

# 改进的地基红外超光谱数据痕量气体反演方法

江 澄 赵慧洁 李 娜

(北京航空航天大学教育部精密光机电一体化技术重点实验室, 北京 100191)

**摘要** 利用地基探测仪器监测大气痕量气体的区域分布及动态变化,对于有效评估和预测局部地区的大气环境以及星载大气成分探测仪器性能指标的提出具有重要的意义。在现有痕量气体反演算法 SFIT2 的基础上,通过改进最优化寻优策略,建立了基于信赖域的痕量气体反演的新模型,解决了实际应用中大气先验信息与实际状况差异较大时的算法全局收敛性问题,实现了大气参数获取困难时痕量气体的有效反演。基于北京地区 9~10 月间地基红外超光谱数据,对大气中重要痕量气体 CO 的柱状总量和混合比廓线进行了反演实验,结果表明,该改进反演模型的有效性,能够为后续研究痕量气体含量的变化规律及其对环境、气候的影响程度提供支持。

**关键词** 遥感;反演;最优化;混合比廓线

中图分类号 P413.2<sup>+1</sup> 文献标识码 A doi: 10.3788/AOS201131.0701002

## Improved Retrieval Algorithm of Trace Gas from Ground-Based Infrared Ultraspectral Data

Jiang Cheng Zhao Huijie Li Na

(Precision Opto-Mechatronics Technology Key-Laboratory, Ministry of Education, Beijing University of Aeronautics and Astronautics, Beijing 100191, China)

**Abstract** Ground-based monitoring of the distributions and dynamic change in local area of trace gases can play an important role in predicting the local atmosphere and designing the space-based instruments for sounding atmospheric moleculars. Based on the trace gas inversion algorithm SFIT2, the optimization process is improved and a novel inversion model is developed based on truth region method. A solution to the convergence of algorithm when the *a priori*  $i$  and true atmospheric information have great differences is found, and effective inversion of trace gases is realized when atmospheric parameters are hard to get. The total column amount and the volume mixing ratio of carbon monoxide are retrieved from the ground-based infrared ultraspectral data during September and October in Beijing. The results improve the validity of this modified algorithm and the ability for understanding the trace gases and their effects on environment and climate.

**Key words** remote sensing; retrieval; optimization; volume mixing ratio profile

**OCIS codes** 010.0280; 100.3190; 280.1120; 300.6340

## 1 引 言

随着经济的急速发展,环境污染和生态破坏越来越严重,大气成分及浓度发生了巨大的变化,其中痕量气体间接对全球的生态环境以及气候变化造成严重影响<sup>[1~3]</sup>。大气痕量气体的研究日益受到重

视,其总量和浓度随高度分布的变化成为国际上的热点研究方向。

基于地基仪器的探测方式既可以获取定点的大气成分含量,能够对局部区域的大气环境做出有效评估和预测<sup>[4,5]</sup>;同时还可作为星载仪器探测的原

收稿日期: 2010-12-16; 收到修改稿日期: 2011-03-25

基金项目: 国家 863 计划(2008AA12A201)和长江学者和创新团队发展计划(IRT0705)资助课题。

作者简介: 江 澄(1985—),男,博士研究生,主要从事大气反演和辐射传输建模等方面的研究。

E-mail: jiangcheng@aspe.buaa.edu.cn

导师简介: 赵慧洁(1966—),女,博士,教授,主要从事光电探测和高光谱建模与应用等方面的研究。

E-mail: hjzhao@buaa.edu.cn

理基础与结果的检验方式<sup>[6]</sup>,能够对星载大气成分探测仪器的性能指标提出要求。目前,国内超光谱大气精细成分地基探测刚刚起步,前期主要采用低光谱分辨率的载荷利用差分吸收光谱(DOAS)技术进行研究与分析<sup>[7-9]</sup>,为了获得大气成分的垂直分布特性,迫切需要根据超光谱数据的特点以及痕量气体成分反演的应用需求,进行地基大气精细成分反演模型与方法研究。国外的地基大气成分探测技术发展较为成熟,并且反演方法一般是基于 SFIT2 算法包<sup>[10]</sup>,该方法将痕量气体的反演问题归结为模拟光谱与测量光谱之间的无约束非线性最优化问题,采用高斯-牛顿迭代法寻求最优解,然而该类方法对初始值相当敏感。由于实际大气参数一般很难获取,在大气先验信息与真实大气状况差异较大时,通过 SFIT2 反演得到的痕量气体廓线将与实际气体分布特性相差较大,甚至出现错误的反演结果。针对上述问题,本文提出了基于信赖域的改进大气痕量气体成分反演模型与方法,并通过对大气中重要痕量气体 CO 的研究,证明了改进算法在实际反演中的有效性。

