

成都市大气消光系数时间序列随机特性分析

孙欢欢 倪长健 崔 蕾 王 超

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

摘要 对不同湿度条件下消光系数序列演变特性的正确认知是构建大气颗粒物湿度订正模型的前提和基础。利用成都市人民南路 4 段环境监测站所提供的 2013 年 6 月到 2014 年 5 月逐时(降雨天除外)细颗粒物(PM_{2.5})浓度监测数据以及相应的地面能见度、相对湿度观测数据,反演得该区域相应时段单位质量消光系数时间序列。简要论述了消光系数吸湿过程中的复杂演变性及已有湿度订正模型的非普适性;基于相空间重构理论确定该时间序列的最佳延迟时间 f 和最佳嵌入维数 m ,据此计算出饱和关联维数、最大 Lyapunov 指数以及 Kolmogorov 熵特征量,其结果显示该序列具有低维混沌的特征;应用 Cao 方法排除其为非线性序列的可能性;结合替代数据法论证得成都市单位质量消光系数时间序列为随机序列。该研究结论不仅明晰了单位质量消光系数序列的特性,还为大气颗粒物湿度订正模型的改进奠定理论基础。

关键词 大气光学; 随机特性; 消光系数; 相空间重构; 替代数据法

中图分类号 P413;N93;X122 **文献标识码** A

doi: 10.3788/AOS201636.0801001

Stochastic Characteristic Analysis of Time Series of Extinction Coefficient in Chengdu

Sun Huanhuan Ni Changjian Cui Lei Wang Chao

*Plateau Atmosphere and Environment Key Laboratory of Sichuan Province, College of Atmospheric Sciences,
Chengdu University of Information Technology, Chengdu, Sichuan 610225, China*

Abstract A correct understanding of the evolution characteristics of the extinction coefficient series under different humidity conditions is the premise and foundation to establish the correction model of atmospheric particulate matter humidity. Using the data of mass concentration of PM_{2.5} (excluding rainy days), together with the homologous surface visibility and relative humidity data from June 2013 to May 2014 at 4th Section, South Renmin Road of Chengdu, the corresponding unit mass extinction coefficient time series is retrieved. The complex evolution of the extinction coefficient during moisture absorption is briefly discussed, and the non-universality of the existing humidity correction model is exemplified. Based on the reconstruction of phase space theories, the optimal delay time f and the embedding dimension m are determined, and several characteristic quantities, including the saturation correlation dimension, the maximum Lyapunov index and the Komogorove entropy, are also calculated. The results show that this series has the characteristics of low dimensional chaos. The Cao method is applied to excluding the possibility that the unit mass extinction coefficient time series is nonlinear. By adopting the surrogate data method, the time series is finally proved to be stochastic. The results not only clarify the characteristics of the unit mass extinction coefficient series, but also establish the theoretical foundation for the improvement of the atmospheric particulate matter humidity.

Key words atmospheric optics; stochastic characteristic; extinction coefficient; reconstruction of phase space; surrogate data method

OCIS codes 010.0280; 010.1110; 010.1290; 010.1310

收稿日期: 2016-01-25; **收到修改稿日期:** 2016-04-09

基金项目: 四川省教育厅项目(2014Z155)、四川省教育厅重点项目(15ZA0179)

