

基于多轴差分吸收光谱技术的查找表法反演 气溶胶消光廓线研究

吴丰成 谢品华 李 昂 司福祺 徐 晋 范广强 刘建国 刘文清

(中国科学院安徽光学精密机械研究所环境光学与技术重点实验室, 安徽 合肥 230031)

摘要 大气气溶胶特性包括气溶胶的物理、化学、光学特性, 而气溶胶光学参数的确定是准确估算辐射强迫的前提条件。提出一种结合大气辐射传输模型, 利用查找表法反演气溶胶消光的方法, 研究了单次散射反照率、非对称因子及地表反照率等输入参数对模拟氧的二聚体(O_3)大气质量因子的影响。利用多轴差分吸收光谱(MAX-DOAS)技术在不同仰角下进行测量, 将计算得到的 O_3 的大气质量因子与辐射传输模型计算的大气质量因子做比较, 通过最小化及线性插值过程反演出气溶胶的光学厚度、边界层高度及地面消光系数。建立查找表, 以上海宝山监测点多轴差分吸收光谱仪测量为例, 反演出气溶胶的消光, 并与雷达监测数据做对比, 两者具有较好的一致性。结果表明, 查表法可以实现气溶胶特性的探测。

关键词 大气光学; 查找表; 气溶胶; 二聚体

中图分类号 O433 **文献标识码** A **doi:** 10.3788/AOS201333.0601002

Research of Aerosol Extinction Inverted with Look-Up Table Method Based on Multi-Axis Differential Optical Absorption Spectroscopy

Wu Fengcheng Xie Pinhua Li Ang Si Fuqi Xu Jin Fan Guangqiang
Liu Jianguo Liu Wenqing

(Key Laboratory of Environmental Optical and Technology, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Hefei, Anhui 230031, China)

Abstract The properties of aerosol include physical, chemical and optical characteristics. While the determinant of optical parameters is the prerequisite for accurate estimation to the radiation forcing. A method for determining aerosol extinction with look-up table is presented combined with radiative transfer model. Also the effects of single scatter albedo rate, asymmetry parameter and ground albedo rate on the simulation of O_3 air mass factor are studied. Using O_3 air mass factor based on multi-axis differential optical absorption spectroscopy (MAX-DOAS) measurement at different elevation angles, simulated O_3 air mass factor and the factor got through the radiative transfer model are compared. The aerosol optical density, boundary height and extinction coefficient are retrieved after the process of minimization and linearly interpolation. Creating a look-up table, the aerosol extinction is determined at Shanghai Baoshan monitoring site using MAX-DOAS. Compared with lidar, it shows a reasonable agreement. It's turned out that the look-up table can be used to detect the properties of aerosol.

Key words atmospheric optics; look-up table; aerosol; O_3

OCIS codes 010.0280; 010.1030; 010.1120

1 引言

大气气溶胶是指大气与悬浮在其中的固体和液

体微粒共同组成的多相体系, 通常粒径大小在 $0.01 \sim 100 \mu\text{m}$ 之间, 能在大气中驻留几个小时至几天。大

收稿日期: 2013-01-06; 收到修改稿日期: 2013-02-06

基金项目: 国家自然科学基金(40905010, 41275038)和环保部公益性行业科研专项(201109007)资助课题。

作者简介: 吴丰成(1986—), 男, 博士研究生, 主要从事被动差分光学吸收光谱技术方面的研究。

E-mail: fcwu@aiofm.ac.cn

导师简介: 谢品华(1968—), 女, 研究员, 博士生导师, 主要从事环境光谱探测技术等方面的研究。

E-mail: phxie@aiofm.ac.cn(通信联系人)

气溶胶在大气物理和大气化学中发挥着重要的作用,尤其是气溶胶粒子可以通过直接、间接和半直接效应等各种辐射强迫机制影响地气系统的辐射收支^[1],影响全球气候^[2]。因此,大气气溶胶一直是国际学术界的研究热点之一。大气气溶胶对地球的辐射收支和大气物理化学的影响是复杂的^[3-5],依赖于气溶胶组成、尺寸分布及气溶胶粒子光学属性。由于气溶胶影响的强度和复杂性,对气溶胶属性的了解显得尤为重要。

近些年发展起来的多轴差分吸收光谱(MAX-DOAS)技术^[6],除了可以探测痕量气体的垂直柱浓度外^[7,8],还可以反演痕量气体的垂直廓线^[9,10]。但利用 MAX-DOAS 技术解析痕量气体垂直廓线的前提是要准确获取测量条件下的气溶胶状况,尤其是要知道气溶胶的光学厚度、消光系数等。因此,气溶胶消光的准确掌握是利用 MAX-DOAS 技术反演痕量气体廓线的前提,在痕量气体廓线的正确反演中起着至关重要的作用。

由于上述气溶胶的重要作用,因此在大气遥感探测中必须正确全面了解气溶胶的光学属性。遥感方法是目前较好地探索大气气溶胶光学属性的一种技术手段,尤其是太阳光度计和雷达测量。太阳光度计通过分析测量太阳的直接辐射和散射后的辐射来确定测量值。用太阳光度计测量可以得到高精度的整层气溶胶消光和散射相函数,进而可以得到单次散射反照率和折射率^[11,12]。但是其有两方面缺点:1)其仅仅能得到整层的气溶胶消光,气溶胶的廓线却无法得到;2)测量值是通过绝对的太阳辐射得到的,因此需要仪器定标和高稳定度。雷达采用人工光源,利用接收装置接收后向散射光来获取气溶胶的极化系数和气溶胶的消光系数^[13],能较好地获取气溶胶消光的空间分布,也可以在晚上进行测量,但是在后向散射消光比和定标上存在的问题。太阳光度计和雷达在探测气溶胶的光学属性上都有各自的优点和劣势,将两者结合将能全面地探测气溶胶的光学属性,但其成本较高、操作复杂,较难实现。

