

大气低能见度的影响因子分析及计算方法综述

陈静 赵春生

(北京大学物理学院大气与海洋科学系, 北京 100871)

摘要: 大气低能见度事件一般指的是雾、霾、雨、雪以及沙尘暴等天气过程所引起的能见度破坏现象。由于城市化的快速发展和污染物排放的急剧增加, 高浓度的气溶胶污染也会导致低能见度现象, 这已成为当前中国大部分地区普遍面临的重要大气环境问题之一。从国内的污染现状入手, 并结合国内外的相关研究, 对大气消光的理论计算和低能见度的主要影响因子进行了具体阐述。此外, 还就大气消光计算方法的研究进展及其优缺点予以了总结和讨论。最后, 对未来中国能见度的监测及研究工作等提出了一些具体的建议。

关键词: 大气消光, 低能见度, 大气气溶胶, 气溶胶吸湿性

DOI: 10.3969/j.issn.2095-1973.2014.04.007

A Review of Influence Factors and Calculation of Atmospheric Low Visibility

Chen Jing, Zhao Chunsheng

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

Abstract: Atmospheric low visibility events are commonly caused by special meteorological processes, such as fog, haze, rain, snow, and dust storm. With rapid urbanization and increasing pollutant emission, visibility could be further degraded; and this has become a pervasive and urgent environmental problem in China. Regarding firstly the current pollution status in our country and corresponding researches both at home and abroad, then the research work is done to illustrate the theoretical calculation of atmospheric extinction, along with main influence factors of the low visibility. Moreover, the progress and the corresponding advantages and disadvantages of extinction estimation methods are summarized and discussed. Consequently, some specific suggestions are proposed for future visibility monitoring and research in China.

Keywords: atmospheric light extinction, low visibility, atmospheric aerosol, aerosol hygroscopicity

1 引言

能见度, 顾名思义, 指的是人眼所能将目标物从背景中分辨出来的最远水平距离^[1]。由于大气中的气体和气溶胶对光的散射和吸收作用, 自然状况下的视程范围都会受到一定的限制。雾、霾、雪、沙尘暴及降水等天气现象都能导致大气低能见度事件的出现。

随着工业技术的飞速发展和城市化进程的加快, 由于化石燃料和生物质的燃烧过程、污染物的传输以及其他燃烧源等排放出的大量气溶胶颗粒物, 中国的很多地区都因此遭受到了严重的气溶胶污染。北京、西安等大城市的细粒子(空气动力学等效粒径小于 $2.5\mu\text{m}$ 的气溶胶, $\text{PM}_{2.5}$)质量浓度水平平均远高于国内空气质量标准(GB3095-2012)^[2]所给出的浓度

限值^[3-4], 人类生活和健康等方面也因此受到较大影响^[5-8]。其中, 由细粒子污染所导致的大气低能见度事件已成为当前中国大部分城市地区面临的一个十分普遍的环境问题, 且有向郊区发展恶化的趋势^[9-15]。

研究表明, 2003—2007年间, 北京夏季的平均能见度达 10km 以下^[16], 而天津武清地区夏季的低能见度水平则常维持在 5km 以下^[17]。在中国东北部的区域本底站——龙凤山($127^{\circ}36'E$, $44^{\circ}44'N$), 该地2008年一个典型霾日的日均水平能见度和对应 PM_{10} 的质量浓度分别为 11km 和 $70\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ^[18]。统计数据显示, 中国大陆地区的低能见度事件主要频繁出现在珠江三角洲地区(PRD), 长江三角洲地区(YRD), 以及包括京津冀城市群和辽宁中部城市群在内的华北平原地区(NCP)。国内有关能见度变化趋势方面的分析工作已有很多^[19-23], 另外还有不少针对能见度破坏的源解析以及能见度影响因素(如: 气溶胶粒径, 化学成分和气象条件等)方面的研究。吴兑^[24]也已就中国近10年的能见度相关研究工作进行了概述。

收稿日期: 2013年6月17日; 修回日期: 2013年7月20日
第一作者: 陈静(1986—), Email: chen_jing@pku.edu.cn
资助信息: 国家重点基础研究发展计划项目(2011CB403402);
国家自然科学基金项目(41375134)

对于工业发达的美国来说,其国内大部分地区也不可避免的经历了能见度的破坏阶段^[25-28]。据观测数据表明^[29-30],在不受人造空气污染的影响下,美国东、西部的自然视程范围可以分别达到144.8和225.3km。然而,由于人为排放的细粒子及其前体物的影响,美国东、西部的平均能见度水平则可以分别降至22.5~38.6km和53.1~144.8km。意识到视觉空气质量的重要性,美国国会于1977年8月将清洁空气法案(Clean Air Act, CAA)纳入立法,并提出了国家的能见度目标:即旨在对I级管制区域范围内(Class I Areas)未来可能的视程衰减进行预防,并对当前已存在的由人为空气污染所导致的能见度破坏现象进行补救。为了配合这一立法的实行,IMPROVE(Interagency Monitoring of Protected Visual Environments)这一部门间的能见度监测项目也于1985年发起,并对大气能见度相关的重要光学参数,以及气溶胶化学成分等进行了长期的观测和研究。该项目的研究结果也对中国的低能见度研究具有重要的参考价值。

本文针对当前国内引起广泛关注的细粒子污染与低能见度事件,从细粒子的消光本质及其理论计算入手,对造成能见度破坏的主要影响因子进行了具体阐述。另一方面,结合国内外相关研究工作,对消光估算模型的研究进展进行了归纳,并就各自的优缺点展开讨论;进而对未来中国低能见度的相关监测和预警方面的工作提出一些建议。

2 大气能见度及其影响因子分析

2.1 能见度及大气消光的计算

大气消光系数是常用来描述能见度好坏的指标之一,它指的是单位距离范围内,由源与接收器之间存在的气体和气溶胶的散射和吸收作用所导致的总的光衰减量。根据Koschmieder公式,可以将其近似表示为能见度的倒数形式^[31-32]。大气消光系数可以通过气体和气溶胶物种的浓度直接计算得到,因此它可以作为将环境空气质量和能见度破坏相联系的一种便捷测量手段。

