ОПТИЧЕСКИЙ МЕТОД КОНТРОЛЯ ЗАГРЯЗНЕННОСТИ ВОЗДУХА РЕСПИРАБЕЛЬНЫМИ ТВЕРДЫМИ ЧАСТИЦАМИ

М.М. Кугейко, С.А. Лысенко, В.В. Хомич

Белорусский государственный университет пр. Независимости, 6, БГУ, каф. КРиОЭ, 220030, Минск, Беларусь, тел. +375 17 2121016 E-mail: kugeiko@bsu.by, lisenko@bsu.by

Abstract. A method is suggested for determining the mass concentration of airborne particles with sizes $\leq 1 \mu m$, $\leq 2.5 \mu m$, $\leq 10 \mu m$ by measuring the light scattering coefficients of the investigated air at the wavelengths $\lambda_1 \leq 0.55$ and $\lambda_2 \geq 1.0 \mu m$ for the scattering angles $\theta_1 \leq 5^\circ$ and $\theta_2 = 15-45^\circ$. Mass concentrations of airborne particles are calculated on the basis of their stable statistical relationships with measured coefficients. Analytical expressions for approximation of these statistical relationships have been derived on the basis of an optical-microphysical model of urban aerosol with variable concentrations, size distribution parameters, and complex refractive index of the particles of aerosol components.

Среди неблагоприятных факторов окружающей среды, влияющих на здоровье населения, большое значение имеет загрязнение воздуха взвешенными частицами (аэрозолем). Согласно данным последних исследований [1], примерно 2.1 миллиона смертей происходят ежегодно из-за увеличения объема мелкодисперсных (респирабельных) частиц в воздухе, которые могут проникать в легкие человека, вызывая рак, сердечнососудистые и респираторные заболевания. В стандартах по качеству воздуха используются массовые концентрации частиц $PM_{1.0}$, $PM_{2.5}$ и PM_{10} с верхним размером 1.0 мкм, 2.5 мкм и 10 мкм соответственно.

Для непрерывного мониторинга аэрозольных загрязнений воздуха рабочих и жилых помещений наиболее простыми и эффективными являются нефелометрические методы, основанные на регистрации рассеянного светового потока, при его прохождении через объем с частицами аэрозоля. Переход от измеряемого фотосигнала к массовой концентрации аэрозоля осуществляется с использованием расчетного или эмпирического коэффициента связи, значение которого может изменяться в широких пределах в зависимости от микрофизических параметров аэрозоля (формы частиц, функции распределения по размерам и комплексного показателя преломления). Существующие нефелометрические анализаторы аэрозоля (Аэрокон-П, Аэрокон-С, КАNOMAX 3431, TM-data и т. п.) требуют калибровки прибора на конкретный тип аэрозоля или ввода опытных поправочных коэффициентов. Это снижает удобство работы и увеличивает погрешность измерений. Кроме того, они не позволяют выполнять контроль загрязнений воздуха с разделением на фракции аэрозоля PM_{1.0}, PM_{2.5} и PM₁₀ (с верхним размером частиц 1.0 мкм, 2.5 мкм и 10 мкм соответственно), используемых в стандартах по качеству атмосферного воздуха.

В докладе рассматривается разработанный авторами метод локального контроля респирабельных фракций аэрозоля в городском воздухе, устойчивый к вариациям их микрофизических параметров [2]. Разработанный метод отличается от общеизвестного нефелометрического метода тем, что в исследуемый объем среды последовательно посылают световое излучение на длинах волн $\lambda_1 \leq 0.55$ мкм и $\lambda_2 \geq 1.0$ мкм, определяют коэффициенты направленного светорассеяния $\beta(\lambda_i, \theta_j)$ (i = 1, 2; j = 1, 2) для углов $\theta_1 \leq 5^\circ$ и $\theta_2 = 15-45^\circ$, а массовые концентрации аэрозольных частиц с размерами ≤ 1 мкм, ≤ 2.5 мкм, ≤ 10 мкм и > 10 мкм определяют на основе регрессионных соотношений:

$$\ln PM_{X} = a_{00}^{X} + \sum_{n=1}^{4} \sum_{m=1}^{M} a_{nk}^{X} \cdot (\mathbf{v}_{n} \mathbf{b})^{m}, \qquad (1)$$