作者简介: 孙欢欢(1991—),男,硕士研究生,主要从事大气物理与大气环境方面的研究。E-mail: 283087789@qq.com

导师简介: 倪长健(1970—),男,教授,硕士生导师,主要从事大气物理与大气环境、污染气象方面的研究。

E-mail: 1424402139@qq.com

1 引 言

大气消光系数是用来衡量大气中气体分子和颗粒物吸收或散射太阳辐射常用的物理量,可导致能见度降低,包括气体分子的消光系数和颗粒物的消光系数^[1]。由于在近地层气体分子消光系数对大气消光系数的贡献较颗粒物的贡献可忽略不计,故大气消光系数可以作为地面空气中颗粒物污染程度的表征。在近年来雾霾日益严重的背景条件下,许多学者已围绕该参量进行了大量的研究^[2-4]。从美国的 IMPROVE 计划起,诸多学者就开始探讨消光系数随颗粒物质量浓度的变化特征^[5-6],研究一致表明两者之间呈现出线性关系,且灰霾天气时消光系数远大于非霾日。基于消光系数与颗粒物质量浓度之间的统计关系,还可对颗粒物质量浓度的垂直分布进行反演分析^[7-8]。另外,李学彬等^[9]基于 Mie 散射理论,分析颗粒物粒径大小对大气消光的影响,深化了对灰霾本质的认识。作为大气的重要组成部分,水汽自身以及颗粒物粒径通过吸湿增长,均能对大气消光系数产生影响^[10]。在吸湿增长阶段,粒子亲水性质的差异会导致不同粒径粒子在不同相对湿度条件下吸湿增长效率均不同,最终导致在较高相对湿度环境中颗粒物整体的消光系数存在较为复杂的变化^[11-14]。因此,在利用能见度或大气光学厚度反演地面颗粒物质量浓度时,必须考虑水汽的影响。目前的湿度订正模型均带有较大的人为任意性,缺失了在复杂动力学时间序列(消光系数)分析前须对其非线性演变性质的严格诊断,存在物理机制不明确的弱点,亟待改进。

消光系数序列特性的分析是湿度订正所必需的一项基础性工作,而目前对这一问题的研究鲜有报道。利用 2013 年 6 月到 2014 年 5 月成都市环境监测站所提供的逐时颗粒物浓度监测数据以及同期地面能见度、相对湿度观测数据,简要论述了颗粒物吸湿中消光系数的复杂演变特性,以及已有订正模型在研究区的非普适性;利用反演的消光系数数据,基于混沌相空间重构理论,Cao 方法及替代数据法着重探讨了该序列的随机性问题,为湿度订正模型的改进奠定了理论基础。

2 数据来源及处理

所用资料为成都市人民南路 4 段 2013 年 6 月到 2014 年 5 月逐时 PM_{2.5} 质量浓度、地面能见度监测资料以及同期温江站气象观测数据,针对数据资料进行质量控制后,获得可用样本合计 7333 个,该时段内的资料完整率为 98%。针对上述资料,利用 Koschmieder's 公式^[15]反演得近地面大气消光系数时间序列

$$k_{\text{ext}} = \frac{3.912}{V_{\text{H}}}, \quad (1)$$

式中 V_{H} 为地面能见度。

大气消光系数与颗粒物成分、质量浓度以及混合状态等因素密切相关,为消除颗粒物成分、质量浓度等因素对大气消光系数的影响,突出湿度变化在其中的关键作用,进一步计算单位质量大气消光系数:

$$E = \frac{k_{\text{ext}}}{C_{\text{PM}_{2.5}}}, \quad (2)$$

式中 k_{ext} 为 Koschmieder's 公式反演得到的大气消光系数, $C_{\text{PM}_{2.5}}$ 为大气细颗粒物质量浓度。假定研究年限期间,颗粒物粒子化学成分及谱分布恒定,则可认为 E 仅随相对湿度发生变化,可反映颗粒物粒子群整体的吸湿增长的平均效应。

3 消光系数变化复杂性及订正模型的非普适性

自然环境下,燃烧、气粒转化、碰并、光化学反应及多相反应等简单或复杂的物理化学过程均能产生大气颗粒物或细颗粒物的主要组成部分——二次颗粒物(SFPM)^[16-18],生命周期均较短,同时受限于大气氧化能力的影响,其性质和形态每时每刻均处于变化中,进而导致不同物化反应在不同环境条件(特别是湿度条件)影响下形成的颗粒物或 SFPM 的成分、混合比例及粒径大小各异^[18]。因此,大气颗粒物可被认为是粒径大小不一的多种有机或无机粒子的复杂共同体。

大多数对于颗粒物吸湿特性的研究集中在潮解点和吸湿增长两方面。潮解点是粒子吸湿的初始点,当环境湿度大于粒子潮解点时开始吸湿增长^[19-20],且粒子潮解点和颗粒物中粒子成分有关,部分粒子的潮解点