对于气体而言,它们的散射主要是空气分子的瑞利散射^[33]。瑞利散射是各向同性的,且对于90°入射辐射方向处的光散射几乎是完全极化的。瑞利散射与分子数密度成正比关系,并且与光谱波长的四次方成反比(λ^{-4} ,其中 λ 是光的波长)。据记载,由气体分子的瑞利散射所造成的消光贡献一般设为 10Mm^{-1} ^[34]。假定大气压恒定的情况下,各地气体分子对应的瑞利散射部分应保持常数不变,这也代表了原始的大气

能见度状况。在气体的吸收过程中, NO_2 是大气中唯一的一种对可见光有吸收作用的气体成分。据研究表明,它对波长为550nm的可见光所造成的光吸收大小可近似表示为 $b_{\text{ag}}=330[\text{NO}_2]$ ^[35-36];其中,吸收系数 b_{ag} 和 $[\text{NO}_2]$ 的单位分别为 Mm^{-1} ,ppm。在 NO_2 浓度低于0.01ppm的乡村地区, NO_2 对可见光的吸收作用都是不太重要的。因此,不考虑 NO_2 对光的吸收衰减作用,最后计算的总消光系数可以简单的视为由计算得到的气溶胶总消光系数,再加上瑞利散射的贡献即可。

对气溶胶的消光计算,一般是利用Mie理论^[37-38]实现的。简单来说,对于某一特定化学成分的气溶胶 j ,在已知其相应的气溶胶数谱分布 $f_{N,j}(D_p)$ 和复折射指数 $n_j = m + ik$ 情况下,该粒子的消光系数($b_{\text{ext},j}$)可由下式计算得到。

$$b_{\text{ext},j} = \int_0^{\infty} \frac{\pi}{4} D_p^2 Q_{\text{ext}}(n_j, D_p, \lambda) f_{N,j}(D_p) dD_p \quad (1)$$

上式中, $Q_{\text{ext}}(n_j, D_p, \lambda)$ 给出了Mie消光效率,它是复折射指数(n_j)、粒子直径(D_p)和入射光波长(λ)的函数。气溶胶数谱分布 $f_{N,j}(D_p)$ 则代表了一定粒径下(D_p)的气溶胶所对应的数浓度情况。通过将不同粒径气溶胶的消光计算结果进行加和,即可以得到全粒径下所有气溶胶群体的总消光系数。

对于总的消光贡献来说,在较低的气溶胶浓度情况下,空气分子的瑞利散射占主导。而当气溶胶浓度高于几个 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 时,气溶胶的散射能力要显著高于瑞利散射;此时,气体分子在对可见光散射方面的相对贡献几乎可以忽略,能见度主要由气溶胶的散射决定。在一般的大气状况下,气溶胶的浓度都在几十甚至几百个 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ 范围内。因此,能见度的好坏是由气溶胶粒子的贡献来支配的。而对于气溶胶的完整描述应包含以下方面的叙述:化学组成、形态、粒子尺度,以及以粒径为函数的每种气溶胶类型的相对含量,如数浓度谱或质量谱分布等。

2.2 大气消光的主要影响因子

根据前面所提到的,与气体分子的瑞利散射和吸收作用相比,大气气溶胶的光散射和吸收能力要强得多,因此气溶胶对消光的贡献也是最重要的。在不考虑特殊天气过程(如:雨、雪、雾、沙尘暴等自然天气现象)和外界污染物输送等情况的干扰时,与气溶胶直接相关的影响消光的主要因子可以概括为:气溶胶的质量浓度、粒径谱分布、化学组分、吸湿特性、黑碳及其混合状态、颗粒物的形状等。

2.2.1 气溶胶质量浓度

对于粒径分布一定的干气溶胶粒子而言,其造成

的消光与气溶胶质量浓度直接相关。早在40多年前，Charlson^[39]就已经对气溶胶质量浓度和视程范围间的相互关系进行了总结，研究表明二者存在反相关关系。基于气溶胶质量浓度与能见度之间的相互关系，为了帮助获取时空插值上的细粒子资料，美国EPA^[40]尝试用IMPROVE项目中监测到的能见度数据替代PM值，但这一方法在高时间分辨率的情况下会受到限制；而另一方面，结果表明在美国东部地区，光散射数据可以很好代替细粒子质量，同时它也可以用于定量估算日均的细粒子质量浓度。Wen等^[41]的研究则进一步表明能见度和气溶胶质量浓度之间存在指数变化关系。类似的结论也出现在很多国内外的相关研究中。

2.2.2 气溶胶的粒径谱分布

决定消光的第二重要参量是气溶胶的粒径分布型态^[42-45]，这主要是由于不同粒径的气溶胶所对应的光学性质会存在较大差异。而对于单个粒子而言，气溶胶的散射和吸收能力则主要取决于颗粒物的粒径、复折射指数以及粒子的形状和密度。如果这些特性已知，那么粒子的光散射和吸收部分也可以根据Mie理论相应计算得出。Motallebi等^[43]通过对加利福尼亚不同站点间颗粒物，气体和气象参量的多元线性回归分析发现，能见度与直径小于0.65 μm 的含硫粒子之间没有明显的相关性，而0.65 μm 以上粒子在较高相对湿度（RH）环境下的吸湿增长能导致较差的能见度出现。这也说明气溶胶粒径对其消光能力的贡献是非常关键的，与Mie理论也是一致的。

2.2.3 气溶胶的吸湿特性

需要注意的是，在环境相对湿度条件下，气溶胶的吸湿增长行为会直接影响粒子的上述物理特性，进而对它的消光能力产生影响。简言之，气溶胶的吸湿增长能通过粒子吸收液态水使得粒子尺度变大，进而增大气溶胶的消光系数。另一方面，由于吸收的水分所具有的复折射指数相比其他气溶胶组分要偏小，气溶胶的吸湿增长也会因此造成其复折射指数的降低，从而减小其消光系数。然而，由于气溶胶尺度增大所引起的消光增强这一正反馈作用要显著强于由于复折射指数减小所造成的消光减弱这一负效应；因此，这总体上会使得气溶胶的消光增大，从而能见度出现明显的恶化。这一现象已在华北平原地区，珠江三角洲地区，以及长江三角洲地区等的相应外场试验中^[46-55]被观测到。