2004年,Wagner等^[14]提出利用氧的二聚体(O_4)信息,结合 MAX-DOAS 技术及大气辐射传输模型(RTM)来推断气溶胶廓线的方法。 O_4 浓度与 O_2 浓度的平方成比例,大气中 O_4 和 O_2 在水平方向上都是均匀分布的,其浓度垂直廓线基本稳定不变, O_4 的这种特性可用来推断大气光程的分布。因为气溶胶的光学厚度及廓线显著地改变着光程的分布,所以通过 O_4 斜柱浓度的实时测量可获取大气

光程的变化,再结合大气辐射传输模型能够反演出气溶胶的信息。此种方法提出后,国内外很多研究小组利用 MAX-DOAS 技术的观测提出了不同反演气溶胶廓线的算法,但普遍采用最优估算方法^[15]来反演气溶胶及痕量气体的垂直廓线^[16-18]。国内司福祺等^[19]在2009年提出利用迭代计算的方法反演气溶胶光学厚度,但未能得到气溶胶的消光廓线。本文提出了一种利用简单参数化的查找表法来反演气溶胶消光系数的方法,并以上海世博会期间宝山监测点的 MAX-DOAS 数据为例,得到了气溶胶的消光系数、总光学厚度及混合层高度,并与监测站点内的雷达数据做比较,发现两者有较好的一致性。

2 方法及原理

2.1 MAX-DOAS 观测

MAX-DOAS 仪器通过望远镜的转动能够连续观测一个测量循环(从水平面到天顶方向上的连续不同角度测量)上的太阳散射光,每个观测仰角上的入射太阳光 I_0 经过大气消光后,被 MAX-DOAS 系统接收为 I , I 和 I_0 满足 Lambert-Beer 定律,如(1)式所示:

$$I = I_0 \exp(-\sigma c L). \quad (1)$$

式中 σ 为气体的吸收截面, c 为气体的浓度, L 为路径长度。采用差分吸收光谱(DOAS)方法,对(1)式进行最小二乘拟合即可反演出污染气体的浓度 c 。由于在 MAX-DOAS 测量过程中,气体的吸收路径未知,所以通过(1)式可以反演得到污染气体的斜柱浓度(SCD, D_{sc})。SCD 定义为气体浓度沿路径的积分,即

$$D_{sc} = \int c(l) dl = \frac{1}{\sigma} \left(\frac{I_0}{I} \right). \quad (2)$$

此外,由于在采用 DOAS 方法反演气体斜柱浓度过程中,需要选定一条参考谱,即太阳 Fraunhofer 参考谱,所以由(2)式解析获得的斜柱浓度实际上是测量角度的浓度与参考谱浓度之差,即所谓的差分斜柱浓度(DSCD, D_{dsc})。一般情况下,采用两种方式选择太阳 Fraunhofer 参考谱,即一条固定的测量谱和每个测量循环周期内天顶(90°)方向上的测量谱。研究中采用每个测量循环内天顶方向上的测量谱为 Fraunhofer 参考谱,因此每个 DSCD 即为当个循环内的非 90° 方向的斜柱浓度与天顶方向上的浓度差值。采用的测量角度为 $2^\circ, 4^\circ, 6^\circ, 10^\circ, 12^\circ, 15^\circ, 20^\circ, 30^\circ, 45^\circ, 90^\circ$,共10个测量角度。

在获得每个仰角上的 DSCD 后,结合大气质量

因子(AMF, F_{AM}),通过(3)式可以获得痕量气体的垂直柱浓度(VCD, D_{VC})。

$$D_{VC} = \frac{D_{SC}}{F_{AM}} = \frac{D_{DSC}}{F_{DAM}}, \quad (3)$$

式中的 D_{DSC} 为一个循环内非 90° 方向上的 D_{SC} 与 90° 方向上 D_{SC} 的差值 ($D_{DSC} = D_{SC, \alpha \neq 90} - D_{SC, \alpha = 90}$), 相应的 F_{DAM} 即为非 90° 方向上的 F_{AM} 与 90° 方向上的 F_{AM} 之差 ($F_{DAM} = F_{AM, \alpha \neq 90} - F_{AM, \alpha = 90}$)。由于目标气体为 O_4 , 大气中 O_2 的廓线已知 (仅仅会随温度、压强有细微变化), 所以 O_4 的 D_{VC} 可以通过高度积分获取。与二氧化氮 (NO_2), 甲醛 ($HCHO$) 等气体不

同, O_4 气体可以通过测量得到 D_{DSC} , 进而可以得到 O_4 的差分大气质量因子 ($DAMF$), 即

$$F_{DAM, O_4, meas} = \frac{D_{DSC, O_4, meas}}{D_{VC, O_4}}. \quad (4)$$

2.2 查找表的建立

利用 O_4 信息反演气溶胶消光的核心是通过建立查找表, 输入不同状况下的气溶胶廓线, 采用大气辐射传输模型循环迭代计算不同状况下的 O_4 的 $F_{DAM, O_4, sim}$, 比较 $F_{DAM, O_4, meas}$ 和 $F_{DAM, O_4, sim}$, 并通过最小化及线性插值过程来推断气溶胶消光, 如图 1 所示。