易受到温度的影响^[21]。颗粒物吸湿增长的本质为:当相对湿度达到潮解点后,水汽凝结作用及固液表面的化学反应和非均向传质过程使颗粒物中亲水性粒子粒径突然增长^[20]。粒子亲水性质的差异,导致不同粒径粒子在不同相对湿度条件下的吸湿增长效率不同^[19-20],其吸湿增长随湿度变化也不同^[22]。在吸湿增长阶段,不同粒子混合状态(粒径、种类及混合比例)的差别均能导致颗粒物整体的吸湿性偏离模型结果,相对湿度的高低亦不是粒子吸湿增长效率的唯一指标,如纳米级无机颗粒的粒径在一定湿度范围内随湿度增加呈负增长现象^[18],硫酸盐具有很强的吸湿能力,但对于不含硝酸盐的实际大气粉尘中,即使硫酸盐含量很高,也无法在相对湿度高达 90% 的情况下发生吸湿增长现象^[23]。Saxena 等^[24]证实了颗粒物中部分粒子(主要为有机成分)在特定情况下也会对其他成分的吸湿增长效率产生影响。

综上所述,颗粒物的吸湿效应中消光系数存在着复杂的演变过程,是水汽条件和颗粒物理化特征综合作用的结果,其过程具有高度的非线性复杂效应。在大气污染状态下,颗粒物的吸湿增长是一个典型的非平稳过程,大气消光系数随湿度的变化同样为非平稳变化过程,因此,大气消光系数序列具有较为复杂的形态。而混沌理论的发展,使人们意识到长期以来研究分析复杂序列的理论与方法存在巨大的缺陷,故而给出了新的解释和分析方法。目前,国内针对该问题的研究存在应用范围小(仅局限在我国的北方地区)的缺陷;且已知的湿度订正方法无一例外地忽略了大气消光系数序列的复杂性基本特征;缺失在复杂动力学时间序列(消光系数)分析前须对其非线性演变性质的严格诊断分析。其订正模型均建立于稳定性假定基础上,带有较大的人为任意性,有悖于吸湿增长过程的基本性质,这可能是订正模型不具有普适性的重要理论原因。

大气颗粒物污染源种类繁多,如英国环境署发现其国内大气污染源主要为道路源、二次气溶胶源、土壤源、海水泡沫源等^[25];北京等我国北方城市燃煤源、二次气溶胶源、扬尘源等污染较为显著^[26-27];对成都的研究则显示其污染源主要为建筑源、燃油源、道路源、二次颗粒物源等^[28]。大气消光系数与颗粒物污染性质息息相关,因此,适用于其他地方的湿度订正模型,可能不适用于成都地区,文中验证了常用的两种订正模型在成都地区的非普适性。两种订正方案订正模型分别为 $f(X_{RH}) = b_0 + b_1 \left(\frac{1 - X_{RH}}{100}\right)^{-1} + b_2 \left(\frac{1 - X_{RH}}{100}\right)^{-2}$ (方案 1) 和 $f(X_{RH}) = \left(1 - \frac{X_{RH}}{100}\right)^{-k}$ (方案 2),其中 X_{RH} 表示相对湿度。未经湿度订正时,湿消光系数与 PM2.5 质量浓度相关系数为 0.64,经由两种订正方案订正后所获取的干消光系数与 PM2.5 质量浓度的相关系数分别为 0.57 和 0.41。由此可知,现有的湿度订正方案并未在成都地区获取更好的订正效果,反而在一定程度上恶化了二者的关系。

针对以上两类吸湿性增长模型,结合成都市平均单位质量湿消光系数资料,不难得到该区域平均单位质量干消光系数随相对湿度的变化关系。如图 1(a)所示,方案 1 订正后的平均单位质量干消光系数随相对湿度表现为不规则波动;如图 1(b)所示,方案 2 订正后的平均单位质量干消光系数随相对湿度增大而呈现明显减小趋势。由此可知,现有湿度订正方案并未得到准确的消光系数随相对湿度的变化趋势。