где X = 1.0, 2.5, 10; **b** – вектор результатов измерений с компонентами $\ln\beta(\lambda_i, \theta_j)$, **v**_n – собственные векторы его ковариационной матрицы, a_{nk}^X – коэффициенты регрессии, получаемые на основе «обучающего» ансамбля реализаций РМ_X и $\beta(\lambda_i, \theta_j)$. Крупные частицы обуславливают рассеяние под малыми углами (θ_1), тогда как в боковом рассеянии (θ_2) преобладает вклад более мелких частиц, поэтому, одновременная регистрация рассеянного света в этих двух направлениях дает возможность судить о концентрациях PM₁ и PM₁₀ в исследуемом объеме воздуха. Для повышения точности определения PM₁ и PM₁₀ используются две длины волны зондирующего излучения, она из которых (λ_1) соответствует наибольшей эффективности светорассеяния мелких, другая (λ_1) – крупных частиц. Комплексный анализ всех четырех измеряемых коэффициентов $\beta(\lambda_i, \theta_j)$ позволяет также определять концентрацию средних по размеру частиц PM_{2.5}.

Выбор конкретных значений для углов θ_1 и θ_2 в предложенной схеме измерений связан с двумя обстоятельствами. Во-первых, регистрация излучения, рассеянного под углами $\theta_1 < 5^\circ$, представляет значительные сложности технического характера, связанные с необходимостью разделения прямопрошедшего и рассеянного световых потоков, а также с влиянием дифракции на оптических элементах излучателя. Во-вторых, использование углов $\theta_2 > 20^\circ$ нецелесообразно в связи с существенно возрастающим влиянием комплексного показателя преломления (КПП) и формы частиц на их индикатрису рассеяния.

Для получения регрессионных соотношений между PM_X и $\beta(\lambda_i, \theta_j)$ использовалась оптико-микрофизическая модель городского аэрозоля, принятая Всемирной метеорологической организацией. Данная модель предполагает, что аэрозоля состоит их трех компонент – сажевой (f = 1), водорастворимой (f = 2) и пылевой (f = 3). Каждая компонента характеризуется объемной концентрацией C_f , модальным радиусом x_f и полушириной σ_f распределения частиц по размерам, а также КПП аэрозольного вещества $m_f(\lambda)$. Для статистического моделирования аэрозольных характеристик светорассеяния необходимо задать диапазоны вариаций модельных параметров. Значения параметров x_f и σ_f , характерные для городских аэрозолей, приведены в работе [3]. Диапазоны вариаций C_f выбраны с тем расчетом, чтобы охватить ситуации в атмосфере, соответствующие фоновому уровню загрязненности воздуха и его экстремальной запыленности (или задымленности): $C_1 + C_2 + C_3 = 10^{-3}-10^0$ мм³/м³, $C_2/C_1 = 0.05-10$, $C_3/C_2 = 0.1-200$. Спектры КПП аэрозольных частиц 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 литературных и интернет источников, p_i – весовые коэффициенты, варьируемые в диапазоне 0–1. Массовые концентрации PM_X рассчитывались на основе объемных концентраций и функции распределения частиц по размерам при плотности вещества частиц 1.4 г/см³.

Погрешности определения PM_X с использованием полученных регрессий оценивались на основе "тестового" ансамбля реализаций PM_X и $\beta(\lambda_i, \theta_j)$, сформированного путем вышеописанного статистического моделирования. Восстановление PM_X из "тестовых" реализаций $\beta(\lambda_i, \theta_j)$ проводилось с использованием формулы (1) при наложении на $\beta(\lambda_i, \theta_j)$ случайных отклонений в пределах $\delta\beta = 0-15$ %. Путем сравнения заданных и восстановленые ленных значений PM_1 , $PM_{2.5}$ и PM_{10} оценены погрешности разработанного метода, вызванные статистическим разбросом микрофизических параметров аэрозоля и погрешностями оптических измерений, – $\delta PM_1 = 10.8-14.6$ %, $\delta PM_{2.5} = 8.7-10.0$ %, $\delta PM_{10} = 8.2-11.2$ %. Таким образом, рассматриваемые характеристики аэрозольного светорассеяния обладают достаточно высокой информативностью относительно всех экологически значимых фракций аэрозоля, а решение обратной задачи с использованием полученных регрессий является устойчивым к погрешностям оптических измерений.

Представляет интерес сравнить оптико-микрофизические корреляции аэрозоля, получаемые в рамках используемой модели, с экспериментальными данными. Корреляционные связи PM_X с аэрозольными коэффициентом ослабления є и интегральным (по всем направлениям) коэффициентом рассеяния σ , как правило, описываются коэффициентами $H_X(\lambda) = \varepsilon(\lambda) / PM_X$ и $V_X(\lambda) = \sigma(\lambda) / PM_X$, исследованию которых, в зависимости от региона, времени года, метеопараметров и синоптической обусловленности воздушной массы, посвящено большое количество работ. Рассмотрим результаты некоторых из них.

