

激光与光电子学进展

成都秋冬季气溶胶消光系数的非平稳性分析

杨萌¹, 倪长健^{1*}, 孟子圣¹, 李昕翼²¹成都信息工程大学大气科学学院高原大气与环境四川省重点实验室, 四川 成都 610225;²成都市气象局, 四川 成都 611130

摘要 基于对大气消光系数时间序列随机性的深入研究, 利用成都市 2015 至 2017 年秋冬季的大气能见度、相对湿度(RH)、颗粒物(PM₁₀和PM_{2.5})质量浓度和NO₂含量监测数据, 反演得到该区域相应时段的气溶胶消光系数时间序列。基于位置、尺度、形状的广义可加模型检测了气溶胶消光系数时间序列的平稳性, 并对气溶胶消光系数序列进行了协变量分析。实验结果表明, 成都秋冬季气溶胶消光系数时间序列均为非平稳序列, 其均值和方差表现为非线性变化。细颗粒物(PM_{2.5})质量浓度、RH和气溶胶组分(PM_{2.5}/PM₁₀)均是气溶胶消光系数序列非平稳变化的显著协变量。其中, PM_{2.5}为气溶胶消光系数序列非平稳性最主要的贡献因子, 其次为RH, 贡献最小的为PM_{2.5}/PM₁₀, 且气溶胶消光系数的爆发式增长与PM_{2.5}、RH和PM_{2.5}/PM₁₀的协同作用密切相关。

关键词 大气光学; 气溶胶; 消光系数; 非平稳性

中图分类号 P401

文献标志码 A

doi: 10.3788/LOP202158.1901002

Nonstationary Analysis of Aerosol Extinction Coefficient in Chengdu During Autumn and Winter

Yang Meng¹, Ni Changjian^{1*}, Meng Zisheng¹, Li Xinyi²¹Plateau Atmosphere and Environment Key Laboratory of Sichuan Province, College of Atmospheric Sciences, Chengdu University of Information Technology, Chengdu, Sichuan 610225, China;²Chengdu Meteorological Service, Chengdu, Sichuan 611130, China

Abstract Based on an in-depth investigation on the randomness of the time series of the atmospheric extinction coefficient, this paper uses the monitoring data of atmospheric visibility, relative humidity (RH), the mass concentrations of particulate matter (PM₁₀ and PM_{2.5}), and NO₂ content during autumn and winter in Chengdu from 2015 to 2017. In addition, the time series of the aerosol extinction coefficient in the corresponding period in Chengdu is obtained. The detection of nonstationarity in the aerosol extinction coefficient time series is conducted using generalized additive models for location, scale, and shape, followed by the covariate analysis of the aerosol extinction coefficient time series. The experimental results show that the aerosol extinction coefficient time series in Chengdu during autumn and winter are nonstationary, with nonlinear changes in their mean and variance. The mass concentration of fine particulate matter (PM_{2.5}), RH, and aerosol component structure (PM_{2.5}/PM₁₀) are significant covariates of nonstationarity in the aerosol extinction coefficient series. Among them, PM_{2.5} contributes the most to the nonstationarity of the aerosol extinction coefficient series, followed by RH, and PM_{2.5}/PM₁₀ contributes the least. The explosive growth of aerosol extinction coefficient is closely related to the synergies of PM_{2.5}, RH, and PM_{2.5}/PM₁₀.

收稿日期: 2021-01-03; 修回日期: 2021-01-17; 录用日期: 2021-01-29

基金项目: 国家重点研发计划(2018YFC0214004, 2018YFC1506006)、四川省科技厅应用基础研究(2021YJ0314)

通信作者: *ncj1970@163.com

Key words atmospheric optics; aerosol; extinction coefficient; nonstationarity

OCIS codes 010.1290; 010.1110; 010.1310

1 引言

气溶胶是指在地球大气中沉降速度小、空气动力学直径为 $10^{-3} \sim 10 \mu\text{m}$ 的液态或固态粒子形成的相对稳定的多相悬浮体系^[1]。大气气溶胶不仅对天气、气候的演化有重要影响,还能表征区域环境的空气质量,是非均相化学反应、云物理及气候辐射强迫等领域的研究热点^[2-4]。

气溶胶消光是大气消光的主体,也是区域秋冬季能见度下降最重要的影响因子。针对成都地区 2017 年冬季大气消光系数的研究表明^[5],观测期间该区域的大气总消光系数为 $(1173.42 \pm 641.21) \text{Mm}^{-1}$,其中,气溶胶消光系数占总消光系数的 90% 以上。早在 1985 年,美国大型能见度观测(IMPROVE)计划就通过对颗粒物理化特征和光学参数的长期监测,获得了不同化学组分的消光系数,为改善系统的能见度提供了基础理论支撑^[6]。进一步研究结果表明,气溶胶消光系数与颗粒物的质量浓度尤其是细颗粒物的质量浓度存在很好的相关性^[7-8]。此外,气溶胶中硫酸盐、硝酸盐和铵盐等无机成分及部分有机物粒子具有的吸湿性使其在不同水汽条件下的微物理参数会发生变化,从而改变颗粒物的辐射特性参数,导致气溶胶粒子群宏观上的物理、化学及光学性质发生变化^[9-10]。大气气溶胶的吸湿性是联系气溶胶微物理和化学参数的纽带和桥梁,也是气溶胶光学性质的决定性参数^[11]。气溶胶消光系数与颗粒物的质量浓度、化学组分及气溶胶吸湿性等因素的变化密切相关。陈一娜等^[12]以 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度和相对湿度构建了大气消光系数双参数模型,该模型在北京地区的大气消光系数模拟中取得了很好的应用效果。通过引入粒子数浓度谱结构因子,Chen 等^[13]完善了低能见度背景下的大气消光参数化方案。针对气溶胶消光系数序列演化的复杂性和不确定性,孙欢欢等^[14]利用相空间重构理论、Cao 方法及代替数据法证明了单位质量消光系数时间序列为随机序列。崔蕾等^[15]基于统计一致性分析构建了一种颗粒物消光湿度修正方法。随着我国社会经济的迅猛发展以及城市化进程的不断加速,大气复合污染及其对大气消光系数的影响愈加复杂^[16]。目前,人们虽然围绕气溶胶消光系数序列