气溶胶的这一吸湿特性主要是由气溶胶的化学组成决定的^[56]。大气细粒子大部分由吸湿性的无机盐和有机成分的混合物所组成，它们对相对湿度的依赖性

也与这些成分类似，而细粒子段内的气溶胶几乎都是可吸湿的。与低湿状态下的气溶胶粒径相比，在相对湿度接近100%的高湿情况下，粒子的尺度可以增长2~3倍，气溶胶的消光能力也会呈指数的显著增大^[47, 49, 57-59]。因此，弄清低能见度与气溶胶质量浓度、粒径分布以及气溶胶吸湿增长特性之间的相互关系是非常重要的。在对能见度的研究中，也常需要用到相对湿度订正因子（如：粒径/光散射吸湿增长因子），这一因子可以从实验室测量或外场试验中获取^[60]。

2.2.4 气溶胶的化学组成

在对气溶胶的消光贡献上，颗粒物的化学组成也起了非常重要的作用^[61]。除了来自于化石燃料燃烧等一次源的影响，在光化学氧化和多相化学反应过程中所生成的二次气溶胶以及有机成分也会对能见度造成影响。细粒子（如PM_{2.5}）则主要是由二次源产生的，它们的时空变化型态更倾向于区域分布的特征。而明显例外的情况会出现在城市工业密集地区和山谷地区，那里占主导的是一次排放的次微米级粒径的煤烟粒子。

Leaderer等^[62]研究表明，细粒子中的一些化学成分，如硫酸盐，它会比其他细粒子成分对能见度造成更显著的恶化；而在高相对湿度环境下，这些细粒子成分对能见度的破坏会表现得尤为突出。类似的结论也在Trijonis^[27]和Yuan等^[63]的相关研究中得到了证实。Malm等^[25]利用美国IMPROVE监测网络的能见度和气溶胶数据，就二者的相互关系进行了研究。结果显示，在硫酸盐、硝酸盐、有机物、光吸收性碳以及沙尘这几种造成能见度破坏的主要成分中，硫酸盐和有机物是美国大部分地区消光的主要贡献部分，而加利福尼亚南部站点的消光则是由硝酸盐主导的。在美国东部地区，硫酸盐对消光的贡献几乎占了2/3。这也意味着控制细粒子中的主要消光贡献成分，理论上是可以有效提高当地能见度水平的。

2.2.5 黑碳及其混合状态

作为气溶胶中的主要光吸收性成分，黑碳气溶胶通过对太阳辐射的强烈吸收，降低冰雪表面的反照率，以及与云的相互作用这些方式，它在气候和环境变化中都扮演了非常重要的角色。由于黑碳气溶胶自身的特殊性以及研究过程中所存在的巨大不确定性，有关黑碳气溶胶的研究也因此成为国际上广泛关注的热点话题之一^[64]。

黑碳气溶胶的消光能力主要表现在对应的质量吸收效率上，即单位质量的黑碳气溶胶对光的吸收程度（单位： $\text{Mm}^{-1}(\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3})^{-1}$ ，一般简化为 $\text{m}^2\cdot\text{g}^{-1}$ ）。另

外, 也有研究证实黑碳气溶胶(如煤烟颗粒物)的混合状态可以通过改变气溶胶的光学性质从而严重影响能见度^[65-68]。同时, 黑碳气溶胶本身的形态结构对其光学性质也会产生较大影响。

据介绍, 黑碳气溶胶的质量吸收效率约介于 $4\sim 20\text{m}^2\cdot\text{g}^{-1}$ 之间, 因此很多研究中常取其中间值 $10\text{m}^2\cdot\text{g}^{-1}$ 作为标准。Fuller等^[66]为了获取更多黑碳气溶胶吸收性质变化方面的信息, 对不同物质组成和形态的煤烟所对应的光学性质重新进行了评估。同时, 还分别就聚合物形式的黑碳以及与硫酸盐内混合的黑碳对消光效率的影响进行了讨论。研究表明, 基于石墨碳颗粒聚合物的光学特性模拟结果, 在很多情况下所使用的 $10\text{m}^2\cdot\text{g}^{-1}$ 这一光吸收性成分对应的质量吸收效率值约有高估50%以上, 建议在550nm波长下柴油机碳颗粒的质量吸收效率要经常低于 $7\text{m}^2\cdot\text{g}^{-1}$ 。当碳颗粒粘附在硫酸盐粒子表面时, 会对其吸收能力造成不超过30%的增大。而当煤烟随机分布在粒子内部时, 这会使得复折射指数在1.33~1.53间, 半径大于 $0.2\mu\text{m}$ 粒子的平均吸收效率分别增长2.5~4倍。尽管如此, 计算指出, 对于实际的干气溶胶群体来说, 大气中石墨碳粒子的质量吸收效率低于 $10\text{m}^2\cdot\text{g}^{-1}$ 只会出现在以下情形中: 即大部分碳都被包裹在粒子内部, 且主体气溶胶的几何平均半径约大于 $0.06\mu\text{m}$ (对应质量中值直径为 $0.34\mu\text{m}$)。这也说明黑碳气溶胶的物理结构及接触环境会对其吸收和散射效率产生很重要的影响。

此外, 前人的工作总结中指出, 光吸收性碳成分的复折射指数和吸收截面在一个较大的范围内波动。但Bond等^[69]对此的研究结果表明, 光吸收性碳吸收性质的变化并没有通常所认为的那样大。对于未被包裹的粒子来说, 550nm波长下所对应的质量吸收效率为 $(7.5\pm 1.2)\text{m}^2\cdot\text{g}^{-1}$; 同时, 建议强吸收性碳颗粒的复折射指数在一个较窄的范围内, 其最高值为 $1.95-0.79i$, 这也是与文献中给出的大多数测量结果一致的。

3 大气低能见度相关的计算方法

国际上以气溶胶对能见度的恶化影响为主题的研究已经进行了几十年, 而如何对气溶胶的光学特性进行量化是科学家们比较感兴趣的。换言之, 如何利用现有的观测数据来对能见度(或气溶胶的总消光)进行更好的估算和预测, 这也是当前低能见度研究中有待努力解决的重要问题。