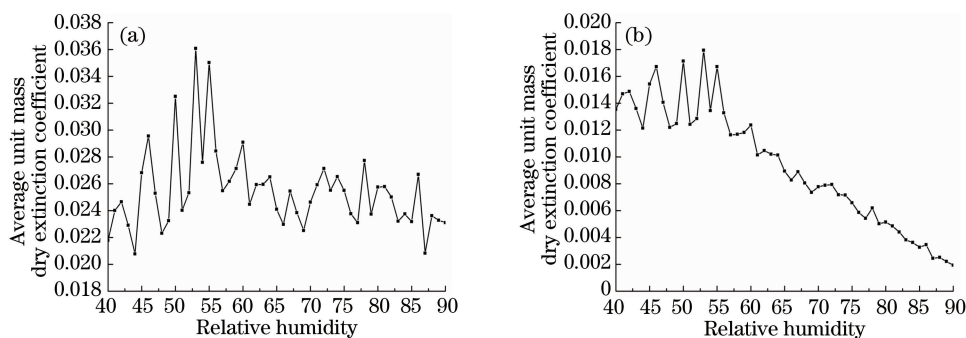


图 1 平均单位质量干消光系数随相对湿度变化。(a)方案 1;(b)方案 2

Fig. 1 Variation of dry extinction coefficient with relative humidity in average unit mass. (a) Plan 1; (b) plan 2

综上所述,大气颗粒物吸湿增长存在复杂的非线性演变过程,赋予了消光系数序列的复杂变化特征,同时适用于北方地区的湿度订正模型在成都地区未能起到相应的订正效果,即订正模型无法消除相对湿度的

影响,未达到湿度订正目的。为此引入混沌理论,并在湿度订正前研究分析了复杂动力学时间序列——消光系数序列基本性质,为改进湿度订正模型奠定理论基础。

4 消光系数时间序列随机特性分析

4.1 相空间重构

相空间重构理论核心思想为:给出时间序列 $x(t_1), x(t_2), \dots, x(t_i), \dots, x(t_n)$, 计算得适当的延迟时间 f 和嵌入维数 m , 即可得到重构的 m 维相空间即, 即

$$X(t_i) = \{x(t_i), x(t_i + f), x(t_i + 2f), \dots, x[t_i + (m - 1)f]\}, i = 1, 2, \dots, n - (m - 1)f, \quad (3)$$

式中 f 和 m 如何确定是相空间重构中至关重要的部分, 可以结合独立法和相关法来共同确定 f 和 m ^[29]。

4.1.1 独立法

在相空间重构中, 通常使用自相关函数法来求取 f 以及伪邻近点法求取 m ^[30-31]。通常取自相关系数 r_f 首次过零时的点为最佳延迟时间 f, r_f 可表示为

$$r_f = \frac{\sum_{t=f+1}^n [x(t) - \bar{x}] [x(t-f) - \bar{x}]}{\sum_{t=1}^n [x(t) - \bar{x}]^2}, \quad (4)$$

式中 \bar{x} 为数据 $x(t_i)$ 的均值, n 为数据 $x(t_i)$ 的长度。计算结果如图 2 所示。伪邻近点法则是计算不同 m 下伪最邻近点对数占总相点对数的比例, 取该比例出现衰减显著减弱时的维数为最佳嵌入维数 m , 其中, 伪最邻近点是重构空间中相点 \bar{x}_i^m 与最邻相点间距离小于等于 R_A (序列方差) 的点, 结果如表 1 所示。结合图 2、表 1 可得, 成都市单位质量消光系数序列重构空间最佳延迟时间为 7, 最佳嵌入维数为 12。

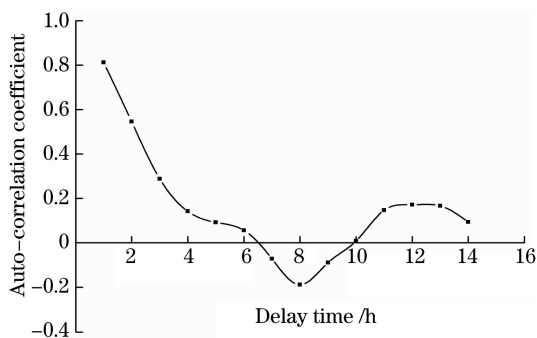


图 2 成都市单位质量消光系数时间序列自相关函数图

Fig. 2 Auto-correlation function of the time series of extinction coefficient of unit mass in Chengdu

表 1 伪最邻近点比率随嵌入维数 m 的变化

Table 1 Variation of the pseudo nearest neighbor point ratio with the embedding dimension

m	1	2	3	4	5	6	7
Ratio	0.8632	0.6145	0.3974	0.3016	0.2479	0.2116	0.1625
m	8	9	10	11	12	13	14
Ratio	0.1513	0.1386	0.1026	0.0857	0.0557	0.0523	0.0468