的特性进行了一定程度的理论和应用研究,但在气溶胶消光系数时间序列非平稳性检测方面的研究较少。而气溶胶消光系数时间序列的非平稳性是其随机性研究的重要组成部分,也是构建能见度预报模型的基础,相关研究对明晰雾霾的演化机理具有重要意义。近年来,Rigby 等^[17]提出了基于位置、尺度、形状的广义可加模型(GAMLSS),该模型可选出统计参数具有时变特征的最优分布,能反映时间序列的平稳性,为时间序列的非平稳性分析提供了新思路,被广泛应用于非平稳水文和气象序列的建模中^[18-20]。

本文基于对大气消光系数时间序列随机性的深入认知,引入了可用于分析时间或物理量参数的 GAMLSS,并建立了可变参数的非平稳分布,对成都秋冬季气溶胶消光系数序列的非平稳性进行了系统的研究。

2 数据来源及处理方法

2.1 数据来源及处理

实验使用的数据为成都市温江站 2015 至 2017 年秋冬季(11 月和 12 月)的逐时大气能见度、相对湿度(RH)、 PM_{10} 和 $\text{PM}_{2.5}$ 质量浓度以及 NO_2 监测资料,该资料已经过严格的质量控制并在相关研究中得到了广泛应用。其中,2015 年的可用样本量为 803 个,2016 年的可用样本量为 970 个,2017 年的可用样本量为 714 个。当对比感阈 μ 为 0.05 时,在 550 nm 波长处的大气消光系数 b_{ext} 与大气能见度 V 的关系可表示为^[21]

$$b_{\text{ext}} = \frac{1}{V} \ln \frac{1}{\mu}. \quad (1)$$

大气消光由分子消光和气溶胶消光两部分组成,因此可将大气消光系数分解为

$$b_{\text{ext}} = b_{\text{sg}} + b_{\text{ag}} + b_{\text{aer}}, \quad (2)$$

式中, b_{sg} 为干洁大气散射系数,一般参考文献^[22]取为 $13 \times 10^{-3} \text{km}^{-1}$ 。 b_{ag} 为气态污染物吸收系数,一般仅考虑 NO_2 的吸收,通过计算将 NO_2 的质量浓度转化为 550 nm 处的气态污染物吸收系数,可表示为^[23]

$$b_{\text{ag}} = 0.33\rho_{\text{NO}_2}, \quad (3)$$

式中, ρ_{NO_2} 为 NO_2 的质量浓度 ($\mu\text{g}/\text{m}^{-3}$)。 b_{aer} 为气溶

胶消光系数, 550 nm 波长处的气溶胶消光系数 b_{aer} 可表示为

$$b_{\text{aer}} = b_{\text{ext}} - b_{\text{sg}} - b_{\text{ag}} \quad (4)$$

2.2 GAMLSS

GAMLSS 假设任意时刻 $t(t=1, \dots, n)$ 且彼此相互独立的随机变量观测值 y_t 的分布函数为 $F_y(y_t|\boldsymbol{\theta}_t)$, 其中, $\boldsymbol{\theta}_t=(\theta_{1t}, \dots, \theta_{pt})$ 为一组含有 p 个参数的向量^[17]。 $g_k(\cdot)$ 为已知分布函数中第 k 个参数和解释变量的单调连接函数, 则

$$g_k(\boldsymbol{\theta}_k) = \boldsymbol{\eta}_k = \mathbf{X}_k \boldsymbol{\beta}_k + \sum_{j=1}^{J_k} h_{jk}(x_{jk}), \quad (5)$$

式中, $\boldsymbol{\theta}_k, \boldsymbol{\eta}_k$ 为长度为 n 的向量, $\boldsymbol{\beta}_k=(\beta_{1k}, \dots, \beta_{J_k k})^T$ 为长度为 J_k 的参数向量, \mathbf{X}_k 为 $n \times J_k$ 的解释变量矩阵, h_{jk} 为解释变量 x_{jk} 的未知函数, $h_{jk}(x_{jk})$ 为对解释变量模拟效果更灵活的平滑函数。实验中的平滑函数 $h_{jk}(\cdot)$ 为三次样条函数(X_{cs}), 其自由度不大于 $\ln(n)$ ^[24]。

如果不考虑随机效应的影响, 则

$$g_k(\theta_{kt}) = \beta_{0k} + \sum_{j=1}^{J_k} \beta_{jk} x_{jt}, \quad (6)$$