3.1 IMPROVE 项目建议的消光计算方法

前面已经提到, 美国的IMPROVE监测项目是能见度研究中最持久、在对大气消光系数进行

计算时, IMPROVE项目所提出的消光计算方法是通过对测量到的气溶胶物种来重建气溶胶质量浓度和环境消光, 这也是用于评估区域霾公约(Regional Haze Rule, 1999年)执行情况的基础。

Hand等^[70]对IMPROVE所使用的环境消光系数计算方法进行了综述报告, 该报告通过对气溶胶物种形式及其质量浓度、光学吸湿增长因子 $f(RH)$ 和干的消光效率几方面的讨论, 并经过不断的验证与完善, 最后给出了改进后的IMPROVE消光(b_{ext})重建方案, 计算形式如下:

$$b_{\text{ext}} = 2.2f_s(RH)[\text{Small AS}] + 4.8f_l(RH)[\text{Large AS}] + 2.4f_s(RH)[\text{Small AN}] + 5.1f_l(RH)[\text{Large AN}] + 2.8[\text{Small POM}] + 6.1[\text{Large POM}] + 1[\text{Fine Soil}] + 0.6[\text{CM}] + 10[\text{LAC}] + 1.4f_{\text{ss}}(RH)[\text{Sea Salt}] + \text{Rayleigh Scattering (Site Specific)} + EE_{\text{NO}_2}[\text{NO}_2] \quad (2)$$

其中, 细粒子($\text{PM}_{2.5}$)及土壤细颗粒(soil)的质量浓度分别是由以下几种成分的质量浓度计算得到的:

$$\text{PM}_{2.5} = (\text{NH}_4)_2\text{SO}_4 + \text{NH}_4\text{NO}_3 + \text{POM} + \text{LAC} + \text{Soil} + \text{Sea Salt} \quad (3)$$

$$\text{Soil} = 2.1\text{Al} + 2.49\text{Si} + 1.94\text{Ti} + 1.63\text{Ca} + 2.42\text{Fe} \quad (4)$$

上述式子中, AS和AN分别表示硫酸铵($(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$)和硝酸铵(NH_4NO_3), POM为有机气溶胶, LAC为光吸收性的含碳成分。CM代表粗粒径段的土壤粒子。每个气溶胶物种前面的常系数分别对应各自的干质量散射(或吸收)效率。可以看到, 修订后的消光计算方法将全粒径范围的硫酸铵、硝酸铵、有机气溶胶($\text{POM} = R_{\text{OC}}\cdot\text{OC}$, 其中 R_{OC} 取值为1.8), 以及土壤粒子的总浓度分割为大粒径段和小粒子段两部分综合考虑, 细化了几个主要的气溶胶物种的消光贡献。另外, 重建方案中还将海盐细颗粒(Sea Salt)引入到总的 $\text{PM}_{2.5}$ 化学物种里, 考虑到海盐细粒子可能是粗模态海盐粒子中的细模态尾, 报告也提出了一种适用于海盐的新的 $f(RH)$ 函数及其干的质量散射效率, 以此来对海盐细粒子的消光贡献进行估计。同时, 针对各自站点的特殊性, 还将特定地点所对应的瑞利散射(Rayleigh Scattering)以及 NO_2 气体的光吸收作用考虑在内。这一消光计算方法的形式相对要复杂, 其中考虑的气溶胶物种形式也比较完善, 估算结果也具有很重要的参考价值。

3.2 能见度的统计算法

除了前面介绍的IMPROVE消光计算方法外, 国内的能见度研究中也提出了不少相类似的经验计算方法。它们的主要思想都是基于颗粒物或主要化学成分对消光的贡献, 同时综合考虑气象条件等影响因子,

进而从统计回归的角度来进行消光的估算。

Yuan等^[63]基于在台湾高雄的两个观测站点所获取的硫酸盐、硝酸盐以及相对湿度数据，同时结合两地的能见度日资料，提出了一种能见度的经验回归方案。模式结果显示，能见度的变化对PM_{2.5}中的硫酸盐最敏感，这也在一定程度上反映出硫酸盐粒子的高浓度及强吸湿增长能力对能见度的破坏作用。Tsai^[23]的研究中，分别选取台湾地区的一个高度城市化中心（台北），一个高度工业化中心（高雄），以及两个郊区中心站点（花莲和台东）的数据，结合能见度和气象观测资料，给出了一个预测能见度的经验方法。模型中同时考虑了PM₁₀，SO₂，O₃和NO₂等污染物，以及温度、风速、RH等气象参量的共同影响。回归结果显示，除了台东的站点明显受到远距离传输的污染物影响外，其余几个站点的能见度都是由局地机动车的排放，道路交通产生的沙尘，以及工业生产活动中排放的污染物支配的。该方法综合考虑了影响能见度的各类影响因素，包括主要污染物和气象条件，相对比较完善。

3.3 基于物理过程的能见度计算方法

而与上述方法略有不同的是，Chen等^[17]基于能见度对气溶胶体积浓度和吸湿增长因子的敏感性分析，即在RH<90%时，气溶胶的消光系数与其体积浓度间呈线性相关，高气溶胶体积浓度是造成低能见度的关键因子；当RH>90%时，气溶胶的消光能力随RH呈指数增长，能见度的恶化主要由RH的增长决定。同时，考虑到相应数据资料在现实中的可获取性，该研究利用HaChi（Haze in China）外场试验所观测到的能见度、相对湿度以及从气溶胶数浓度谱分布推算得到的体积浓度数据，提出了一种霾天气下低能见度消光计算的参数化方案。这与Clark等^[71]所用到的英国气象局能见度预报模式（Met Office Unified Model，MetUM）的基本理念是一致的。

另外，为了降低变化的气溶胶数谱分布型态对消光估算值的可能影响，还将粗细粒子体积比引入到了参数化方案中。总的来说，参数化的结果与实测值比对的效果良好。这一消光计算方案综合考虑了能见度的关键影响因子，物理意义十分明确。同时，输入参量较少且相关数据在实际中易于获取。考虑到中国地区广泛的气溶胶质量浓度测量的这一优势，气溶胶体积浓度，以及粗细粒子质量或体积比，它们都可以很容易地被应用于对低能见度事件的预报中。此外，在HaChi夏季外场观测中，较强吸湿性粒子的吸湿增长因子在高湿条件下近乎是恒定的^[49]，这也使得所提出