## 2 反演模型

基于地基红外超光谱的大气精细成分反演,首先需要利用前向模型构建模拟光谱,通过大气成分混合比廓线的迭代,使得模拟光谱与测量光谱达到最佳匹配,从而获得气体廓线和总量的最优估计值。在仪器参数已知的条件下,辐射传输的前向问题可以写为

$$y = F(x, b) + \epsilon_y, \quad (1)$$

式中  $y$  为测量光谱;  $x$  为待反演的未知参量,其中包括气体廓线;  $F$  为前向模型,依赖于  $x$  和模型参数  $b$ ;  $\epsilon_y$  为测量误差。模型参数  $b$  作为前向模型的输入参数,包含谱线参数、温度压强廓线等。若定义  $K = \partial F / \partial x$  是权重函数,那么(1)式一般可以线性化为

$$y = Kx + \epsilon_y. \quad (2)$$

地基光谱主要经过了分子散射、气溶胶散射、谱线吸收以及远翼连续吸收等辐射衰减,考虑到测量光谱的范围大约只有  $1 \sim 5 \text{ cm}^{-1}$ ,在中红外波段,分子散射、气溶胶散射均随波长缓慢变化,所以在  $0.02 \text{ cm}^{-1}$  的超光谱分辨率条件下,辐射衰减的最主要贡献来自谱线吸收,而其余贡献可以忽略。同时,选择适当的气体特征吸收区间,  $1 \sim 5 \text{ cm}^{-1}$  的光谱范围内可以尽可能的只包含待研究气体的吸收谱线。

## 2.1 前向模型

如(1)式所示,前向模型在反演模型中起着极其重要的作用,它将实际大气与模型大气紧密联系起来,是基于物理规律对大气辐射传输过程的数学描述,目的是真实反映大气的前向辐射。模拟光谱的计算过程如图 1 所示。

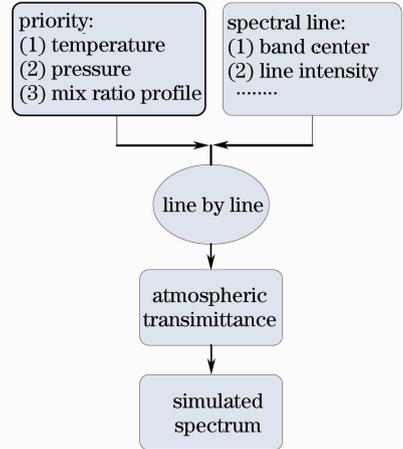


图 1 前向模型计算过程

Fig. 1 Calculation process of forward model

由图 1 可知,前向模型的核心是逐线积分,一种气体的吸收带由几百到近万条吸收线组成,对于给定的气体分子,某一确定波数上的透过率是邻近所有谱线吸收效应叠加的结果。谱线的相关参数(如吸收线中心波长、线强以及低能态能量)取自空军地球物理研究所(AFGL)的高分辨率大气透过率分子吸收数据库(HITRAN2004 版)<sup>[11]</sup>,但是其中的参数都是在 296 K 的标准温度下给出的,用量子力学的理论可以得到线强的温度修正公式:

$$S = S(T_s) \left( \frac{T_s}{T} \right)^\beta \frac{Q_v(T_s)}{Q_v(T)} \exp\left( \frac{E''}{kT_s} - \frac{E''}{kT} \right), \quad (3)$$

式中  $S(T_s)$  为标准温度  $T_s$  时的线强,  $E''$  为跃迁时的低态能量,  $Q_v(T_s)$ ,  $Q_v(T)$  分别表示标准温度和任意温度的振动配分函数,  $\beta$  随分子不同而异,一般对于线型分子取 1 即可。