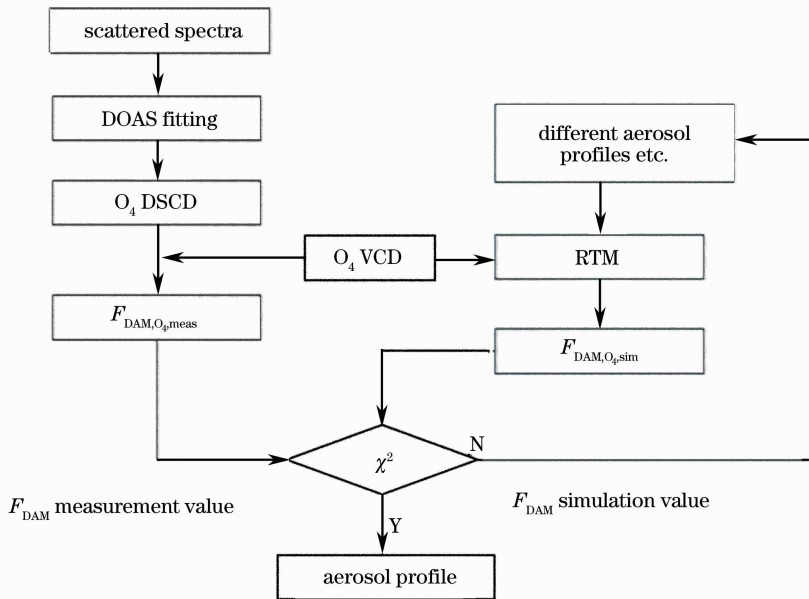


图 1 利用 O_4 确定气溶胶参数流程图

Fig. 1 Flow diagram of aerosol parameters confirmed using O_4

采用的大气辐射传输模型是基于蒙特卡罗方法的 McArtim^[20] 模型。在这个模型中, 光子在探测器的任意光线方向出现, 沿着后向方向到达大气层顶或被吸收。采用 McArtim 模型时, 需要很多输入参数, 如太阳天顶角 (SZA)、相对方位角 (SRAA)、温度、压力、痕量气体廓线和每一层的气溶胶光学参数等。在模型计算中, 温度、压力采用美国标准大气, 由于计算的 O_4 气体来源于稳定的 O_2 廓线, 故采用美国标准大气廓线。SZA、SRAA 针对不同的测量时间, 采用不同的值, 是已知量。在用 McArtim 计算 $F_{DAM, O_4, sim}$ 时最主要的影响来源于气溶胶的光学属性和气溶胶的高度廓线。

在气溶胶光学属性输入参数中, 主要包括相函数、单次散射反照率 (SSA, A_{SS}) 和非对称因子 (g)。相函数一般采用 Henyey-Greenstein (HG) 函数。 A_{SS} 和 g 对 O_4 的 F_{AM} 模拟有一定的影响, 如图 2 所

示。在中等气溶胶状态下 (气溶胶光学厚度 t 为 0.6), 当 A_{SS} 变化 0.2 时, F_{AM} 变化约为 10%, 当 g 变化 0.2 时 F_{AM} 在低仰角变化较大, 尤其是当 g 从 0.7 增加至 0.9 时, F_{AM} 最大变化为 14%; 在高气溶胶含量 ($t=2$) 下, 当 A_{SS} 变化 0.2 时, F_{AM} 变化最大为 20%, g 在高气溶胶含量下, 在高仰角时随着 g 的增大而减小; 在低气溶胶含量 ($t=0.1$) 下 F_{AM} 值对 A_{SS} 和 g 的变化不敏感。考虑到上海地区在夏季的平均气溶胶光学厚度为 1.2^[21], 因此 A_{SS} 和 g 的选择对 F_{AM} 的模拟具有一定的影响, A_{SS} 和 g 的正确确定对 F_{AM} 值的模拟有较大帮助。在参数设置中, 选定上海地区夏季的典型值 $A_{SS}=0.95, g=0.68$ ^[21]。

除了以上的输入参数外, 还需设置地表反照率 ρ , 研究了在高低两种不同气溶胶情况下, 不同地表反照率下 O_4 的 AMF (如图 3 所示)。从图 3 中发现, 在高、低气溶胶下, O_4 的 F_{AM} 对地表反照率的依