式中, θ_{kt} 为 t 时刻第 k 个分布参数, β_{jk} 为分布参数 θ_{kt} 与解释变量 x_{jk} 连接函数 $g_k(\cdot)$ 的参数。

为了对比非平稳模型中不同解释变量的相对重要性, 需对(6)式进行修正, 得到标准化 GAMLSS 参数^[18]。当所有解释变量 x_{jt} 等于其平均值 \bar{x}_j 时, 有

$$\theta_{kt}(x_{1t} = \bar{x}_1, \dots, x_{J_k t} = \bar{x}_{J_k}) = \bar{\theta}_k, \quad (7)$$

此时, (6)式变为

$$g_k\left(\frac{\theta_{kt}}{\bar{\theta}_k}\right) = \alpha_{0k} + \sum_{j=1}^{J_k} \alpha_{jk} z_{jt}, \quad (8)$$

式中, z_{jt} 为标准化后的解释变量, α_{jk} 为 GAMLSS 的标准化参数, 连接函数 $g_k(\cdot)$ 为自然对数函数 $\ln(\cdot)$ 。取分布参数 $(\theta_{1t}, \dots, \theta_{pt})$ 中变化最显著的参数为 θ_{it} , 令 $\ln(\theta_{it}) - \ln(\bar{\theta}_i)$ 为气溶胶消光系数序列的非平稳度, 则解释变量 x_{jt} 对 $\ln(\theta_{it}) - \ln(\bar{\theta}_i)$ 的贡献 c_{jt} 可表示为

$$c_{jt} = \alpha_{jt} z_{jt} \quad (9)$$

2.3 分布函数及解释变量的选择

为了探讨气溶胶消光系数均值和方差(分别对应位置参数和尺度参数)的平稳性, 基于近地面单位质量气溶胶消光系数符合对数正态(Lognormal)分布的研究成果^[25], 用两参数 Lognormal 函数作为 GAMLSS 的分布函数。

对于城市区域的气溶胶, 在排放源相对固定的情况下, 受气象条件的影响, 颗粒物的质量浓度、理

化结构等均会发生显著变化^[26]。因此, 实验主要从颗粒物的质量浓度、气溶胶吸湿性和气溶胶组分结构三方面入手, 基于 GAMLSS 统计分析了不同因子对气溶胶消光系数的贡献。已有研究表明^[27], 作为表征气溶胶化学组分结构的关键光学参数, “干”气溶胶的等效复折射率与 $\text{PM}_{2.5}$ 和 PM_{10} 的质量浓度之比($\rho_{\text{PM}_{2.5}}/\rho_{\text{PM}_{10}}$)呈显著相关性。因此, 用 $\rho_{\text{PM}_{2.5}}/\rho_{\text{PM}_{10}}$ 作为气溶胶组分结构的参数, 然后以表 1 中的解释变量作为外部协变量解释模型中参数的变化。

表 1 外部协变量

Table 1 External covariates

External covariate	Variable	Unit
Mass concentration	$\text{PM}_{2.5}$	$\mu\text{g}/\text{m}^3$
Relative humidity	RH	%
Aerosol component structure	$\rho_{\text{PM}_{2.5}}/\rho_{\text{PM}_{10}}$	%

2.4 模型的选择

为分析气溶胶消光系数时间序列的平稳性特征, 建立了 3 种模型: 1) 平稳模型(M0), 其参数在时间上是恒定的; 2) 非平稳模型 1(M1), 其分布参数为随时间变化的函数; 3) 非平稳模型 2(M2), 引入外部协变量, 其分布参数可以随颗粒物质量浓度、RH 和气溶胶组分结构的函数而变化, 模型详情如表 2 所示。表 2 中的模型均可用 AIC(Akaike information criterion) 准则选择最优模型^[28], 用概率点据相关系数(PPCC)和正态 QQ(Quantile-Quantile)图分析模型的残差分布^[29-30]。其中, T 为时间。

表 2 候选模型的参数

Table 2 Parameters of the candidate models

Model code	Variable	Description
M0	-	stationary model
M1a	T	linear time model
M1b	T	nonlinear time model
M2a	external covariates	single covariate
M2b	external covariates	multiple covariates, identified by the stepwise selection

3 实验结果与分析

3.1 成都秋冬季气溶胶消光系数序列特征分析

基于成都市 2015~2017 年秋冬季的逐时大气能见度和 NO_2 监测资料, 利用(1)式~(4)式反演得到该区域相应时段的气溶胶消光系数时间序列, 结果如图 1 所示。可以发现, 气溶胶消光系数并非围