实际在利用前向模型时,在假定大气呈均匀分布并处于局域热力学平衡的情况下,将大气分为  $0.2 \sim 80 \text{ km}$  的层结构,  $0.2 \sim 40 \text{ km}$  内的层间隔约为  $1 \text{ km}$ ,  $40 \sim 80 \text{ km}$  范围内的间隔约为  $5 \text{ km}$ 。同时在计算谱线吸收时,考虑吸收线中心邻近  $20 \text{ cm}^{-1}$  范围内所有谱线的贡献。

## 2.2 痕量气体的反演

假设大气状态是一个随机变量,记为  $x$ ,当观测辐射值为  $y$  时,大气状态取值为  $x$  的概率为  $P(x | y)$ 。寻求某个  $\bar{x}$ ,当  $x = \bar{x}$  时,观测辐射值为  $y$  的概率最大。

$\bar{x}$  意味着最有可能是该观测时刻的大气真实状态。所以,目标函数可写为

$$J(x) = \max P(x | y), \quad x \in R^n \quad (4)$$

SFIT2 采用高斯-牛顿迭代法寻求目标函数的最优解,其迭代过程可看作先求得使  $J(x)$  的二次逼近函数  $q_k(d)$  在点  $x_k$  时达到最小时的  $d$ ,然后利用  $x_{k+1} = x_k + d$  进行更新。然而当  $J(x)$  为一般的非线性函数时,只有在  $x_k$  的邻域中,二次逼近函数  $q_k(d)$  才可作为  $J(x)$  的近似。在实际应用中,若大气先验信息与实际状况相差较大, $q_k(d)$  将不会较好地近似  $J(x)$ ,若仍然采用牛顿迭代法则无法保证算法的全局收敛性,导致错误的反演廓线。同时若计算中的赫斯矩阵非正定时,最优化问题可能出现无解的情况。

为了使算法的实用性更强,针对上述问题,将最优化理论中的信赖域法<sup>[12]</sup>应用到反演过程中,即限定  $x_k$  的一个适当邻域  $\|d\| \leq h_k$ ,称为信赖域,在该邻域里优化函数  $q_k(d)$ ,若不满足精度要求,再定义以  $x_{k+1}$  为中心的信赖域,并继续优化新的二次逼近函数,直至满足精度要求。同时在迭代过程中,不断调整信赖域的半径,使得信赖域上的逼近函数不断接近真正的目标函数  $J(x)$ ,此时确定的点  $x_k + d$  即为该区域内目标函数最小点的一个最优近似。

在缺乏合理有效的大气参数时,基于信赖域的反演算法限定了一个有界闭集合(信赖域),即使赫斯矩阵非正定,最优化问题也有解;同时信赖域半径的不断调整使得最初的问题求解转化为数个问题的求解,从而实现了全局收敛性。

最优化问题的求解是在有限个可能的解中选择一个某种意义上的最优解,需要对其进行精度评价,分析各种误差源及其对结果的影响。目前采用最优化方法反演痕量气体的误差分析都是基于 Rodgers 的工作<sup>[4]</sup>。在线性近似的情况下,真实值  $\bar{x}$  与反演值  $x$  的差别可以写为

$$\bar{x} - x = (A_{xx} - I)(x - x_a) + A_{xx}(e - e_a) + G_y K_b(b - \bar{b}) + G_y \varepsilon, \quad (5)$$

式中  $G_y$  是反演增益矩阵,反映了反演值对测量值的敏感程度。 $K_b = \partial F / \partial b$ ,反映了前向模型对非反演参数的敏感程度。 $(A_{xx} - I)(x - x_a)$  称作平滑误差,即先验信息由于前向模型中的大气分层而对反演值产生的误差; $A_{xx}(e - e_a)$  是由于反演参数中的廓线与其他参数之间的相互影响而产生的误差; $G_y K_b(b - \bar{b})$  称作模型参数误差; $G_y \varepsilon$  为测量误差,主要由仪器噪声引起。