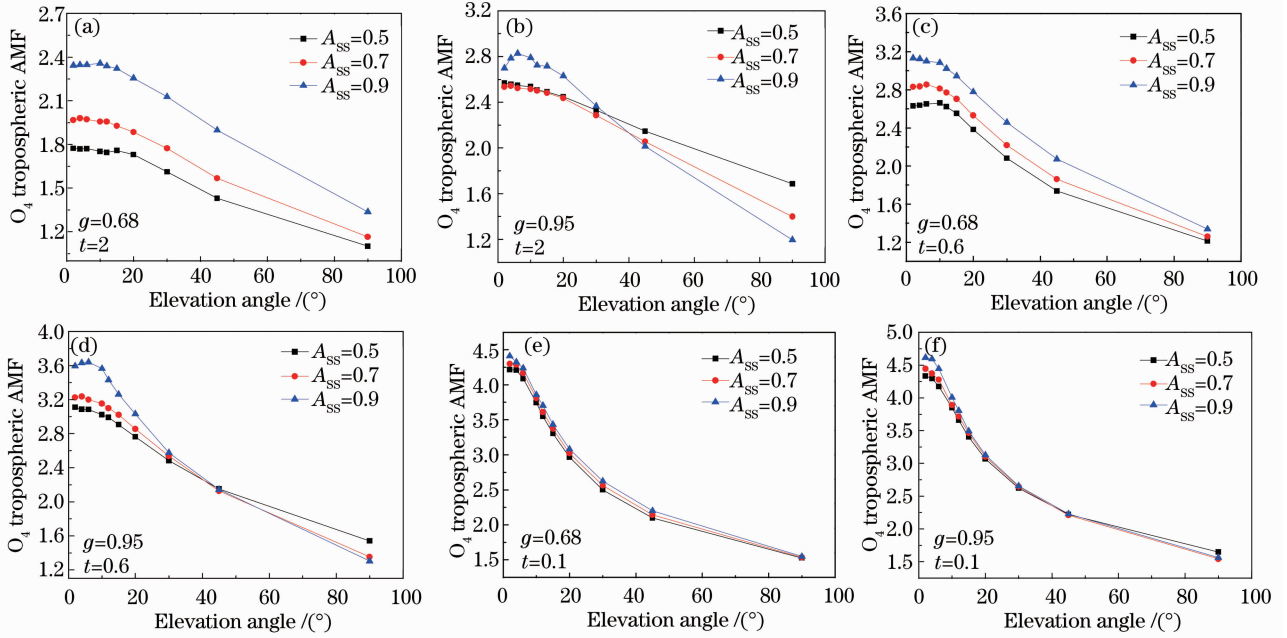


图 2 不同气溶胶含量下,不同 A_{ss} 和 g 的 F_{AM} 值模拟

Fig. 2 Simulated values for A_{ss} and g under different aerosol contents

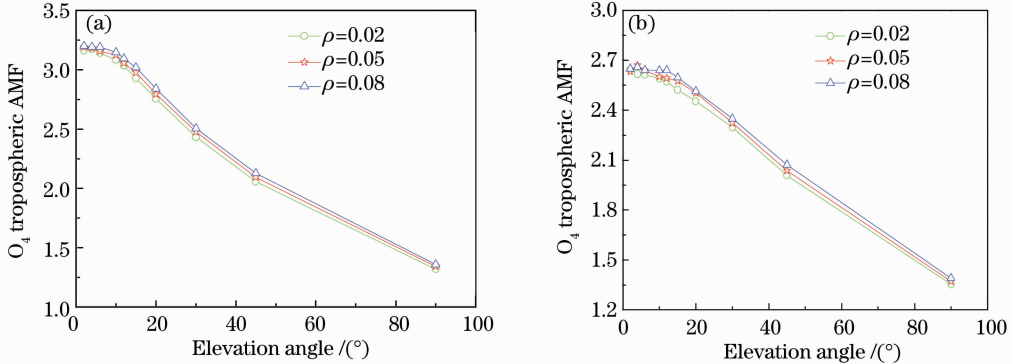


图 3 不同地表反照率情况下,(a)低气溶胶状况和(b)高气溶胶状况时 O_4 的 F_{AM} 模拟值

Fig. 3 Simulated values of O_4 under different ground albedo rates for (a) low aerosol condition and (b) high aerosol condition

赖程度较小,因此在查找表建立过程中,设置固定地表反照率为 0.05。

以上参数确定完成以后,最重要的是气溶胶廓线的参数设置。除了外部输送污染外,气溶胶排放的主要来源于局地人类活动,即在边界层内气溶胶的消光较大,Chiang 等^[22]认为在高度 1~5 km 之内气溶胶的消光占总消光的 40%~50%,Sasano^[23]采用扫描雷达反演气溶胶廓线,假设气溶胶消光在边界层内为一常数,在边界层上随指数衰减,并较好地反演了日本 Tsukuba 地区的对流层气溶胶廓线。基于此,本文将对流层分为边界层及自由对流层两层,在边界层内气溶胶的消光为均匀常数,在边界层以上气溶胶的消光随指数衰减,即所谓的“盒子”型加指数型廓线形状,即

$$\epsilon(z) = \begin{cases} w \frac{t}{h}, & z \leq h \\ A \exp(-z/\beta), & z > h \end{cases}, \quad (5)$$

式中 $\epsilon(z)$ 表示气溶胶的消光系数, w 为气溶胶的总光学厚度在边界层内的权重, h 为边界层高度, A 为指数函数的归一化常数, β 为自由对流层高度。因为大部分的气溶胶位于边界层内,所以气溶胶的消光对 β 不灵敏,假设 $\beta=5$ km。由于气溶胶的光学厚度是气溶胶的消光沿高度的积分,且对流层层高约为 15 km,所以有

$$t = \int_0^{15} \epsilon(z) dz. \quad (6)$$

联合(5)式和(6)式可得

$$t = \int_0^h \omega \frac{t}{h} dz + \int_h^{15} A \exp(-z/\beta) dz. \quad (7)$$

求解(7)式得到指数函数的归一化系数 A ，如下：

$$\omega t - A\beta \left[\exp\left(\frac{-15}{\beta}\right) - \exp\left(\frac{-h}{\beta}\right) \right] = t, \quad (8)$$

$$A = \frac{t(\omega - 1)}{\beta \left[\exp\left(\frac{-15}{\beta}\right) - \exp\left(\frac{-h}{\beta}\right) \right]}. \quad (9)$$

将解出的 A 值代入(5)式，可得

$$\epsilon(z) = \begin{cases} \omega \frac{t}{h}, & z \leq h \\ \frac{t(\omega - 1)}{\beta \left[\exp\left(\frac{-15}{\beta}\right) - \exp\left(\frac{-h}{\beta}\right) \right]} \exp(-z/\beta), & z > h \end{cases} \quad (10)$$

由(10)式可以得到在两层假设的情况下，气溶胶的消光只与 3 个参数 t, ω, h 有关。至此，建立查找表输入气溶胶廓线参数时只需设置不同的 t, ω, h 即可，建立的查找表的参数值如表 1 所示。按照表 1 的参数计算，每个仰角循环计算时间约 8 min。

表 1 建立查找表的输入参数

Table 1 Input parameters for look-up table

Parameters	Values
SZA / (°)	35.4, 22.99, 12.95, 12.97
SRAA / (°)	98.96, 113.34, 146.95, 213.11
Phase function	HG
g	0.68
A_{ss}	0.95
Ground albedo	0.05
Photon number	100000
t	0.1, 0.15, 0.2, 0.25, 0.3, 0.4, 0.5, 0.6, 0.7, 0.8, 0.9, 1.0, 1.5, 2.0, 2.5, 3, 3.5, 4, 4.5
ω	0.1, 0.2, 0.3, 0.4, 0.5, 0.6, 0.7, 0.9, 1.0
h / km	0.1, 0.3, 0.5, 0.7, 1.0, 1.2, 1.5, 2
β / km	5
Trace gas profile	O ₄ US standard
Wavelength / nm	360
Elevation angle / (°)	2, 4, 6, 10, 12, 15, 20, 30, 45
#	54720