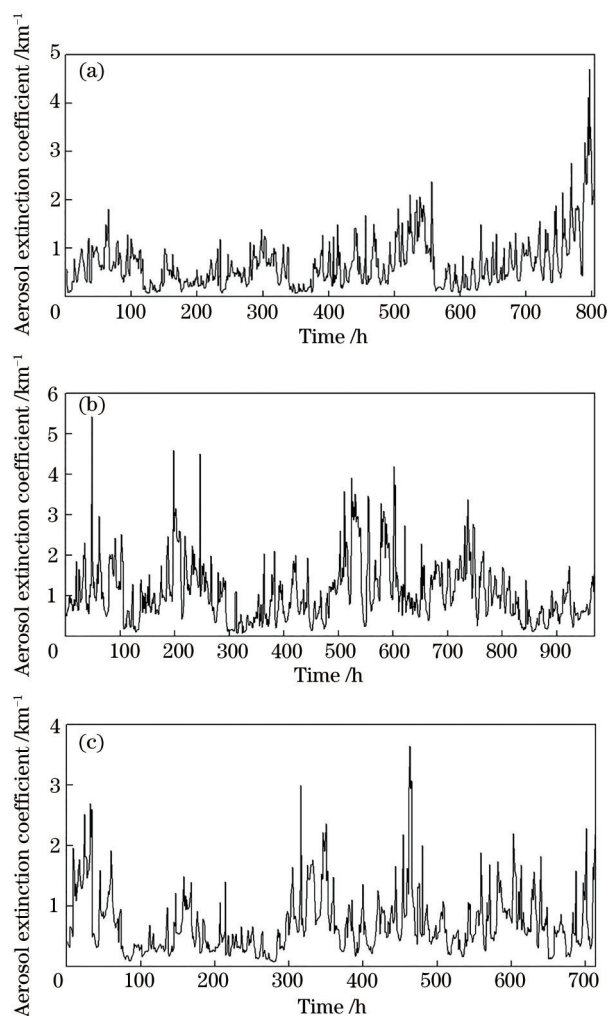


图 1 气溶胶消光系数的时间序列。(a) 2015 年；(b) 2016 年；(c) 2017 年

Fig. 1 Time series of the aerosol extinction coefficient. (a) 2015; (b) 2016; (c) 2017

绕在一个常数值附近随机波动,且振幅随时间的变化而变化,由此可初步判断成都秋冬季气溶胶消光系数序列为非平稳序列。

表 3 为气溶胶消光系数时间序列的统计参数,可以发现,2015 年,2016 年,2017 年秋冬季平均气溶胶消光系数分别为 0.67, 1.08, 0.71 km⁻¹。其中,2016 年秋冬季的平气溶胶消光系数最大,原因是

表 3 气溶胶消光系数时间序列的统计参数

Table 3 Statistical parameters of aerosol extinction coefficient time series

Time	Mean / Standard km ⁻¹	Standard deviation	Skewness coefficient	Kurtosis coefficient	Variation coefficient
2015	0.67	0.53	2.28	9.11	0.79
2016	1.08	0.74	1.41	2.96	0.68
2017	0.71	0.51	1.69	4.01	0.72

2016 年该区域的静稳气象条件导致空气质量下降。三个气溶胶消光系数序列的偏度系数和峰度系数都大于 0,这表明气溶胶消光系数序列具有右偏、尖顶峰的形态特征,数据均值右侧的离散程度强且分布较陡峭。此外,三者的变异系数均较大,这表明序列存在较大的变动幅度。

3.2 非平稳性检验结果

2015~2017 年秋冬季气溶胶消光系数序列基于 M0 和 M1 模型的 AIC 值如表 4 所示。其中,ct 表示参数为常数, X_{cs}(T) 表示参数为时间 T 的三次样条函数。从序列平稳性来分析, M1 模型的 AIC 值均比 M0 模型的 AIC 值小,这表明 2015~2017 年成都秋冬季气溶胶的消光系数序列更适宜非平稳模型。在 M1 中 M1b_5 模型的 AIC 值最小,进一步表明了成都秋冬季气溶胶消光系数序列的均值和方差存在非线性变化。

表 4 M0 与 M1 模型的 AIC 值

Table 4 AIC values of M0 and M1 models

Model code	θ_1	θ_2	2015	2016	2017
M0	ct	ct	785.6	1880.7	704.7
M1a_1	T	ct	722.1	1879.7	695.4
M1a_2	ct	T	779.5	1879.5	697.3
M1a_3	T	T	724.0	1877.5	686.0
M1b_1	X _{cs} (T)	ct	500.8	1597.3	533.2
M1b_2	X _{cs} (T)	T	499.1	1783.0	535.0
M1b_3	ct	X _{cs} (T)	703.1	1783.1	670.8
M1b_4	T	X _{cs} (T)	643.2	1765.3	646.3
M1b_5	X _{cs} (T)	X _{cs} (T)	462.8	1535.9	520.6

以 2015 年秋冬季气溶胶消光系数序列为例,根据 M0 和 M1b_5 模型的拟合结果分别得到平稳模型与时变非平稳模型的分位图,如图 2 所示。可以发现,时变非平稳模型的分位图比平稳模型的分位图更合理,这表明 2015~2017 年成都秋冬季气溶胶消光系数序列存在非平稳性,其均值和方差随时间均呈非线性变化。

3.3 协变量分析

由上述分析可知,成都秋冬季气溶胶消光系数序列是非平稳序列,因此,基于外部协变量建立非平稳 GAMLSS,进一步分析各协变量对气溶胶消光系数序列非平稳性的影响。图 3 为 2015~2017 年秋冬季气溶胶消光系数序列基于 M0、M1b_5、M2a_PM_{2.5}、M2a_RH、M2a_PM_{2.5}/PM₁₀ 和 M2b 模型的 AIC 值。可以发现,在单协变量 M2a 模型中,PM_{2.5} 作为解释变量时模型拟合效果最好,其次为