4.1.2 相关法

复自相关法在计算 f 和 m 中具有计算简单、对数据长度无强制要求、抗噪能力强等优点^[29]。能较好地克服消光系数时间序列数据短、噪声大的特点。定义 m 维的复自相关法计算公式为

$$C_{xx}^m(f) = \frac{1}{n} \sum_{i=0}^{n-1} \sum_{j=1}^{m-1} [x(t_i) - \bar{x}] [x(t_{i+jf}) - \bar{x}]. \quad (5)$$

取 $C_{xx}^m(f)$ 的第一个零点为最佳延迟时间 f 。具体计算步骤如下:

- 1) f 的选取范围: 考虑到单位质量消光系数的特点, f 不会太高, 初步确定 f 范围为 1~10;
- 2) 对于单位质量消光系数时间序列 $x(t_1), x(t_2), \dots, x(t_i), \dots, x(t_n)$, 给定嵌入维数 $m=5$, 计算此维数下的 $C_{xx}^m(f)$ 值, 取其第一个零点的时间作为此嵌入维下的延迟时间 f ;
- 3) 依次升高嵌入维数 (6, 7, ..., 14), 重复步骤 2);

4) 统计出不同嵌入维数 m 下的延迟时间 f , 结果如表 2 所示。

表 2 不同嵌入维数下的延迟时间

Table 2 Delay time under different embedding dimensions

m	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14
f	6.28	6.41	2.04	1.68	3.41	5.01	3.91	6.99	5.73	7.16

实际情况下, 延迟时间 f 必须为整数或非常接近整数, 结合表 2, 得出最佳结果为 $m = 10, f = 5$ 和 $m = 12, f = 7$ 。

通过比较两种方法确定出的延迟时间 f 和嵌入维数 m , 可认为成都市单位质量消光系数时间序列重构空间中的最佳参数为 $f = 7, m = 12$ 。

4.2 计算特征量

4.2.1 饱和关联维数

在传统相空间重构中, 若得到的嵌入维数 m 比较小, 则认为该系统具有混沌特征。通常使用 Grassberger-Procacia 提出的算法(后文简称 G-P 算法)求取关联积分 $c(r, m)$, 文中采用优化 G-P 算法来求取饱和关联维数^[32], 计算公式为

$$c(r, m) = \frac{2}{(N+1-w)(N-w)} \sum_{j=w}^N \sum_{i=1}^{N-j} H[r - \|X(t_i + f) - X(t_i)\|], \quad (6)$$

式中 $X(t_i)$ 为相点; N 为空间重建后的数据点数目, 即 $N = n - (m-1)f$; r 为 m 维嵌入空间中的球体的半径, 以 $X(t_i)$ 为中心, 作为标度尺度, 用于定量描述相点间的距离; H 为阶跃函数, 当 $X > 0$ 时, $H(x) = 1$, 当 $X \leq 0$ 时, $H(x) = 0$; $\|\cdot\|$ 为欧几里德范数; w 为 Theiler 窗口的大小, 物理意义与延迟时间相似, 用于排除相空间中时间间隔小于 w 的点对, 在这里取 $w = t^{[33]}$ 。

计算得成都市单位质量消光系数时间序列在 $f = 7, m = 12$ 情况下, 其关联维积分 $D_2 = 3.1666$, 表明该时间序列具有混沌特征。

4.2.2 最大 Lyapunov 指数 λ_1

最大 Lyapunov 指数 λ_1 是一种常用的、定量描述混沌系统对初始不确定性的放大率的特征量。系统存在混沌时, 肯定存在 $\lambda_1 > 0$, 通常用 Wolf 方法来计算 Lyapunov 指数, 其计算公式可表示为^[29]