的参数化方案的应用性更加广泛。

3.4 各类能见度计算方法的不确定性讨论

3.4.1 IMPROVE 消光计算方法的不确定性

基于历史长期的气溶胶光学测量和化学采样，IMPROVE的消光计算方法同时将气溶胶物种的质量浓度及其吸湿性考虑在内，其结果无疑具有重要的参考意义；然而，这一消光计算方案还是不可避免地会存在其局限性。首先，其最大的问题在于有限的时间分辨率，由于化学采样相对比较耗时，几小时平均的分析结果会大大削弱气溶胶的日变化规律等特征；这对于气溶胶时空变化性很高的地区来说会造成很大的不确定性。此外，对于消光估算的不确定性来说，其不仅依赖于对每个气溶胶物种的形式假定及它们分别对应的质量散射效率和吸湿增长因子，同时还取决于采样、测量以及分析过程中的准确性和精度。

具体而言，气溶胶物种的化学形式假定方面的不确定性主要包括：（1）当前细粒子中的硫酸盐和硝酸盐均假设为硫酸铵和硝酸铵，此种情况下，各成分的粒径范围及对应的吸湿增长因子都会对计算的消光系数造成偏差。（2） R_{oc} 这一乘数因子，其在不同地区和不同污染状况下对应的取值范围会存在很大不同，它的取值对最终重建的POM质量及其消光都会造成影响。（3）另外，重建方程中的海盐细粒子（NaCl）所含有的质量是通过 $1.8 \cdot Cl$ 来表示的，这与实际情况也是有偏差的。

在大多数监测站点，干的质量散射效率会随着质量浓度的增加而增大。这一增大趋势用两种单独的方法进行了处理。方案一是应用了质量浓度和散射系数间的多种统计回归结果；但是，统计回归出来的结果仅对回归数据本身是强有效的。第二种方案是基于一个双峰的细模态粒径谱分布的物理模型提出的。小粒径模态对应着较低的质量浓度，且粒子的光散射效率较低；而大粒径模态是与较高质量浓度且具有较强光散射效率的粒子相联系的。不同的粒径模态是质量的函数，而质量散射效率即是按照这些不同粒径模态的简单线性组合计算得到的。这一模型被应用到了普遍存在于PM_{2.5}中的那些物种上，即硫酸盐、硝酸盐和POM。这也说明，利用不同的估算方法，最终会得到不同的质量散射效率因子。

另外，物种的光散射增强因子，即与气溶胶吸湿性相联系的 $f(RH)$ ，也存在很大不确定性。IMPROVE消光计算方法中采用的是将小时分辨率的吸湿增长曲线做了24小时平均处理，以与气溶胶质量测量数据匹配。因此，最终得到的是一条“平滑过的”平均的

$f(RH)$ 曲线, 其代表性显然是存在较大局限性的。此外, 已有研究表明, 有机物中也包括部分可溶性的有机碳 (WSOC), 它们在 $RH > 85\%$ 的高相对湿度条件下会呈现出弱吸湿性。但在这一计算方法中, 仍然假定有机物成分均为不吸湿的。这对于有机物所占份额偏高, 且高湿环境经常维持的地区而言, WSOC对消光的贡献就更加不容忽视。

LAC物种仅考虑了光吸收成分对可见光的吸收作用, 没有考虑如黑碳等成分对光的散射贡献。据研究^[72]表明, 细粒子中黑碳的平均质量散射效率约为 $(5.4 \pm 1.5) \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$ 。此外, 方程中给出的LAC质量吸收效率略有偏高^[66]。且在不同的国家和地区, 光吸收性成分所对应的吸收效率会出现不同程度的差异, 这一数值也应根据具体情况进行相应的调整。最后, 气溶胶化学成分的粒径分布特征 (城市、乡村及自然背景条件下各不同) 及其混合状态也都不容易确定, 而这些方面对于气溶胶消光的影响还有待进一步的评估和细化。

Ryan^[73]的最新研究指出, 根据IMPROVE所提供的修正后的消光计算公式^[74-75], 利用日均的气溶胶物种质量浓度以及光学吸湿增长因子对能见度进行估算, 结果表明估算值与积分式浊度计实测值推算出的消光系数之间存在不同程度的不确定性^[76]。另外, 还有研究指出^[77], 将各个物种均一的背景颗粒物浓度用于整个东西部地区的能见度计算也会对结果产生误差, 因为其中忽略了气溶胶物种空间分布上的巨大差异。同时, 不同区域和国家间污染物的跨界输送问题也会对能见度的估计造成较大的不确定性^[78]。此外, 由于中国地区气溶胶物种的形式多样, 且存在较大的时空差异性, IMPROVE所建议的消光计算方法的应用也必然会存在很严重的问题。

3.4.2 能见度统计回归算法和物理计算方法的不确定性

前面已经指出, 用于能见度估算的统计算法一般是基于颗粒物或主要化学成分对消光的贡献, 同时综合考虑气象条件等影响因子, 进而从统计回归的角度来进行消光的计算。

然而, 它们与IMPROVE的消光计算方法都存在一个重大的不足, 即该统计方法中所用到的化学组分数据的时间分辨率较低, 因此回归结果的代表性也必然会受到相应的影响。此外, 统计方法中若综合考虑能见度的各类影响因素, 包括主要污染物和气象条件, 虽然理论上相对比较完善; 但与此同时, 回归计算中的输入参量较多, 且这些参量彼此间也会存在相互关联和影响, 因此统计回归的效果也会受到一定的影响。

基于物理过程的消光计算方法, 其输入参量的时间分辨率都要较化学数据的高很多, 具有相对较好的时效性。需要注意的是, 由于中国地区气溶胶物种复杂多样, 其时空分布呈现高度的变化性; 另一方面, 部分地区有机物等的含量及吸湿性都可能存在较大差异。因此, 这一方案中对于气溶胶吸湿性的表示方法可能也会随地域而变。气溶胶的吸湿性是由气溶胶的数谱分布和化学成分共同决定的。因此, 建议在对气溶胶吸湿性进行研究时, 还应开展更多气溶胶数谱分布和吸湿性方面的观测。在测量仪器有限的地区, 可以考虑利用气溶胶化学采样数据推算出气溶胶的吸湿性参量, 进而得到相应的气溶胶吸湿性方面的结果。