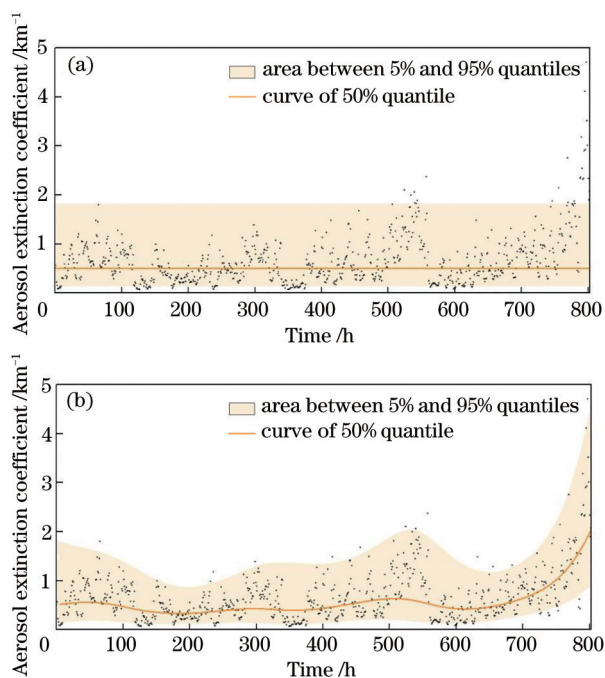


图2 基于M0与M1b_5模型回归的分位图。(a) M0; (b) M1b_5

Fig. 2 Centile curves plots based on M0 and M1b_5 models. (a) M0; (b) M1b_5

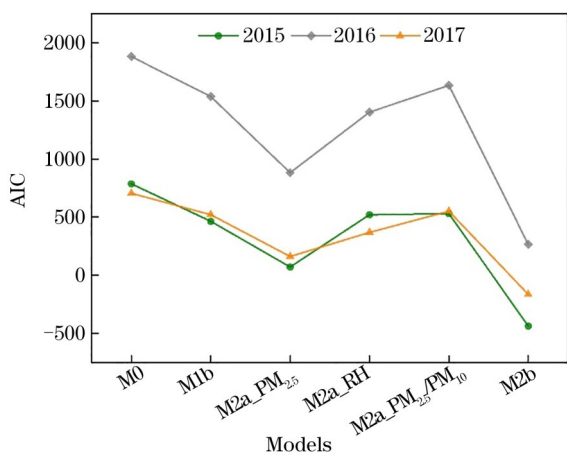


图3 气溶胶消光系数序列模型的AIC值

Fig. 3 AIC value of aerosol extinction coefficient sequence model

RH,拟合效果最差的为 $PM_{2.5}/PM_{10}$ 。引入多个协变量后,M2b模型的AIC值最小,这表明多变量共同影响着气溶胶系数的演化。基于M2b模型得到2015~2017年秋冬季气溶胶消光系数序列的最优拟合结果如表5所示,可以发现,三个序列解释变量的最优组合都含有 $PM_{2.5}$ 、RH和 $PM_{2.5}/PM_{10}$,这表明 $PM_{2.5}$ 、RH和 $PM_{2.5}/PM_{10}$ 均是秋冬季气溶胶消光系数序列非平稳性变化的显著协变量。

表5 基于M2模型得到的气溶胶消光系数序列

Table 5 Aerosol extinction coefficient sequence based on M2 model

Time	θ_1	θ_2	AIC
2015	$PM_{2.5}+RH+$	$PM_{2.5}$	-437.6
	$PM_{2.5}/PM_{10}$		
2016	$PM_{2.5}+RH+$	$PM_{2.5}+RH$	264.2
	$PM_{2.5}/PM_{10}$		
2017	$PM_{2.5}+RH+$	$PM_{2.5}+RH+$	-165.1
	$PM_{2.5}/PM_{10}$		

图4为2015年秋冬季气溶胶消光系数序列基于M2b模型回归的分位图,可以发现,M2b的分位图显示出了比M1b_5更复杂的非平稳模型,分位线的变化更接近实际样本的分布情况。图5为基于M2b回归模型得到的2015~2017年秋冬季气溶胶消光系数序列的残差正态QQ图,可以发现,点数据沿着理论直线分布,两者基本保持一致,验证了模型的合理性。表6为最优GAMLSS的残差分析结果,可以发现,该模型的PPCC非常接近1,这表明实际残差序列与理论残差序列的相关性较高。

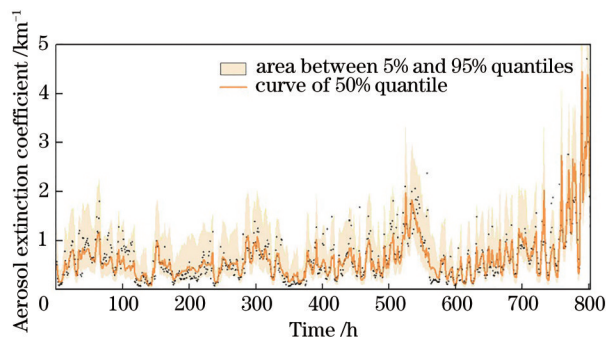


图4 基于M2b模型回归的分位图

Fig. 4 Centile curves plots based M2b model

3.4 各变量的贡献度分析

通过 θ_1 的变化讨论各变量对气溶胶消光系数序列非平稳性的贡献,表7为各变量对气溶胶消光系数序列非平稳性的平均贡献度。可以发现,对于2015~2017年秋冬季气溶胶消光系数序列的非平稳性, $PM_{2.5}$ 的贡献均最大,其次为RH,贡献最小的变量为 $PM_{2.5}/PM_{10}$,与单协变量模型的分析结果一致。这表明 $PM_{2.5}$ 为气溶胶消光系数序列非平稳性最主要的贡献因子,其次为RH,贡献最小的为 $PM_{2.5}/PM_{10}$ 。