查找表建立后，就可以获得不同仰角下模拟的 O₄ 的 F_{DAM} 值。根据图 1 的流程结合测量值，即可找到最小的 χ^2 。

3 结果及讨论

3.1 光谱分析

从图 1 可知，利用查表法反演气溶胶消光的一个重要过程是利用 DOAS 方法反演 MAX-DOAS

测量的不同仰角的太阳散射光谱，得到不同仰角下 O₄ 气体的 $D_{DSC}^{[24,25]}$ 。根据 2.1 节所述的 MAX-DOAS 观测原理，在用 MAX-DOAS 方法拟合 O₄ 过程中，拟合波段为 351~389 nm，在此波段内 O₄ 具有两个强吸收峰，选取 90° 方向测量谱为参考谱。拟合过程中包含的气体种类有 O₄ (Greenblatt, 1990, 298K)^[26]，NO₂ (K. Bogumil et al. 2000, 293K)^[27]，O₃ (K. Bogumil et al. 2000, 293K)^[27] 和 Ring 结构。其中 Ring 结构是采用 DOASIS 软件^[28]，通过 Fraunhofer 参考谱计算得到。2010 年 7 月 22 日 11:01 上海宝山监测点 20° 方向的一条测量谱的反演过程如图 4 所示。

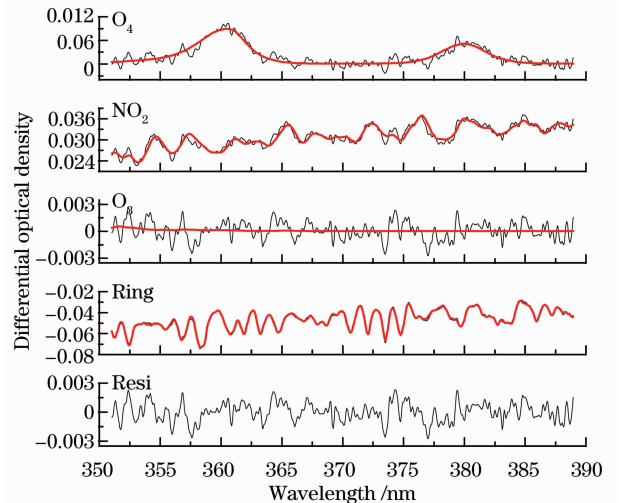


图 4 O₄ 的拟合过程示例

Fig. 4 Example fitting process for O₄

从图 4 的反演过程中得到 O₄ 的 DSCD 为 $(1.79 \pm 0.07) \times 10^{43}$ molecule²/cm⁵，拟合残差为 1.46×10^3 ，主要来源于未知结构和系统噪声。

按照上述处理方法反演了 7 月 22 日测量的 MAX-DOAS 数据，得到 O₄ 的 D_{DSC} 如图 5 所示。由美国标准大气可知，O₂ 的廓线已知，把 O₂ 的浓度平

方再按照高度积分后即可得到 O_4 的垂直柱浓度 $D_{VC} = 1.31 \times 10^{43}$ molecule²/cm⁵。在已知 O_4 的 D_{VC} 后即可由(4)式计算得到 O_4 测量的 F_{DAM} 。

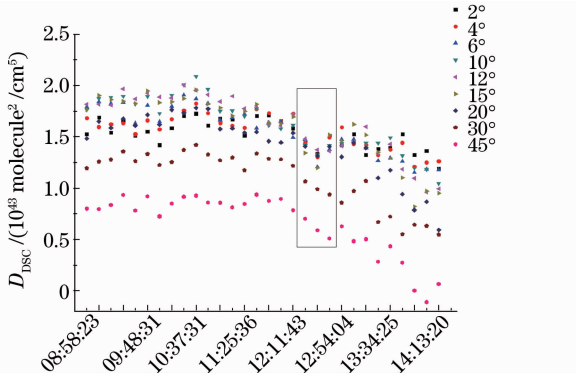


图 5 O_4 的差分斜柱浓度

Fig. 5 Differential slant column density for O_4

3.2 气溶胶消光的反演

将 2.2 节中查找表的参数输入到 McArtim 模型中,通过模型模拟就可获得在不同气溶胶廓线情形下的 9 个不同仰角(90°仰角作为参考谱)的 F_{DAM} 模拟值。结合 3.1 节测量得到的 F_{DAM} 测量值,理论上通过不断的循环迭代计算就可找到使得 $F_{DAM,O_4,meas}$ 和 $F_{DAM,O_4,sim}$ 最佳匹配的一条气溶胶廓线。为了减少计算时间和优化 McArtim 的输入参数,使用了如下最小化的过程:

$$\chi^2(t, \omega, h) = \sum_{\alpha=2^\circ}^{\alpha=45^\circ} \left[\frac{\alpha_m - \alpha_s(t, \omega, h)}{\sigma(\alpha_m)} \right]^2, \quad (11)$$

式中 α_m 表示测量值, α_s 表示模拟值, $\sigma(\alpha_m)$ 表示测量值的标准偏差。一般情况下,一个测量周期内 9 个角度 $\frac{\alpha_m - \alpha_s(t, \omega, h)}{\sigma(\alpha_m)}$ 的平方和最小,即可认为选定的 t, ω, h 较为合理。但是通过有限的参数设置并不能完全找到合理的 t, ω, h , 在计算过程中采取了将模拟值 $\alpha_s(t, \omega, h)$ 进行三维线性插值得到一系列 $\alpha_s(t_1, \omega_1, h_1), \alpha_s(t_2, \omega_2, h_2), \dots$, 将这些值代入(11)式进行最小化过程,即可获得最优化的 t, ω, h , 进而得到气溶胶消光。为了减小大气波动及单次测量的测量噪声,对每个小时内的测量值进行了平均。

7 月 22 日 9:00~13:00 模型模拟和 MAX-DOAS 测量的不同仰角下的 O_4 的 F_{DAM} 值如图 6 所示。从图 6 中发现在高气溶胶含量下[图 6(d)],各个角度之间的 F_{DAM} 相差较小,这是由于在高的气溶胶散射弥补了不同仰角下光子平均自由程的差别。图 6(d)中 F_{DAM} 最大值与最小值相差为 0.64,而当气溶胶光学厚度为 0.48[图 6(b)]时,各仰角 F_{DAM} 的最大值与最小值相差为 0.81。另外 F_{DAM} 的最大值出现在仰角为 10°~12°之间,这是因为在仰角小于 10°时最后一次散射高度位于气溶胶层内,使得光子平均自由程变短。