4 总结与建议

由大气细粒子污染所导致的大气低能见度事件, 它们的主要影响因子可以依次概括为: 气溶胶的质量浓度、粒径谱分布、化学成分、吸湿增长特性、黑碳及其混合状态等。大气消光系数作为衡量能见度好坏的有效指标之一, 在对低能见度的研究和预报中常常需要对其进行计算。常用到的消光计算方法包括基于化学组分和吸湿性测量的IMPROVE方案, 基于消光影响因素的统计回归算法, 以及基于气溶胶光学本质的物理计算三大类。这些算法都具有自身的优点, 但同时也包含不同程度的不确定性。

概括起来, IMPROVE的消光计算方法综合考虑了各个气溶胶物种及其吸湿性对消光的影响, 但其计算结果的时间分辨率较低, 且存在多方面的不确定性。对统计回归算法而言, 其输入参数较复杂, 且时间分辨率有限, 而参量相互之间的联系也会对回归效果产生一定的影响。基于物理过程的消光计算方案则具有相对较高的时间分辨率, 且从气溶胶的光学本质考虑, 物理意义明确; 输入参数也易于获取, 因此该方法具有很大的推广价值。

从当前实际低能见度监测和预报工作中的时效性、准确性以及普适性方面考虑, 建议更多的应用基于气溶胶消光本质的这一物理计算方案。即在常规的业务台站观测中, 在仪器和条件允许的情况下, 可以进行更多高时间分辨率的气溶胶数谱分布和分粒径的吸湿性观测, 以及高精度的相对湿度测量, 以提供消光计算方法所需的相应输入参数。对于仪器设备有限的地区, 如果不便开展气溶胶数谱和吸湿性的测量, 可以考虑分别利用 $\text{PM}_{2.5}$ 和化学采样数据来获取气溶胶污染及吸湿增长特性方面的相关信息, 以服务于常规的业务预报。此外, 高精度的相对湿度测量是非常有必要的, 这是由于在高相对湿度情况下, 气溶胶消光

系数对相对湿度的变化十分敏感, 相对湿度的微小波动会对气溶胶的总消光造成很大的影响。这不仅对台站的业务观测质量提出了很高的要求, 希望能够定期利用露点仪和干湿球的数据对相对湿度的测量结果进行标定和质量控制。同时, 也需要未来有更高精度的湿度传感器应用于业务监测。