$$\lambda_1 = \frac{1}{t_M - t_0} \sum_{i=1}^M \lg \frac{L'_i}{L_i}. \quad (7)$$

取 $Y(t_0)$ 为初始点, 假定 L_0 为其与最近邻点 $Y_0(t_0)$ 间的距离, 则 L_i 表示 $Y(t_i)$ 与其最近邻点 $Y_i(t_i)$ 间的距离, 追踪 $Y(t_0)$ 和 $Y_0(t_0)$ 的时间演化, 直到 t_1 时刻, 间距 L'_0 超过某规定值 $X > 0$, (则 L'_i 表示 L_i 大于 X 时的值), 即 $L'_0 = |Y(t_1) - Y_0(t_1)| > X$, 保留 $Y(t_1)$, 然后找到 $Y(t_1)$ 的最近邻点 $Y_1(t_1)$, 重复上述过程, 当 $Y(t)$ 到达时间序列的终点 N 时停止, 假定此时总迭代次数为 M 。在 $f = 7, m = 12$ 时, 计算得最大 Lyapunov 指数 $\lambda_1 = 1.1341$, 可见该时间序列具有混沌特征。

4.2.3 Kolmogorov 熵

Kolmogorov 熵是识别混沌时间序列的一个重要的特征量, 可以描述混沌系统的不确定程度。对于有序系统, $K = 0$; 对于随机系统, $K = \infty$; 混沌系统的 K 值介于两者之间, 且系统的不确定程度与 K 值呈正相关, 计算公式可表示为^[32]

$$K_2 = \frac{1}{f} \ln \frac{c_m(r)^2}{c_{m+1}(r)^2}, \quad (8)$$

式中 f 为延迟时间, $c_m(r)$ 为嵌入 m 维时的关联维积分; $c_{m+1}(r)$ 为 $m+1$ 维时的关联维积分。

通常视 K 随 $(m+1)$ 变化的稳定值作为 K 熵的估计值, K_2 与 $(m+1)$ 变化的关系如图 3 所示。如上所述, 该时间序列的最佳嵌入维数 m 为 12, 但随着 m 的增加, K 值持续上升, 无法判定 Kolmogorov 熵 K 值达到饱和的点, 表明该时间序列可能存在随机性。

4.3 Cao 方法

Cao 方法是一种能成熟应用于判定时间序列非线性混沌特性的方法^[34]。该方法基于相空间重构理论,

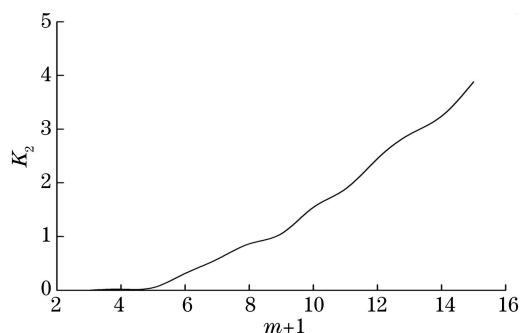


图 3 $(m+1)$ 与 K_2 关系图

Fig. 3 Relationship between $(m+1)$ and K_2

得到重构的 m 维相空间。定义

$$E(m) = E^*(m+1) / E^*(m), \tag{9}$$

其中 $E^*(m) = \frac{1}{N-mf} \sum_{i=1}^{N-mf} |x_{i+mf} - x_{j+mf}|$, j 为正整数且满足 $1 \leq j \leq N-mf$, $Y_j(m)$ 是 $Y_i(m)$ 在 m 维空间的最邻近点。

该方法通过 $E(m)$ 随 m 的变化来判定时间序列的性质,若 $E(m)$ 随嵌入维数 m 基本不变化,其值都接近或等于 1,则时间序列是随机的;反之,随 m 发生变化,则表明时间序列是非线性的。根据 Cao 方法排除了成都市单位质量消光系数时间序列为非线性序列的可能性,如图 4 所示。

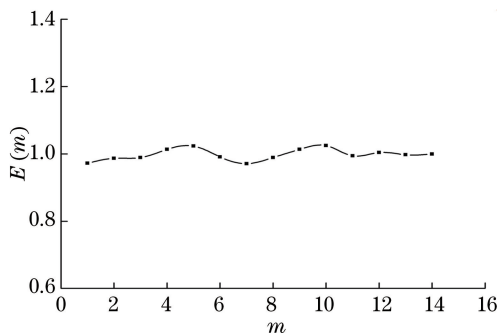


图 4 成都市单位质量消光系数的 Cao 方法计算结果

Fig. 4 Calculation results of Cao method for unit mass extinction coefficient in Chengdu