В работе [4] на основе 30 измерений $\sigma(0.55 \text{ мкм})$ и $PM_{2.5}$ в городской и сельской местностях для коэффициента $V_{2.5}(0.55 \text{ мкм})$ получен диапазон 2.0–5.0 м²/г. При этом для сельской местности было зафиксировано два случая с $V_{2.5}(0.55 \text{ мкм}) > 10 \text{ м}^2/\text{г}$. В [5] выявлена связь $\beta(0.532 \text{ мкм})$ с $PM_{2.5}$, которая при $V_{2.5}(0.532 \text{ мкм}) = 4.1 \text{ м}^2/\text{г}$ проявляется с коэффициентом корреляции 0.8. По данным [6] для районов Пекина $H_{2.5}(0.55 \text{ мкм}) = 3.4\pm1.2 \text{ м}^2/\text{г}$. Коэффициент корреляции между $PM_{2.5}$ и $\varepsilon(0.55 \text{ мкм})$, согласно данным [7], составляет 0.6 и достигается при $H_{2.5}(0.55 \text{ мкм}) = 4.93 (\pm 0.69) \text{ м}^2/\text{г}$. Все эти данные близки к результатам вышеописанного статистического моделирования, согласно которым значение $V_{2.5}(0.55 \text{ мкм})$ находится в диапазоне 2.0–9.9 м²/г, а средние значения $V_{2.5}(0.532 \text{ мкм})$ и $H_{2.5}(0.55 \text{ мкм})$ составляют соответственно 4.0 и 5.3 м²/г.

Согласно экспериментальным данным [8] коэффициент связи между $\sigma(0.55 \text{ мкм})$ и PM_{10} для городских аэрозолей изменяется в диапазоне 0.6–3.2 м²/г, а его среднее значение составляет 1.5±0.5 м²/г. Для воздуха Пекина с относительно низким содержанием антропогенных частиц ($PM_{2.5} < 50 \text{ мкг/m}^3$) значение коэффициента $H_{10}(0.55 \text{ мкм})$ составляет 1.4±0.9 м²/г, тогда как для относительно загрязненного воздуха ($PM_{2.5} > 100 \text{ мкг/m}^3$) $H_{10}(0.55 \text{ мкм}) = 3.1\pm0.9 \text{ м}^2/\Gamma$ [6]. По результатам наших модельных расчетов для коэффициента $H_{10}(0.55 \text{ мкм})$ получен диапазон 0.56–4.41 м²/г и среднее значение 1.8 м²/г, что с учетом неопределенности плотности аэрозольного вещества (в наших расчетах она принята равной 1.4 г/см³), достаточно хорошо согласуется с экспериментальными данными.

Полученные результаты позволяют говорить о возможности создания простого нефелометрического измерителя загрязненности воздуха с разделением фракций массовых концентраций PM₁, PM_{2.5} и PM₁₀, 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.

Литература

1. Global premature mortality due to anthropogenic outdoor air pollution and the contribution of past climate change / R.A. Silva [et. al.] // Environ. Res. Lett. 2013. V. 8. 034005

2. Лысенко, С. А. Нефелометрический метод измерений массовых концентраций городских аэрозолей и их респирабельных фракций / С.А. Лысенко, М.М. Кугейко // Оптика атмосф. и океана. – 2014. Т. 27, № 5. – С. 435–442.

3. Peculiarities in spectral behavior of optical characteristics of urban aerosols by laser sensing data and model estimations / V.V. Barun [et. al.] // Proc. SPIE. – 1999. – V. 3983. P. –279–289.

4. NAPAP (1991) State of science and technology. V III, Chapter 24, Visibility, P. 24–90. The US National Acid Precipitation Assessment Program, Washington DC.

5. Aerosol optical properties at Pasadena, CA during CalNex 2010 / J.E. Thompson [et. al.] // Atmos. Environ. – 2012. – V. 55. – P. 190–200.

6. Optical properties of atmospheric aerosols obtained by in situ and remote measurements during 2006 Campaign of Air Quality Research in Beijing (CAREBeijing-2006) / J. Jung [et. al.] // J. Geophys. Res. – 2009. – V. 114, D00G02. – doi:10.1029/2008JD010337.

7. **Trier, A.** Correlations between urban atmospheric light extinction coefficients and particle mass concentrations / A. Trier, N. Cabrini, J. Ferrer // Atmosfera. – 1997. – V. 10. – P. 151–160.

8. Optical properties and chemical composition of aerosol particles at an urban location: An estimation of the aerosol mass scattering and absorption efficiencies / G. Titos [et. al.] // J. Geophys. Res. -2012. - V. 117, D04206. - doi:10.1029/2011JD016671.