参考文献

- [1] 盛裴轩, 毛节泰, 李建国, 等. 大气物理学. 北京: 北京大学出版社, 2003.
- [2] 中华人民共和国环境保护部, 国家质量监督检验检疫总局. 中国环境空气质量标准 (GB3095—2012). <http://www.zhb.gov.cn/gkml/hbb/bgth/201111/W020111121388004546031.pdf>.
- [3] Shen Z X, Cao J J, Tong Z, et al. Chemical characteristics of submicron particles in winter in Xi'an. *Aerosol Air Qual Res*, 2009, 9(1): 80-93.
- [4] Yang F, Tan J, Zhao Q, et al. Characteristics of PM_{2.5} speciation in representative megacities and across China. *Atmos Chem Phys*, 2011, 11: 5207-5219, doi:10.5194/acp-11-5207-2011.
- [5] Chan H K, Eberl S, Daviskas E, et al. Changes in lung deposition of aerosols due to hygroscopic growth: A fast SPECT study. *J Aerosol Medicine-Deposition Clearance and Effects in the Lung*, 2002, 15: 307-311.
- [6] Guo Y, Tong S, Zhang Y, et al. The relationship between particulate air pollution and emergency hospital visits for hypertension in Beijing, China. *Sci Total Environ*, 2010, 408: 4446-4450.
- [7] Lundahl J, Massling A, Pagels J, et al. Size resolved respiratory-tract deposition of fine and ultrafine hydrophobic and hygroscopic aerosol particles during rest and exercise. *Inhalation Toxicology*, 2007, 19: 109-116.
- [8] Tu K W, Knutson E O. Total deposition of ultrafine hydrophobic and hygroscopic aerosols in the human respiratory system. *Aerosol Sci Technol*, 1984, 3(4): 453-465.
- [9] Anderson T L, Charlson R J, Schwartz S E, et al. Climate forcing by aerosols: A hazy picture. *Science*, 2003, 300: 1103-1104.
- [10] Hoyle C R, Myhre G, Isaksen I S A. Present-day contribution of anthropogenic emissions from China to the global burden and radiative forcing of aerosol and ozone. *Tellus B*, 2009, 61: 618-624.
- [11] Huang K, Zhuang G, Lin Y, et al. Typical types and formation mechanisms of haze in an Eastern Asia megacity, Shanghai. *Atmos Chem Phys*, 2012, 12: 105-124, doi: 10.5194/acp-12-105-2012.
- [12] Li W, Zhou S, Wang X, et al. Integrated evaluation of aerosols from regional brown hazes over Northern China in winter: concentrations, sources, transformation, and mixing states. *J Geophys Res*, 2011, 116: D09301, doi: 10.1029/2010JD015099.
- [13] Wang K, Dickinson R E, Liang S. Clear sky visibility has decreased over land globally from 1973 to 2007. *Science*, 2009, 323: 1468-1470.
- [14] Wu D, Tie X, Li C, et al. An extremely low visibility event over the Guangzhou region: A case study. *Atmos Environ*, 2005, 39: 6568-6577.
- [15] Xia X. A closer looking at dimming and brightening in China during 1961-2005. *Ann Geophys*, 2010, 28: 1121-1132, doi: 10.5194/angeo-28-1121-2010.
- [16] Zhang Q H, Zhang J P, Xue H W. The challenge of improving visibility in Beijing. *Atmos Chem Phys*, 2010, 10: 7821-7827, doi: 10.5194/acp-10-7821-2010.
- [17] Chen J, Zhao C S, Ma N, et al. A parameterization of low visibilities for hazy days in the North China Plain. *Atmos Chem Phys*, 2012, 12: 4935-4950, doi: 10.5194/acp-12-4935-2012.
- [18] Wang P, Che H Z, Zhang X C, et al. Aerosol optical properties of regional background atmosphere in Northeast China. *Atmos Environ*, 2010, 44: 4404-4412.
- [19] Chang D, Song Y, Liu B. Visibility trends in six megacities in China 1973-2007. *Atmos Res*, 2009, 94: 161-167.
- [20] Che H Z, Zhang X Y, Li Y, et al. Horizontal visibility trends in China 1981-2005. *Geophys Res Lett*, 2007, 34: L24706, doi:10.1029/2007GL031450.
- [21] Deng X, Tie X, Wu D, et al. Long-term trend of visibility and its characterizations in the Pearl River Delta (PRD) Region, China. *Atmos Environ*, 2008, 42: 1424-1435.
- [22] Tsai Y I. Atmospheric visibility trends in an urban area in Taiwan 1961-2003. *Atmos Environ*, 2005, 39: 5555-5567.
- [23] Tsai Y I, Kuo S C, Lee W J, et al. Long-term visibility trends in one highly urbanized, one highly industrialized, and two rural areas of Taiwan. *Sci Total Environ*, 2007, 382: 324-341.
- [24] 吴兑. 近十年中国灰霾天气研究综述. *环境科学学报*, 2012, 32(2): 257-269.
- [25] Malm W C, Sisler J F, Huffman D, et al. Spatial and seasonal trends in particle concentration and optical extinction in the United States. *J Geophys Res*, 1994, 99(D1): 1347-1370.
- [26] Malm W C, Sisler J F, Pitchford M L, et al. IMPROVE (Interagency Monitoring of Protected Visual Environments): Spatial and seasonal patterns and temporal variability of haze and its constituents in the United States: Report III. CIRA Report, Fort Collins: CIRA, 2000.
- [27] Trijonis J. Visibility in California. *J Air Pollut Control Assoc*, 1982, 32(2): 165-169.
- [28] Trijonis J, Shapland D. Existing Visibility Levels in the U.S., Isopleth Maps of Visibility in Suburban/Nonurban Areas During 1974-1976. EPA-450/5-79-101. U.S. Environmental Protection Agency, 1979.
- [29] Trijonis J. Visibility in the southwest: An exploration of the historical data base. *Atmos Environ*, 1979, 13: 833.
- [30] Trijonis J, Yuan K. Visibility in the Northeast: Long-Term Visibility Trends and Visibility/Pollutant Relationships. EPA-600/3-78-075. U.S. Environmental Protection Agency, 1978.
- [31] Middleton W E K. *Vision through the Atmosphere*. Toronto: University of Toronto Press, 1952.
- [32] Griffing G W. Relations between the prevailing visibility, nephelometer scattering coefficient and sunphotometer turbidity coefficient. *Atmos Environ*, 1980, 14: 577-584.
- [33] van de Hulst H C. *Light Scattering by Small Particles*. New York: Dover Publications, 1981.
- [34] U. S. Department of Energy [USDOE]. *Atmospheric Science and Power Production*. DOE/TIC-27061. Oak Ridge, TN: Office of Scientific and Technical Information, 1984.
- [35] Dixon J K. The absorption coefficient of nitrogen dioxide in the visible spectrum. *J Chem Phys*, 1940, 8(2): 157-160.
- [36] Hodkinson J R. Calculations of color and visibility in urban atmospheres polluted by gaseous NO₂. *Air Water Pollut*, 1966, 10(2): 137-144.
- [37] Mie G. Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen. *Ann Physik*, 1908, 25: 377-445.
- [38] Bohren C F, Huffman D R. *Absorption and Scattering of Light by Small Particles*. Hoboken: John Wiley, 1983: 477-482.
- [39] Charlson R J. Atmospheric visibility related to aerosol mass concentration: A Review. *Environ Sci Technol*, 1969, 3(10): 913-918.
- [40] Schichtel B A, Husar R B. Evaluation of the Models-3C/MAQ System Relationship between Airport Visibility and PM_{2.5} Concentrations in the Eastern US. US Environmental Protection Agency Progress Report, EPA grant No. CR 827981. Office of Research and Development, 1999.
- [41] Wen C C, Yeh H H. Comparative influences of airborne pollutants and meteorological parameters on atmospheric visibility and turbidity. *Atmos Res*, 2010, 96: 496-509.
- [42] Cheng Y F, Heintzenberg J, Wehner B, et al. Traffic restrictions in Beijing during the Sino-African Summit 2006: Aerosol Size distribution and visibility compared to long-term in situ observations. *Atmos Chem Phys*, 2008, 8: 7583-7594, doi:10.5194/acp-8-7583-2008.
- [43] Motallebi N, Cahill T A, Flocchini R G. Influence of particulate size on statistical studies of visibility at California regions. *Atmosfera*, 1990, 3: 111-126.