气溶胶消光系数的爆发式增长是指气溶胶消光系数在短时间内快速增大的现象,其与多机制耦合的协同作用有关。为进一步探究气溶胶消光系

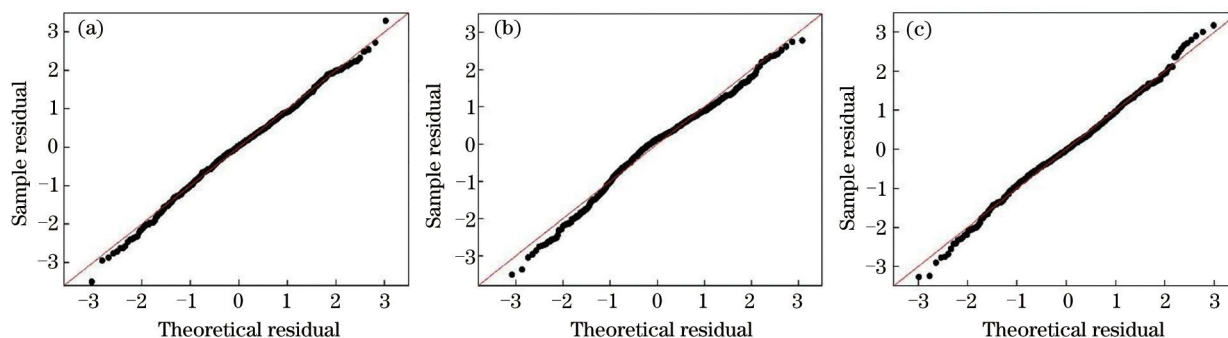


图 5 基于 M2b 模型得到的 QQ 图。(a)2015 年;(b)2016 年;(c)2017 年

Fig. 5 QQ plots based on M2b model. (a) 2015; (b) 2016; (c) 2017

表 6 基于 M2b 模型的残差分析结果

Table 6 Residual analysis results based on the M2b model

Time	Mean	Variance	Skewness	Kurtosis	PPCC
2015	-0.012	1.001	-0.131	3.291	0.998
2016	-0.011	1.001	-0.426	3.346	0.992
2017	-0.010	1.001	-0.018	3.477	0.998

表 7 各变量对气溶胶消光系数序列非平稳性的平均贡献度

Table 7 Average contribution of each variable to the nonstationarity of aerosol extinction coefficient series

Parameter	PM _{2.5}	RH	PM _{2.5} /PM ₁₀
2015	0.308	0.247	0.101
2016	0.333	0.264	0.043
2017	0.390	0.230	0.033

表 8 气溶胶消光系数爆发式增长的关键时段

Table 8 Key period of explosive growth of aerosol extinction coefficient

Process code	Time	Aerosol extinction coefficient /km ⁻¹	
		Min	Max
Process 1	20151103T1400—	0.548	1.803
	20151104T0100		
Process 2	20161205T1400—	0.238	3.463
	20161205T2300		
Process 3	20171218T1400—	0.332	2.281
	20171219T0000		

数爆发式增长与各变量影响之间的关系,选取了 3 个气溶胶消光系数爆发式增长的关键时段,如表 8 所示。对这些关键时段上各变量的贡献度与气溶胶消光系数变化的关系进行分析,结果如图 6 所示。

从图 6 可以发现,在 Process 1 中,气溶胶消光系数最小为 0.548 km⁻¹,对应的 PM_{2.5}、RH 和 PM_{2.5}/PM₁₀ 贡献度分别为 0.118、-0.078 和 0.115;气溶胶消光系数最大为 1.803 km⁻¹,对应的 PM_{2.5}、RH 和 PM_{2.5}/PM₁₀

贡献度分别为 0.299、0.315 和 0.210。在 Process 2 中,气溶胶消光系数最小为 0.238 km⁻¹,对应的 PM_{2.5}、RH 和 PM_{2.5}/PM₁₀ 贡献度分别为 -0.521、-0.908 和 -0.003;气溶胶消光系数最大为 3.463 km⁻¹,对应的 PM_{2.5}、RH 和 PM_{2.5}/PM₁₀ 贡献度分别为 0.290、0.308 和 0.013。在 Process 3 中,气溶胶消光系数最小为 0.332 km⁻¹,对应的 PM_{2.5}、RH 和 PM_{2.5}/PM₁₀ 贡献度分别为 -0.025、-0.685 和 0.012;气溶胶消光系数最大为 2.281 km⁻¹,对应的 PM_{2.5}、RH 和 PM_{2.5}/PM₁₀ 贡献度分别为 2.029、

