мкм}, 3^\circ)$, $H_{>2}$ (б), отвечающие различным значениям модельных параметров, их логарифмические аппроксимации (1) и экспериментальные зависимости (2) из работ [2, 19]

пазоне диаметров, эквивалентных по объему сфер 0,4–20 мкм. В наших расчетах используется диапазон 0,002–30 мкм, а в качестве концентрации $H_{>2}$ принимается суммарный объем частиц в диапазоне размеров 2–30 мкм.

Согласно эмпирической модели атмосферных дымок, полученных в Институте физики атмосферы РАН, массовую концентрацию субмикронного аэрозоля M_a [мкг/м³] для плотности вещества аэрозольных частиц $\gamma_a = 1,5 \text{ г/см}^3$ можно определить на основе выражения: $M_a = 2400\beta(0,52 \text{ мкм}, 45^\circ)$ [20]. По данным нашего статистического моделирования, коэффициент пропорциональности между массовой концентрацией частиц размерами 0,2–2,0 мкм и β при той же плотности аэрозольного вещества составляет 2100 мг · ср/м², что, с учетом неопределенности диапазона размеров частиц, отвечающего субмикрон-

ной фракции аэрозоля, достаточно хорошо согласуется с приведенным выше значением. Следует отметить, что, сравнивая модельные и экспериментальные статистические связи между аэрозольными оптическими характеристиками и массовыми концентрациями аэрозольных фракций, необходимо априори задавать значение γ_a . Как показывает анализ экспериментальных данных из различных литературных источников, их наилучшее соответствие модельным расчетам достигается в предположении, что плотность вещества частиц размерами $x \leq 2,5$ и $x > 2,5$ мкм составляет соответственно 1,5 и 1,0 г/см³. Так, для отношения аэрозольного коэффициента рассеяния на $\lambda = 0,55 \text{ мкм}$ и концентрации $PM_{2,5}$ в работах [1] и [3] приводятся средние значения 3,3 и 3,4 м²/г соответственно, которые при $\gamma_a = 1,5 \text{ г/см}^3$ достаточно близки к модельным оценкам этого отношения – 3,5 м²/г. Аналогичное отношение для аэрозольного коэффициента ослабления составляет 4,93 м²/г согласно экспериментальным данным [21] и 4,87 м²/г согласно модельным расчетам. Связь коэффициента рассеяния β_{sca} с массовой концентрацией грубодисперсных частиц PM_{10} и общей концентрацией всех аэрозольных фракций M проявляется с невысоким коэффициентом корреляции (0,5–0,7), однако средние значения отношений $\beta_{sca}(0,55 \text{ мкм})/PM_{10}$ и $\beta_{sca}(0,53 \text{ мкм})/M$, равные по данным работ [3, 22] 2,5 и 1,1 м²/г соответственно, также хорошо согласуются с результатами нашего статистического моделирования при $\gamma_a = 1,0 \text{ г/см}^3$, равными 2,1 и 1,2 м²/г соответственно.

Таким образом, используемые нами модель и метод статистического моделирования позволяют получать статистические связи между оптическими и микрофизическими характеристиками аэрозоля, хорошо согласующиеся с данными независимых измерений. Разработанный на их основе метод может эффективно использоваться для непрерывного мониторинга концентраций респираторных фракций аэрозоля в городском воздухе на автоматических станциях контроля загрязнения атмосферы [23].

Заключение

Полученные результаты позволяют сделать вывод о возможности создания простого нефелометрического измерителя загрязненности воздуха с разделением фракций массовых концентраций PM_1 , $PM_{2,5}$, PM_{10} и $PM_{>10}$, удовлетворяющего современным потребностям санитарно-гигиенических и эпидемиологических служб. Массовое производство таких датчиков в перспективе позволит построить автоматизированную сеть непрерывного мониторинга загрязнений городского воздуха с выходом всех данных на центральный пульт управления или в Интернет.

1. Waggoner A.P., Weiss R.E., Ahlquist N.C., Covert D.S., Will S., Charlson R.J. Optical characteristics of atmospheric aerosols // Atmos. Environ. 1981. V. 15, N 10/11. P. 1891–1909.
2. Sviridenkov M.A., Emilenko A.S., Isakov A.A., Kopeikin V.M. Comparison of black carbon content, aerosol