### 3 实验及结果分析

CO 作为大气中重要的污染物之一,通过消耗大气中 OH、减弱大气的氧化能力等方式来影响对流层化学反应平衡和物质平衡<sup>[5]</sup>,同时其也是导致气候变化的一种间接温室气体。为了研究北京地区的 CO 含量变化规律,同时验证新反演模型的有效性,基于 2008 年 9~10 月间的地基红外超光谱数据对 CO 的混合比廓线及柱状总量进行了反演分析。

采用前向模型计算模拟光谱时,需要输入的大气参数包括温度、压强廓线以及痕量气体的先验廓线。35 km 高度以下的温度和压强廓线由国家气象局的探空数据提供,而 35 km 以上分别通过线性插值和指数函数插值获得。痕量气体的先验廓线取自澳大利亚 Wollongong 地区的大气组成,其与本实验区的大气状况存在较大差异<sup>[13]</sup>,本文的实验结果可以体现改进的反演模型对于此种情况的适用性。

通过分析 CO 在红外波段的吸收特征,选择  $4275 \text{ cm}^{-1}$  附近的光谱进行反演<sup>[14]</sup>,此光谱区间除了 CO 的主要吸收, $\text{H}_2\text{O}$  和  $\text{CH}_4$  也有一定吸收,所以在反演过程中要考虑这两种分子的影响。每个测量日获取一系列光谱数据(大气状况较好时可达 28 组),图 2 是 9 月 10 日太阳天顶角(SZA)为  $44.04^\circ$  时测量光谱与模拟光谱的比较,二者的最大误差为 0.0517,从光谱匹配角度来看,前向模型所模拟的光谱与实测光谱的相关系数为 0.9978,说明拟合程度较好。

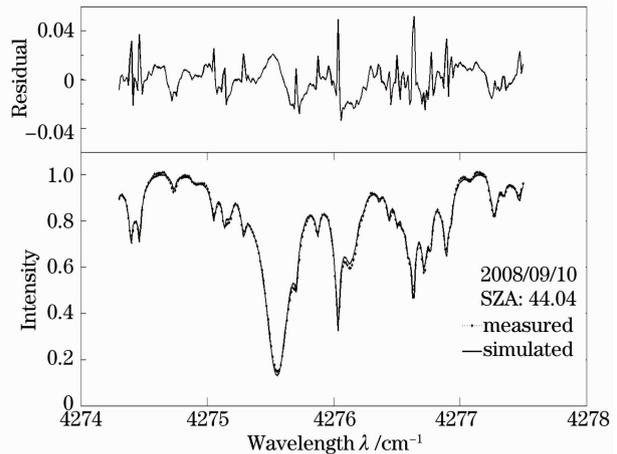


图 2 CO 在  $4275 \text{ cm}^{-1}$  的测量光谱、模拟光谱与残差  
Fig. 2 Measured, simulated spectrum and residual of CO at  $4275 \text{ cm}^{-1}$

每日约间隔 30 min 测量一组数据,根据当日测得的多组光谱数据,可以反演 CO 不同时刻的总量和混合比廓线。CO 总量随观测时间的变化如图 3 所

示。9月10日,9月26日和10月6日约从8:00~17:00进行测量,9月18日可能由于大气在中午时分发生变化,所以只获得了14:00之前的数据。由图3可以看出,9:00时CO含量较高,随后逐渐减小达到平稳状态,之后开始回升,并在17:00左右达到峰值。这可能与早上和下午的两个交通高峰导致的机动车排放源增加有关。

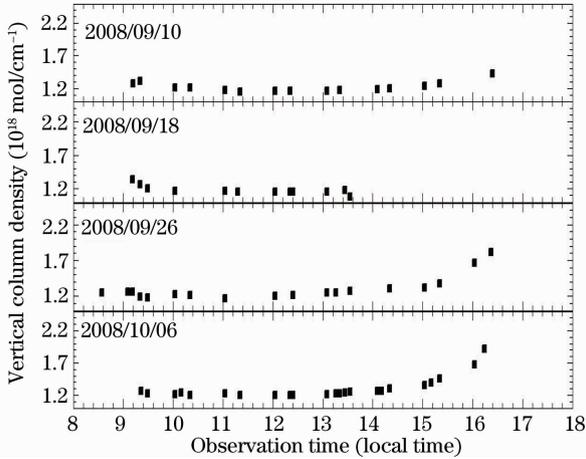


图3 每日不同观测时刻的CO总量

Fig. 3 Time series of total column density measurements of CO during Sept 10 to Oct 6