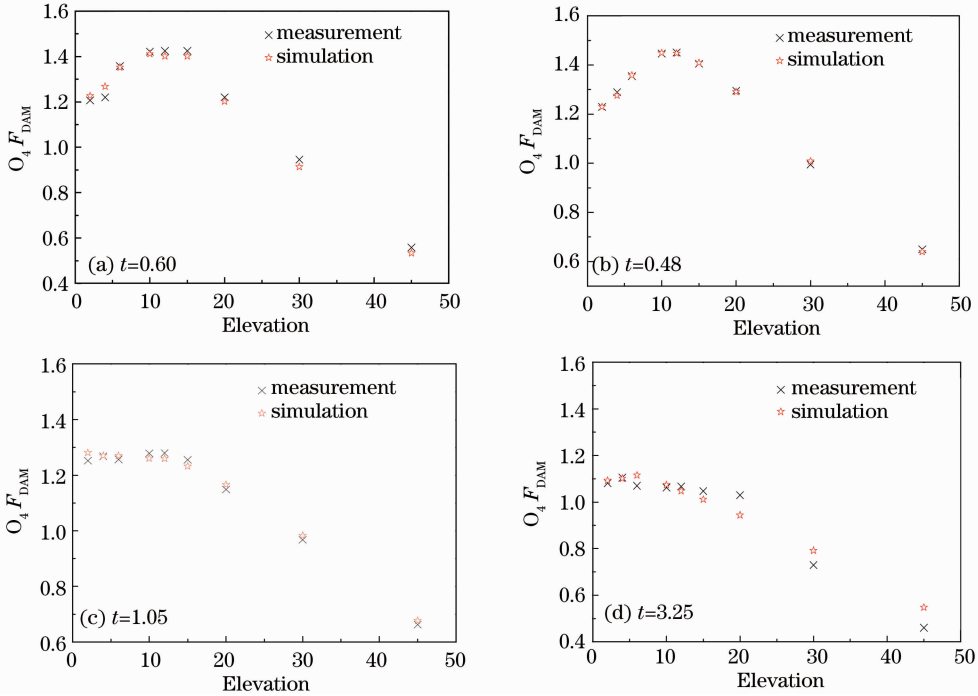


图 6 不同时间段内模拟和测量的 O_4 的 F_{DAM} 值。(a) 9:00~10:00; (b) 10:00~11:00; (c) 11:00~12:00; (d) 12:00~13:00

Fig. 6 Simulated and measured values of F_{DAM} for O_4 at different time buckets. (a) 9:00~10:00; (b) 10:00~11:00; (c) 11:00~12:00; (d) 12:00~13:00

根据(11)式,对 F_{DAM} 测量值和模拟值进行最小化过程,获得气溶胶廓线中的参数 t, w, h , 由这 3 参数得出了以上 4 个时间段内的气溶胶廓线如图 7 所示。由图 7 发现,气溶胶的光学厚度在 12:00~13:00 具有较大值,从 O_4 的 D_{DSC} 分布图也可以看出(图 5 方框所示部分)在 12:00~13:00 期间 O_4 的 D_{DSC} 值

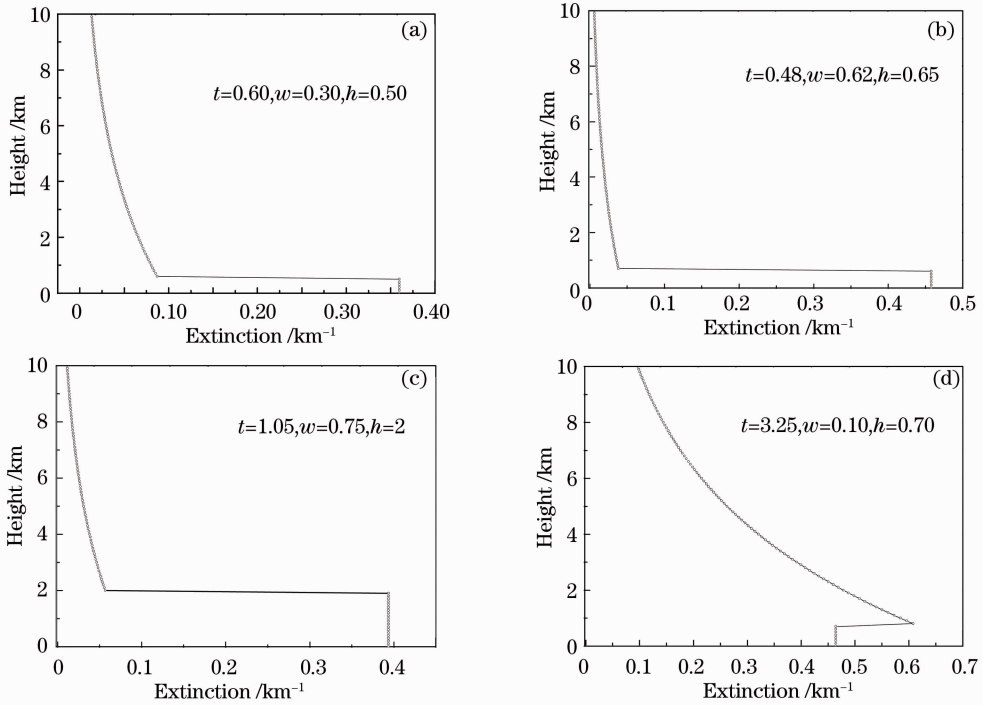


图 7 不同时间段内反演得到的气溶胶廓线。(a) 9:00~10:00; (b) 10:00~11:00; (c) 11:00~12:00; (d) 12:00~13:00

Fig. 7 Aerosol profiles by inverting at different time buckets. (a) 9:00~10:00; (b) 10:00~11:00; (c) 11:00~12:00; (d) 12:00~13:00