- [44] Neiburger M, Wurtele M G. On the nature and size of particles in haze, fog, and stratus of the Los Angeles region. *Chem Rev*, 1949, 44(2): 321-335, doi: 10.1021/cr60138a005.
- [45] Tang I N. Chemical and size effects of hygroscopic aerosols on light scattering coefficients. *J Geophys Res*, 1996, 101(D14): 19245-19250.
- [46] Achtert P, Birmili W, Nowak A, et al. Hygroscopic growth of tropospheric particle number size distributions over the North China Plain. *J Geophys Res Atmos*, 2009, 114: D00G07.
- [47] Cheng Y F, Wiedensohler A, Eichler H, et al. Aerosol optical properties and related chemical apportionment at Xinken in Pearl River Delta of China. *Atmos Environ*, 2008, 42: 6351-6372.
- [48] Eichler H, Cheng Y F, Birmili W, et al. Hygroscopic properties and ambient extinction of aerosol particles in South-Eastern China. *Atmos Environ*, 2008, 42: 6321-6334, doi:10.1016/j.atmosenv.2008.05.007.
- [49] Liu P F, Zhao C S, Göbel T, et al. Hygroscopic properties of aerosol particles at high relative humidity and their diurnal variations in the North China Plain. *Atmos Chem Phys*, 2011, 11: 3479-3494, doi:10.5194/acp-11-3479-2011.
- [50] Massling A, Stock M, Wehner B, et al. Size segregated water uptake of the urban submicrometer aerosol in Beijing. *Atmos Environ*, 2009, 43: 1578-1589.
- [51] Pan X L, Yan P, Tang J, et al. observational study of influence of aerosol hygroscopic growth on scattering coefficient over rural area near Beijing mega-city. *Atmos Chem Phys*, 2009, 9: 7519-7530, doi:10.5194/acp-9-7519-2009.
- [52] Yan P, Pan X L, Tang J, et al. An experimental study on the influence of relative humidity on the atmospheric aerosol scattering coefficient at an urban site in Beijing. *Acta Meteorol Sin*, 2008, 6(1): 11-119.
- [53] Yan P, Tang J, Huang J, et al. The measurement of aerosol optical properties at a rural site in Northern China. *Atmos Chem Phys*, 2008, 8: 2229-2242, doi:10.5194/acp-8-2229-2008.
- [54] Yan P, Pan X, Tang J, et al. Hygroscopic growth of aerosol scattering coefficient: A comparative analysis between urban and suburban sites at winter in Beijing. *Particuology*, 2009, 7: 52-60.
- [55] Ye X, Ma Z, Hu D, et al. Size-resolved hygroscopicity of submicrometer urban aerosols in Shanghai during wintertime. *Atmos Res*, 2011, 99: 353-364.
- [56] Petters M D, Kreidenweis S M. A single parameter representation of hygroscopic growth and cloud condensation nucleus activity. *Atmos Chem Phys*, 2007, 7: 1961-1971, doi:10.5194/acp-7-1961-2007.
- [57] Covert D S, Charlson R J, Ahlquist N C. A study of the relationship of chemical composition and humidity to light scattering by aerosols. *J Appl Meteorol*, 1972, 11: 968-976.
- [58] Randles C A, Russell L M, Ramaswamy V. Hygroscopic and optical properties of organic sea salt aerosol and consequences for climate forcing. *Geophys Res Lett*, 2004, 31: L16108, doi:10.1029/2004GL020628.
- [59] Stock M, Cheng Y F, Birmili W, et al. Hygroscopic properties of atmospheric aerosol particles over the Eastern Mediterranean: Implications for regional direct radiative forcing under clean and polluted conditions. *Atmos Chem Phys*, 2011, 11: 4251-4271, doi:10.5194/acp-11-4251-2011.
- [60] Swietlicki E, Hansson H C, Hämeri K, et al. Hygroscopic properties of submicrometer atmospheric aerosol particles measured with H-TDMA instruments in various environments: A review. *Tellus B*, 2008, 60: 432-469.
- [61] White W H, Roberts P T. On the nature and origins of visibility-reducing aerosols in the Los Angeles air basin. *Atmos Environ*, 1977, 11: 803-812.
- [62] Leaderer B P, Holford T R, Stowijk J A J. Relationship between sulfate aerosol and visibility. *J Air Pollut Control Assoc*, 1979, 29: 154.
- [63] Yuan C S, Lee C G, Liu S H, et al. Correlation of atmospheric visibility with chemical composition of Kaohsiung aerosols. *Atmos Res*, 2006, 82: 663-679.
- [64] U. S. Environmental Protection Agency [USEPA]. Report to Congress on Black Carbon: Executive Summary. EPA-450/S-12-001. Washington, DC: U. S. Government Printing Office, 2012.
- [65] Cheng Y F, Eichler H, Wiedensohler A, et al. Mixing state of elemental carbon and non-light-absorbing aerosol components derived from in situ particle optical properties at Xinken in Pearl River Delta of China. *J Geophys Res*, 2006, 111: D20204, doi:10.1029/2005JD006929.
- [66] Fuller K A, Malm W C, Kreidenweis S M. Effects of mixing on extinction by carbonaceous particles. *J Geophys Res*, 1999, 14(D13): 15941-15954.
- [67] 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. *Atmos Chem Phys*, 2012, 12: 2381-2397, doi:10.5194/acp-12-2381-2012.
- [68] Yu H, Wu C, Wu D, et al. Size distributions of elemental carbon and its contribution to light extinction in urban and rural locations in the Pearl River Delta Region, China. *Atmos Chem Phys*, 2010, 10: 5107-5119, doi:10.5194/acp-10-5107-2010.
- [69] Bond T C, Bergstrom R W. Light absorption by carbonaceous particles: An investigative review. *Aerosol Sci Technol*, 2005, 39: 1-41.
- [70] Hand J L, Malm W C. Review of the IMPROVE Equation for Estimating Ambient Light Extinction Coefficients-Final Report. Fort Collins: Colo State Univ, 2006. http://vista.cira.colostate.edu/improve/Publications/GrayLit/016_IMPROVEEqReview/IMPROVEEqReview.htm.
- [71] Clark P A, Harcourt S A, Macpherson B, et al. Prediction of visibility and aerosol within the operational Met Office unified model. I: Model formulation and variational assimilation. *Q J R Meteorol Soc*, 2008, 134: 1801-1816, doi: 10.1002/qj.318.
- [72] Zhang X, Turpin B J, McMurry P H, et al. Mie theory evaluation of species contributions to 1990 wintertime visibility reduction in the Grand Canyon. *J Air & Waste Manage Assoc*, 1994, 44(2): 153-162.
- [73] Ryan P A. Site specific uncertainty in regional haze rule haze indexes. *Atmos Climate Sci*, 2012, 2: 1-7.
- [74] Ryan P A, Lowenthal D, Kumar N. Improved light extinction reconstruction in interagency monitoring of protected visual environments. *J Air & Waste Manage Assoc*, 2005, 55: 1751-1759.
- [75] Pitchford M, Malm W, Schichtel B, et al. Revised algorithm for estimating light extinction from IMPROVE particle speciation data. *J Air & Waste Manage Assoc*, 2007, 57: 1326-1336, doi:10.3155/1047-3289.57.11.1326.
- [76] Pitchford M L, Malm W C. Development and applications of a standard visual index. *Atmos Environ*, 1994, 28, 5: 1049-1054.
- [77] Rokjin J, Jacoba D, Kumar N, et al. Regional visibility statistics in the United States: Natural and transboundary pollution influences, and implications for the regional haze rule. *Atmos Environ*, 2006, 40(28): 5405-5423, doi:10.1016/j.atmosenv.2006.04.059.
- [78] Heald C, Jacob D, Park R, et al. Transpacific transport of Asian anthropogenic aerosols and its impact on surface air quality in the United States. *J Geophys Res*, 2007, 111: D14310.