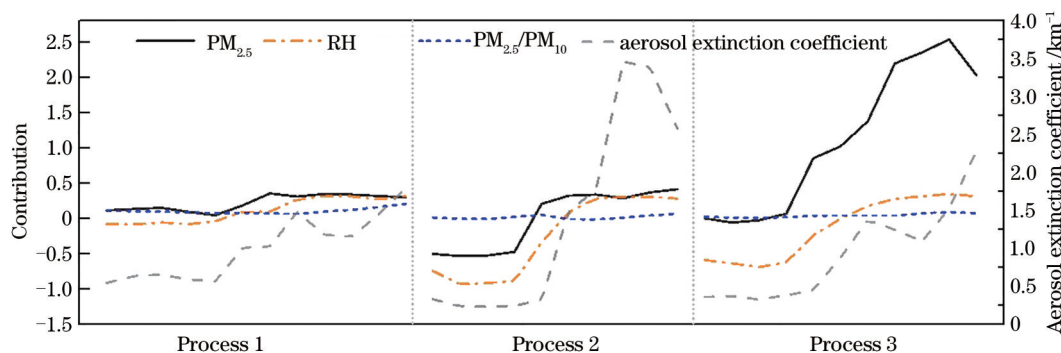


图 6 关键时段内各变量的贡献度与气溶胶消光系数

Fig. 6 Contribution of each variable in the critical period and the aerosol extinction coefficient

0.316 和 0.079。虽然 $PM_{2.5}$ 、RH 和 $PM_{2.5}/PM_{10}$ 的贡献度变化幅度不同,但三者的贡献度均随气溶胶消光系数的增大而增大,这表明气溶胶消光系数呈爆发式增长时, $PM_{2.5}$ 、RH 和 $PM_{2.5}/PM_{10}$ 都有增大趋势,且气溶胶消光系数的爆发式增长与 $PM_{2.5}$ 、RH 和 $PM_{2.5}/PM_{10}$ 三者的协同作用密切相关。

4 结 论

基于 GAMLSS 对成都秋冬季气溶胶消光系数时间序列的非平稳性研究表明,成都秋冬季气溶胶消光系数序列具有非平稳特征,其均值和方差随时间均呈现出非线性变化。对外部协变量非平稳模型的分析发现, $PM_{2.5}$ 、RH 和 $PM_{2.5}/PM_{10}$ 均是气溶胶消光系数序列非平稳变化的显著协变量,其中, $PM_{2.5}$ 对气溶胶消光系数序列非平稳性的贡献最大,其次为 RH, $PM_{2.5}/PM_{10}$ 对气溶胶消光系数序列非平稳性的贡献最小。对气溶胶消光系数序列非平稳性的进一步分析指出,气溶胶消光系数的爆发式增长与 $PM_{2.5}$ 、RH 和 $PM_{2.5}/PM_{10}$ 三者的协同作用密切相关。

参 考 文 献

- [1] Tang X Y, Zhang Y H, Shao M. Atmospheric environmental chemistry[M]. 2nd ed. Beijing: Higher Education Press, 2006.
唐孝炎, 张远航, 邵敏. 大气环境化学[M]. 2 版. 北京: 高等教育出版社, 2006.
- [2] Leibensperger E M, Mickley L J, Jacob D J, et al. Climatic effects of 1950–2050 changes in US anthropogenic aerosols: part 1: aerosol trends and radiative forcing[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2012, 12(7): 3333-3348.
- [3] Lohmann U, Feichter J. Global indirect aerosol effects: a review[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2005, 5(3): 715-737.
- [4] Coakley Jr J A, Cess R D, Yurevich F B. The effect of tropospheric aerosols on the Earth's radiation budget: a parameterization for climate models[J]. Journal of the Atmospheric Sciences, 1983, 40(1): 116-138.
- [5] Yang Y S, Ni C J, Deng Y, et al. Characteristics of atmospheric extinction coefficient and its components in winter in Chengdu[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2019, 39(5): 1425-1432.
杨寅山, 倪长健, 邓也, 等. 成都市冬季大气消光系数及其组成的特征研究[J]. 环境科学学报, 2019, 39(5): 1425-1432.
- [6] Pitchford M, Malm W, Schichtel B, et al. Revised algorithm for estimating light extinction from IMPROVE particle speciation data[J]. Journal of the Air & Waste Management Association, 2007, 57(11): 1326-1336.
- [7] Song D L, Tao J, Zhang P, et al. Seasonal characterization of particle extinction coefficient and its relation with $PM_{2.5}$ mass concentration in Chengdu [J]. Journal of University of Chinese Academy of Sciences, 2013, 30(6): 757-762.
宋丹林, 陶俊, 张普, 等. 成都城区颗粒物消光系数特征及其与 $PM_{2.5}$ 的关系[J]. 中国科学院大学学报, 2013, 30(6): 757-762.
- [8] Tao J, Zhang L, Cao J, et al. A review of current knowledge concerning $PM_{2.5}$ chemical composition, aerosol optical properties and their relationships across China[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2017, 17(15): 1-70.
- [9] Deng H, Tan H B, Li F, et al. Impact of relative humidity on visibility degradation during a haze event: a case study[J]. Science of the Total Environment, 2016, 569/570: 1149-1158.
- [10] Zang L, Wang Z M, Zhu B, et al. Roles of relative humidity in aerosol pollution aggravation over Central China during wintertime[J]. International journal of environmental research and public health, 2019, 16(22): 4422.
- [11] Liu X G, Zhang Y H. Advances in research on aerosol hygroscopic properties at home and abroad [J]. Climatic and Environmental Research, 2010, 15(6): 808-816.
刘新罡, 张远航. 大气气溶胶吸湿性质国内外研究进展[J]. 气候与环境研究, 2010, 15(6): 808-816.
- [12] Chen Y N, Zhao P S, He D, et al. Characteristics and parameterization for atmospheric extinction coefficient in Beijing[J]. Environmental Science, 2015, 36(10): 3582-3589.
陈一娜, 赵普生, 何迪, 等. 北京地区大气消光特征及参数化研究[J]. 环境科学, 2015, 36(10): 3582-3589.
- [13] Chen J, Zhao C S, Ma N, et al. A parameterization of low visibilities for hazy days in the North China Plain[J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2012, 12(11): 4935-4950.
- [14] Sun H H, Ni C J, Cui L, et al. Stochastic characteristic analysis of time series of extinction coefficient in Chengdu[J]. Acta Optica Sinica, 2016, 36(8): 0801001.
孙欢欢, 倪长健, 崔蕾, 等. 成都市大气消光系数时