从图 7(d)中发现,气溶胶的消光并不是在地面最高而是在 700 m 以上较高,这明显是有一抬升层。抬升层的出现,主要可能与外来输送污染、不同层的化学反应、局地污染等有关。此次观测中并未发现明显的外来输送,结合前面的分析认为这是由局地污染造成。在局地污染的抬升引起抬升层出现的情况下,输入气溶胶廓线中假设底层为“盒子”型,并不是理想的假设,底层的气溶胶消光不应该是均匀的,应具有一定的梯度变化(如线性)。因此,在 12:00~13:00 采用底层“盒子”型假设引起的误差较大,图 6(d)的结果也验证了这一推断,在图 6(d)中 O_4 的 F_{DMA} 模拟值与测量值相差较大,最大相差为 7%。关于抬升层出现的情况,在下一步的研究工作中将进行改进。

3.3 与雷达监测数据对比

在监测期间,上海宝山监测点除了有一台 MAX-DOAS 外,还部署了一台激光雷达。激光雷

有明显的谷值,反映了气溶胶在此时间段内具有较强的消光作用。在 9:00~11:00 两个时间段内光学厚度较小,随后逐渐增大,由此发现是一个明显的局地污染过程。边界层高度在中午 11:00~12:00 点达到最大 2 km,符合了中午时间段对流强烈边界层高度较高的实际推断。

达的中心波长为 532 nm,通过激光雷达的测量可以获取测量点的气溶胶消光系数。将利用查表法计算得到的气溶胶消光系数与雷达测量得到的消光系数进行了比较。

由查表法得出气溶胶消光后,由(5)式即可得出边界层内的气溶胶消光系数为 $\epsilon_0 = w \frac{t}{h}$ 。由于雷达测量波长在 532 nm 处,而查表法测量的波长在 360 nm 处,所以将雷达的结果进行外推转换^[29,30]后,得到雷达 360 nm 处的消光系数,两者的对比结果如表 2 所示。

按照上述分析,由表 2 可知,12:00~13:00 查表法与雷达测量的结果相差较大,主要与廓线形状的假设有关。09:00~12:00 时间段内两者的观测结果具有较好的一致性,绝对值的差别主要由湿度、 O_4 浓度的反演、单次散射反照率、非对称因子以及雷达的 Angstrom 指数选择等造成。

表 2 360 nm 处消光系数对比

Table 2 Comparison of extinction coefficients at 360 nm

	09:00~10:00	10:00~11:00	11:00~12:00	12:00~13:00
Look-up table / km^{-1}	0.36	0.45	0.39	0.46
Lidar / km^{-1}	0.30	0.41	0.35	0.34

4 结 论

提出一种利用查找表反演气溶胶消光的方法,并以上海宝山监测点 MAX-DOAS 测量为例,在 9 个不同的仰角下建立查找表反演气溶胶消光,得到了气溶胶的光学厚度、边界层高度及地面消光系数,并与雷达监测数据做对比,两者具有较好的一致性。结果表明,查表法是一种简单、能较好地反映气溶胶状况的方法,相比于复杂的最优估算算法,查表法只需通过设定几个参数就能反演出气溶胶的消光廓线,减小了不确定性。但是在查表法的应用中,面对复杂的大气污染状况,还需对气溶胶的廓线形状进行更深层次的研究,比如抬升层的出现、面对出现的不同原因、对气溶胶的廓线形状的进一步优化。在下一步的研究工作中,将考虑如何进行气溶胶廓线形状的优化及如何提高计算速率。

参 考 文 献

- 1 Ke Zongjian. Studies on the Aerosol Optical Characteristics Over Eastern China [D]. Beijing: Chinese Academy of Meteorological Sciences, 2004
- 柯宗建. 我国东部地区气溶胶光学特性观测研究[D]. 北京: 中国气象科学研究院, 2004
- 2 Yang Zhifeng. The Aerosol Optical Characteristics in Representative over China [D]. Beijing: Chinese Academy of Meteorological Sciences, 2008
- 杨志峰. 中国特征区域大气气溶胶光学特性研究[D]. 北京: 中国气象科学研究院, 2008
- 3 J. T. Houghton, Y. Ding, D. J. Griggs *et al.*. Climate change 2001: the scientific basis [C]. Contribution of Working Group I to the Third Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC), 2001
- 4 Y. J. Kaufman, D. Tanré, O. Boucher. A satellite view of aerosols in the climate system [J]. *Nature*, 2002, **419**(6903): 215~223
- 5 Y. J. Kaufman, D. Tanré, J. F. Léon *et al.*. Retrievals of profiles of fine and coarse aerosols using lidar and radiometric space measurements [J]. *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, 2003, **41**(8): 1743~1754
- 6 G. Hönninger, C. von Friedeburg, U. Platt. Multi axis differential optical absorption spectroscopy (MAX-DOAS) [J]. *Atmos. Chem. Phys.*, 2004, **4**(1): 231~254
- 7 T. Vlemmix, A. J. M. Piters, P. Stammes *et al.*. Retrieval of tropospheric NO₂ using the MAX-DOAS method combined with relative intensity measurements for aerosol correction [J]. *Atmos. Meas. Techn.*, 2010, **3**(5): 2317~2366
- 8 H. Irie, H. Takashima, Y. Kanaya *et al.*. Eight-component retrievals from ground-based MAX-DOAS observations [J]. *Atmos. Meas. Techn.*, 2011, **4**(1): 639~690