图4是根据9月26日信噪比较高的8组光谱反演的CO廓线分布(1~50 km),比较了分别采用SFIT2算法和改进的反演算法所得到的廓线。由于大气先验信息与实际大气状况差异较大,SFIT2算法经过有限次迭代后不收敛,并未获知CO实际的垂直分布特性,反演结果即为模型输入的先验信息;而改进算法所得到的CO廓线能够反映出局部地区大气的特点。CO在25 km以上含量变化很小,故此高度区间内北京地区与Wollongong地区的廓线基本一致;而在25 km以下,北京地区机动车尾气排放量较大,CO含量要高于Wollongong地区,这

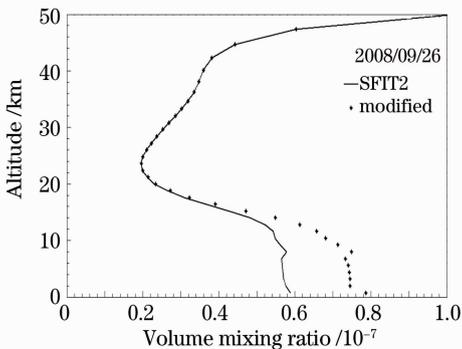


图4 CO混合比廓线

Fig. 4 Volume mixing ratio profile of CO

与反演结果一致,但是由于缺乏北京地区CO真实分布的其他信息,该方法的反演精度评价有待进一步研究。

## 4 结 论

在现有大气痕量气体反演算法的基础上,针对实际应用中出现的先验信息不足或不准确情况下反演模型不收敛等问题,提出了基于信赖域的改进模型与方法。实验结果表明改进的反演算法在大气参数获取困难的情况下,获得较为准确的局部地区痕量气体的分布情况,并将该方法应用于大气痕量气体CO含量的实际监测,验证了该方法的有效性和适用性。通过获取其他数据源的大气成分探测数据,结合反演结果对反演算法的精度进行评价是下一步的工作重点。

**致谢** 感谢北京威胜霄汉公司提供地基红外超光谱数据,同时感谢国家气象局提供了压强、温度廓线以及澳大利亚Wollongong大学Nicholas Jones教授提供了大气痕量气体的先验廓线。

## 参 考 文 献

- 1 W. Dybdahl. Ground-Based FTIR Measurements of Antarctic Trace Gases[D]. US: University of Denver, 2001. 5~15
- 2 Li Suwen, Yang Yijun, Chen Debao *et al.*. A study on retrieval of atmospheric aerosol parameters and trace gases based on differential optical absorption spectroscopy[J]. *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 2010, **30**(8): 2292~2294  
李素文, 杨一军, 陈得宝等. 利用DOAS技术同时反演气溶胶和大气痕量气体方法研究[J]. *光谱学与光谱分析*, 2010, **30**(8): 2292~2294
- 3 Dejian Fu, Kaley A. Walker, Keeyoon Sung *et al.*. The portable atmospheric research interferometric spectrometer for the infrared PARIS-IR [J]. *J. Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 2007, **103**(2): 362~370
- 4 Keeyoon Sung, Randall Skelton, Kaley A. Walker *et al.*. N<sub>2</sub>O and O<sub>3</sub> arctic column amounts from PARIS-IR observations: retrievals, characterization and error analysis[J]. *J. Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 2007, **107**(3): 385~406
- 5 B. Barret, M. De Maziere, E. Mahieu. Ground-based FTIR measurements of CO from the jungfrau-joch; characterisation and comparison with in situ surface and MOPITT data[J]. *Atmos. Chem. Phys.*, 2003, **3**(5): 2217~2223
- 6 A. Walker, F. Bernath. Validation measurement program for the atmospheric chemistry experiment [C]. *SPIE*, 2002, **4814**: 91~101
- 7 Ma Jinji, Li Suwen. Modified retrieval algorithm on decreasing detection limits in differential optical absorption spectroscopy [J]. *Acta Optica Sinica*, 2009, **29**(9): 2351~2354  
麻金继, 李素文. 降低DOAS系统探测限的新型反演算法研究[J]. *光学学报*, 2009, **29**(9): 2351~2354
- 8 Wang Ping, Chen Hongbin, Lü Daren *et al.*. Retrieval of stratospheric O<sub>3</sub> and NO<sub>2</sub> columns from the ground-based twilight zenith sky observations [J]. *Chinese J. Atmospheric Sciences*,