- 间序列随机特性分析[J]. 光学学报, 2016, 36(8): 0801001.
- [15] Cui L, Ni C J, Sun H H, et al. Hygroscopic growth properties of particles in Chengdu and its correction methodology[J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2016, 36(11): 3938-3943.
崔蕾, 倪长健, 孙欢欢, 等. 成都颗粒物吸湿增长特征及订正方法研究[J]. 环境科学学报, 2016, 36(11): 3938-3943.
- [16] Chang D, Song Y, Liu B. Visibility trends in six megacities in China 1973-2007[J]. *Atmospheric Research*, 2009, 94(2): 161-167.
- [17] Rigby R A, Stasinopoulos D M. Generalized additive models for location, scale and shape (with discussion) [J]. *Journal of the Royal Statistical Society: Series C (Applied Statistics)*, 2005, 54(3): 507-554.
- [18] Xiong L H, Jiang C, Du T. Statistical attribution analysis of the nonstationarity of the annual runoff series of the Weihe River[J]. *Water Science and Technology*, 2014, 70(5): 939-946.
- [19] Zhang D D, Lu F, Zhou X N, et al. GAMLSS model-based analysis on nonstationarity of extreme precipitation in Daduhe River Basin[J]. *Water Resources and Hydropower Engineering*, 2016, 47(5): 12-15, 20.
张冬冬, 鲁帆, 周翔南, 等. 基于 GAMLSS 模型的大渡河流域极值降水非一致性分析[J]. 水利水电技术, 2016, 47(5): 12-15, 20.
- [20] Li Q P, Chen X R, Zhu Y D. Analysis of driving factors of carbon dioxide emission based on GAMLSS model[J]. *Advances in Applied Mathematics*, 2020, 9(8): 1177-1186.
李秋萍, 陈兴荣, 朱焱丹. 基于 GAMLSS 模型的二氧化碳排放驱动因素分析[J]. 应用数学进展, 2020, 9(8): 1177-1186.
- [21] Pueschel R F, Noll K E. Visibility and aerosol size frequency distribution[J]. *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, 1967, 6(6): 1045-1052.
- [22] Penndorf R. Tables of the refractive index for standard air and the Rayleigh scattering coefficient for the spectral region between 0.2 and 20.0μ and their application to atmospheric optics[J]. *Journal of the Optical Society of America*, 1957, 47(2): 176.
- [23] Sloane C S, Wolff G T. Prediction of ambient light scattering using a physical model responsive to relative humidity: validation with measurements from Detroit[J]. *Atmospheric Environment* (1967), 1985, 19(4): 669-680.
- [24] López J, Francés F. Non-stationary flood frequency analysis in continental Spanish rivers, using climate and reservoir indices as external covariates[J]. *Hydrology and Earth System Sciences*, 2013, 17(8): 3189-3203.
- [25] Sun H H, Ni C J, Cui L, et al. Statistical distribution characteristics of surface extinction efficiency in different humidity conditions[J]. *China Powder Science and Technology*, 2016, 22(6): 59-63.
孙欢欢, 倪长健, 崔蕾, 等. 不同湿度条件下大气消光系数的概率分布特征[J]. 中国粉体技术, 2016, 22(6): 59-63.
- [26] Wei L F, Yang F M, Tan J H, et al. Research progress on aerosol extinction properties[J]. *Environmental Chemistry*, 2014, 33(5): 705-715.
韦莲芳, 杨复沫, 谭吉华, 等. 大气气溶胶消光性质的研究进展[J]. 环境化学, 2014, 33(5): 705-715.
- [27] Zhang Z C, Ni C J, Tang J Y, et al. Correlation between equivalent complex refractive index of "dry" aerosol and its mass concentration index[J]. *Acta Optica Sinica*, 2019, 39(5): 0501002.
张智察, 倪长健, 汤津赢, 等. "干"气溶胶等效复折射率与其质量浓度指标的相关性研究[J]. 光学学报, 2019, 39(5): 0501002.
- [28] Akaike H. A new look at the statistical model identification[J]. *IEEE Transactions on Automatic Control*, 1974, 19(6): 716-723.
- [29] Filliben J J. The probability plot correlation coefficient test for normality[J]. *Technometrics*, 1975, 17(1): 111-117.
- [30] Stasinopoulos M D, Rigby R A, Heller G Z, et al. Flexible regression and smoothing: using GAMLSS in R[M]. CRC Press, 2017.