- optical and microphysical characteristics in Moscow and the Moscow region // Fifteenth ARM Science Team Meeting Proceedings, March 14–18, 2005 / Daytona Beach, Florida, 2005. P. 140–147.
3. Jung J., Lee H., Kim J.J., Liu X., Zhang Y., Hu M., Sogimoto N. Optical properties of atmospheric aerosols obtained by in situ and remote measurements during 2006 Campaign of air quality research in Beijing // J. Geophys. Res. 2009. V. 114. D00G02. DOI: 10.1029/2008JD010337.
 4. Лысенко С.А., Кугейко М.М. Восстановление массовой концентрации пыли в промышленных выбросах из результатов оптического зондирования // Оптика атмосф. и океана. 2011. Т. 24, № 11. С. 960–968.
 5. Лысенко С.А., Кугейко М.М. Спектронефелометрические методы определения микрофизических характеристик пыли в аспирационном воздухе и отходящих газах цементных производств // Ж. прикл. спектроскопии. 2012. Т. 79, № 1. С. 66–76.
 6. Зуев В.Е., Комаров В.С. Статистические модели температуры и газовых компонент земной атмосферы. Л.: Гидрометеониздат, 1986. 264 с.
 7. World Meteorological Organization. World Climate Research Programme: A preliminary cloudless standard atmosphere for radiation computation. Switzerland, Geneva. Report WCP-112, WMO/TD-24. 1986. 60 p.
 8. ISO13320. Particle size analysis – Laser diffraction methods. 2009. 51 p.
 9. Veihelmann B., Konert M., van der Zande W.J. Size distribution of mineral aerosol: using light-scattering models in laser particle sizing // Appl. Opt. 2006. V. 45, N 23. P. 6022–6029.
 10. Barun V.V., Ivanov A.P., Osipenko F.P., Chaikovskiy A.P. Peculiarities in spectral behavior of optical characteristics of urban aerosols by laser sensing data and model estimations // Proc. SPIE. 1999. V. 3983. P. 279–289.
 11. Золотарев В.М., Морозов В.Н., Смирнова Е.В. Оптические постоянные природных и технических сред: Справочник. Л.: Химия, 1984. 216 с.
 12. Зуев В.Е., Креков Г.М. Оптические модели атмосферы. Л.: Гидрометеониздат, 1986. 256 с.
 13. Ивлев Л.С., Андреев С.Д. Оптические свойства атмосферных аэрозолей. Л.: Изд-во ЛГУ, 1986. 359 с.
 14. Креков Г.М., Звенигородский С.Г. Оптическая модель средней атмосферы. Новосибирск: Наука, 1990. 278 с.
 15. d'Almeida G.A., Koepke P., Shettle E. Atmospheric aerosols: global climatology and radiative characteristics. Hampton, USA: A. Deepak Publishing, 1991. 549 p.
 16. Rothman L.S., Rinsland C.P., Goldman A., Massie S.T., Edwards D.P., Flaud J.-M., Perrin A., Camy-Peyret C., Dana V., Mandin J.-Y., Schroeder J., Mccann A., Gamache R.R., Watson R.B., Yoshino K., Chance K.V., Jucks K.W., Brown L.R., Nemchinov V., Varanasi P. The HITRAN molecular spectroscopic database and hawks (HITRAN Atmospheric Workstation): 1996 EDITION // J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer. 1998. V. 60, N 5. P. 665–710.
 17. Кондратьев К.Я., Москаленко Н.И., Поздняков Д.В. Атмосферный аэрозоль. Л.: Гидрометеониздат, 1983. 204 с.
 18. Mishchenko M.I., Travis L.D., Lacis A.A. Scattering, absorption, and emission of light by small particles. New York: NASA Goddard Institute for space studies, 2004. 445 p.
 19. Свириденков М.А. Аппроксимация ван де Хюлста и микроструктура пылевого аэрозоля // Изв. РАН. Физ. атмосф. и океана. 1993. Т. 29, № 2. С. 218–221.
 20. Полькин В.В., Артамонов Ю.В., Бунякин В.П., Кислицын С.П. Пространственные особенности распределения атмосферного аэрозоля и гидрометеорологических параметров по данным попутных измерений на НЭС «Академик Федоров» в 2009 г. // Системы контроля окружающей среды. 2010. Вып. 13. С. 146–152.
 21. Trier A., Cabrini N., Ferrer J. Correlations between urban atmospheric light extinction coefficients and particle mass concentrations // Atmosfera. 1997. V. 10, N 3. P. 151–160.
 22. Adam M., Pahlow M., Kovalev V., Ondov J.M., Parlane M.B., Nair N. Aerosol optical characterization by nephelometer and lidar: The Baltimore Supersite experiment during the Canadian forest fire smoke intrusion // J. Geophys. Res. 2004. V. 109. D16502. DOI: 10.1029/2003JD004047.
 23. Глазкова А.А., Кузнецова И.Н., Шалыгина И.Ю., Семутникова Е.Г. Суточный ход концентрации аэрозоля (PM₁₀) летом в Московском регионе // Оптика атмосф. и океана. 2012. Т. 25, № 6. С. 495–500.

S.A. Lysenko, M.M. Kugeiko. Nephelometric method for measuring mass concentrations of urban aerosols and their respirable fractions.

A method has been proposed for determining the mass concentration of airborne particles with sizes ≤ 1 , ≤ 2.5 , ≤ 10 , and $> 10 \mu\text{m}$ by measuring the light scattering coefficients of the investigated air at wavelengths $\lambda_1 \leq 0.55$ and $\lambda_2 \geq 1.0 \mu\text{m}$ and scattering angles $\theta_1 \leq 5^\circ$ and $\theta_2 = 15 \div 45^\circ$. Mass concentrations of airborne particles are calculated on the basis of their stable statistical relationships with measured coefficients. Analytical expressions, approximating those statistical relationships, have been obtained on the basis of optical-microphysical model of urban aerosol, adopted by World Meteorological Organization, with varying concentrations, size distribution parameters, and complex refractive index of the particles of aerosol components (soot, water-soluble and dust). Statistical relationships obtained in the modeling approach have been compared with independent numerical and experimental data. The errors of the developed method in the overall variability of urban aerosol microphysical parameters have been evaluated.