- 2003, **27**(6): 1067~1076
- 王 萍, 陈洪滨, 吕达仁. 地基曙目光谱观测反演平流层 O<sub>3</sub> 和 NO<sub>2</sub> 柱含量[J]. 大气科学, 2003, **27**(6): 1067~1076
- 9 Peng Fumin, Xie Pinhua, Zhang Yinghua *et al.*. Effect of spectral resolution on measurement of trace gases in atmosphere by differential optical absorption spectroscopy[J]. *Acta Optica Sinica*, 2008, **28**(9): 1643~1648
- 彭夫敏, 谢品华, 张英华 等. 分辨率对大气中痕量污染气体的 DOAS 测量性能影响研究[J]. 光学学报, 2008, **28**(9): 1643~1648
- 10 F. Hase, J. W. Hannigan, M. T. Coffey *et al.*. Intercomparison of retrieval codes used for the analysis of high-resolution, ground-based FTIR measurements [J]. *J. Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 2004, **87**(1): 25~52
- 11 L. S. Rothman. The HITRAN 2004 molecular spectroscopic database [J]. *J. Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 2005, **96**(2): 139~204
- 12 Chen Baolin. *Optimal Theries and Methods (Second Edition)* [M]. Beijing: Tsinghua University Press, 2005. 315~321
- 陈宝林. 最优化理论与算法(第二版)[M]. 北京:清华大学出版社, 2005. 315~321
- 13 C. Clerbaux, P. F. Coheur, D. Hurtmans *et al.*. Carbon monoxide distribution from the ACE-FTS solar occultation measurements[J]. *Geophysical Research Letters*, 2005, **32**: L16S01
- 14 A. Meier, C. Toon, P. Rinsland *et al.*. *Spectroscopic Atlas of Atmospheric Microwindows in the Middle Infrared*[M]. Sweden: Swedish Institute of Space Physics, 2004. 432~433

\*\*\*\*\*

## 2011 年“纪念《光学学报》创刊 30 周年特刊” 征 稿 启 事

创刊于 1981 年的《光学学报》是中国光学学会主办的第一本期刊。30 年来,在历任主编王大珩院士、王之江院士、王润文研究员、徐至展院士和现任主编曹健林研究员的领导下,《光学学报》取得了一系列的成绩。2010 年影响因子达到 2.0,在国内物理类科技期刊中排名第一,连续 7 年荣获“百种中国杰出学术期刊”,被世界重要检索系统 EI,CA, AJ 和 INSPEC 等收录。《光学学报》始终致力于为我国光学科技人员与国内外同行进行学术交流、开展学术讨论以跟踪学科前沿和发展我国光学事业服务。《光学学报》刊登的论文集中反映了中国光学科技的新概念、新成果和新进展,其内容主要包括光纤光学与光通信、激光光学、信息光学、光学测量、光谱学、薄膜光学、量子光学、非线性光学、光学器件和材料等。为了纪念《光学学报》创刊 30 周年,编辑部计划在 2011 年 9 月正刊上出版“纪念《光学学报》创刊 30 周年特刊”,现特向国内外广大专家征集研究快报、研究论文和综述,以期集中反映我国近年来在光学及其相关领域取得的重大成就。

### 征稿范围:

光学及其相关领域。

### 稿件类型:

- 1、简报报道课题组最新研究成果的研究快报;
- 2、具有较高的创新性的原创研究论文;
- 3、国内外知名专家亲自撰写的综述文章。

特刊稿件截稿日期:2011 年 7 月 10 日

投稿方式以及格式:可通过中国光学期刊网网上投稿系统直接上传稿件(请在留言中标明“纪念《光学学报》创刊 30 周年特刊”投稿),详情请参见 <http://www.opticsjournal.net>。本特刊投稿文体为中文,电子版请使用 MS-word 格式。有任何问题请咨询马沂编辑,E-mail: mayi@siom.ac.cn,电话:021-69918427-802。