- 9 A. Heckel, A. Richter, T. Tarsu *et al.*. MAX-DOAS measurements of formaldehyde in the Po-Valley [J]. *Atmos. Chem. Phys.*, 2005, **5**(20): 909~918
- 10 U. Friß, H. Sihler, R. Sander *et al.*. The vertical distribution of BrO and aerosols in the Arctic: measurements by active and passive differential optical absorption spectroscopy [J]. *J. Geophysical Research: Atmospheres*, 2011, **116**(D14): D00R04
- 11 C. Devaux, A. Vermeulen, J. L. Deuzé *et al.*. Retrieval of aerosol single-scattering albedo from ground-based measurements: application to observational data [J]. *J. Geophysical Research: Atmospheres*, 1998, **103**(D8): 8753~8761
- 12 P. Romanov, N. T. O'Neill, A. Royer *et al.*. Simultaneous retrieval of aerosol refractive index and particle size distribution from ground based measurements of direct and scattered radiation [J]. *Appl. Opt.*, 1999, **38**(36): 7305~7320
- 13 K. J. Voss, E. J. Welton, P. K. Quinn *et al.*. Lidar measurements during Aerosols99 [J]. *J. Geophysical Research*, 2001, **106**(D18): 20821~20831
- 14 T. Wagner, B. Dix, C. V. Friedeburg *et al.*. MAX-DOAS O₃ measurements: a new technique to derive information on atmospheric aerosols-principles and information content [J]. *J. Geophysical Research: Atmospheres*, 2004, **109**(D22): D22205
- 15 C. D. Rodgers. Inverse Methods for Atmospheric Sounding: Theory and Practice [M]. Singapore: World Scientific Publishing, 2000
- 16 H. Irie, Y. Kanaya, H. Akimoto *et al.*. First retrieval of tropospheric aerosol profiles using MAX-DOAS and comparison with lidar and sky radiometer measurements [J]. *Atmos. Chem. Phys.*, 2008, **8**(2): 341~350
- 17 H. Irie, Y. Kanaya, H. Akimoto *et al.*. Dual-wavelength aerosol vertical profile measurements by MAX-DOAS at Tsukuba, Japan [J]. *Atmos. Chem. Phys.*, 2009, **9**(8): 2741~2749
- 18 U. Friß, P. S. Monks, J. J. Remedios *et al.*. MAX-DOAS O₃ measurements: a new technique to derive information on atmospheric aerosols: 2. modeling studies [J]. *J. Geophysical Research: Atmospheres*, 2006, **111**(D14): D14203
- 19 Si Fuqi, Xie Pinhua, Dou Ke *et al.*. Determination of the atmospheric aerosol optical density by multi axis differential optical absorption spectroscopy [J]. *Acta Physica Sinica*, 2010, **59**(4): 2867~2872
- 司福祺, 谢品华, 窦科等. 被动多轴差分吸收光谱大气气溶胶光学厚度监测方法研究 [J]. *物理学报*, 2010, **59**(4): 2867~2872
- 20 T. Deutschmann. Atmospheric Radiative Transfer Modelling with Monte Carlo Methods [D]. Germany: Universität Heidelberg, 2009
- 21 D. Chen, B. Zhou, S. Beirle *et al.*. Tropospheric NO₂ column densities deduced from zenith-sky DOAS measurements in Shanghai, China, and their application to satellite validation [J]. *Atmos. Chem. Phys.*, 2009, **9**(11): 3641~3662
- 22 Chihwei Chiang, Weinai Chen, Wen'an Liang *et al.*. Optical properties of tropospheric aerosols based on measurements of lidar, sun-photometer, and visibility at Chung-Li (25°N, 121°E) [J]. *Atmospheric Environment*, 2007, **41**(19): 4128~4137

- 23 Yasuhiro Sasano. Tropospheric aerosol extinction coefficient profiles derived from scanning lidar measurements over Tsukuba, Japan, from 1990 to 1993 [J]. *Appl. Opt.*, 1996, **20**(8): 4941~4952
- 24 Li Ang, Xie Pinhua, Liu Wenqing *et al.*. Monitoring of total emission volume from pollution sources based on passive differential optical absorption spectroscopy [J]. *Acta Optica Sinica*, 2007, **27**(9): 1537~1542
李昂, 谢品华, 刘文清等. 被动差分光学吸收光谱法监测污染源排放总量研究[J]. *光学学报*, 2007, **27**(9): 1537~1542
- 25 Wu Fengcheng, Xie Pinhua, Li Ang *et al.*. Correction of the impact of multi scattering on NO₂ emission flux during the pollutants source measurement by mobile differential optical absorption spectroscopy [J]. *Acta Optica Sinica*, 2011, **31**(11): 1101003
吴丰成, 谢品华, 李昂等. 利用 O₄ 测量去除车载差分吸收光谱测量污染源 NO₂ 排放通量计算中多次散射的影响[J]. *光学学报*, 2011, **31**(11): 1101003
- 26 G. D. Greenblatt, J. J. Orlando, J. B. Burkholder *et al.*. Absorption measurements of oxygen between 330 and 1140 nm [J]. *J. Geophys. Res.*, 1990, **95**(D11): 1857~18582
- 27 K. Bogunil, J. Orphal, T. Homann *et al.*. Measurements of molecular absorption spectra with the SCIAMACHY pre-flight model: instrument characterization and reference data for atmospheric remote-sensing in the 230~2380 nm region [J]. *J. Photochemistry and Photobiology A: Chemistry*, 2003, **157**(2): 167~184
- 28 S. Kraus. DOASIS, A Framework Design for DOAS [D]. Germany: University of Mannheim, 2006
- 29 Tao Zongming, Zhang Yinchao, Zhang Gaixia *et al.*. Studies on extinction efficiency factor properties of aerosol particle and the fit of size distribution [J]. *Chinese J. Quantum Electronics*, 2004, **21**(1): 103~109
陶宗明, 张寅超, 张改霞等. 气溶胶粒子消光效率因子的特性研究及尺度谱的拟合[J]. *量子电子学报*, 2004, **21**(1): 103~109
- 30 Wang Yuesi, Xin Jinyuan, Li Zhanqing *et al.*. AOD and Angstrom parameters of aerosols observed by the Chinese Sun Hazemeter Network from August to december 2004 [J]. *Environmental Science*, 2006, **27**(9): 1703~1711
王跃思, 辛金元, 李占清等. 中国地区大气气溶胶光学厚度与 Angstrom 参数联网观测(2004-08~2004-12) [J]. *环境科学*, 2006, **27**(9): 1703~1711

栏目编辑: 王晓球