4.4 替代数据法

由于在确定时间序列非线性性质时,对于数据长度短、噪声水平高的序列直接采用计算所得的饱和关联维数、Lyapunov 指数等特征量做判据时的可靠性水平较差,甚至可能得出与 Kormognov 熵和 Cao 方法相矛盾的结论^[35],如本文的研究对象——消光系数,因此,需要更加严格的检验方法——替代数据法^[36],且已有实例分析验证了该方法的正确性和实用性^[36-37]。该方法由零假设、替代数据生成算法和检验统计量三个部分组成。

4.4.1 零假设

Theiler 等^[37]提出了三种零假设,替代数据则由相应的零假设得到,其中零假设中的相位随机化方法是目前应用最广泛的一种方法。其实现步骤为:在原始序列 $\{x_i\}_{i=0}^{N-1}$ 的离散傅里叶变化的基础上进行相位随机化处理, $\hat{X}(f) = X(f) \exp[i\psi(f)]$, $\psi(f)$ 为 $[0, 2\pi]$ 上服从均匀分布的随机数,再对相位随机化序列进行傅里叶逆变换得到原始序列的替代数据。

4.4.2 检验统计量

依据零假设生成替代数据,常用的检验统计量有关联维数、Lyapunov 指数、预测误差等^[34,36]。采用检验统计量 T 以及关联维数两种结合,确保了检验结果的合理性,其中检验统计量 T 为

$$T = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (x_i - \bar{x})^4 / \left[\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (x_i - \bar{x})^2 \right]^2, \quad (10)$$

式中 \bar{x} 为时间序列 $\{x_i\}_{i=1}^N$ 的均值, 若原始序列的 T 值落在其替代数据组的 T 值分布范围之外, 拒绝零假设; 反之, 接受零假设。

关联维数作为统计检验量, 其计算方法采用 G-P 算法。通常定义一个显著性指标 Z 来表示原始数据与替代数据的检验统计量的差异: $Z = |D_{\text{orig}} - \langle D_{\text{surr}} \rangle| / \sigma_{\text{surr}}$, 其中 D_{orig} 为原始数据的检验统计量, $\langle D_{\text{surr}} \rangle$ 为替代数据组检验统计量的均值, σ_{surr} 为替代数据的检验统计量的方差。当显著性水平为 0.05 时, 非线性时间序列的 $Z > 1.96$; 若 $Z \leq 1.96$, 则可认为原始序列为随机序列。

4.4.3 成都市单位质量消光系数时间序列随机特性分析

通过对单位质量消光系数时间序列的分析, 可得出序列可能具有随机性的结论。为验证这一结论的正确性, 应用替代数据法对其做进一步的分析。零假设在 95% 的置信水平内有效, 依据相位随机化方法, 对消光系数时间序列生成 39 组替代数据, 结果如图 4 和表 2 所示, 其中直方图表示替代数据的 T 值分布, 黑色方框表示原始数据的 T 值分布。图 5 和表 3 为分别应用两种检验统计量的分析结果, 它们一致表明成都市单位质量消光系数时序数据是一个随机序列。

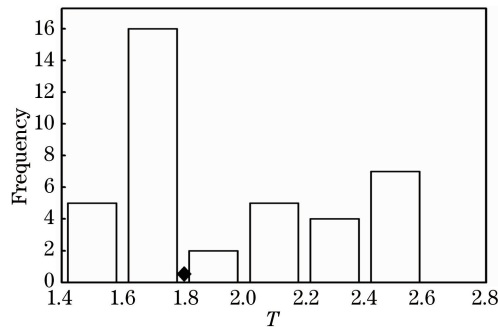


图 5 成都市消光系数数据的 T 统计检验量结果

Fig. 5 T statistical test results of extinction coefficient data in Chengdu

表 3 成都市消光系数数据的随机特性判定表

Table 3 Determination of the stochastic characteristic of the data of extinction coefficient in Chengdu

Data name	D_{orig}	$\langle D_{\text{surr}} \rangle$	σ_{surr}	Z
Extinction coefficient	3.1666	3.1657	0.0005	1.8

5 结 论

利用 2013 年 6 月到 2014 年 5 月成都市逐时(降雨天除外)细颗粒物(PM2.5)浓度监测数据以及相应的地面能见度、相对湿度观测数据, 反演得同期单位质量消光系数逐时时间序列。对消光系数吸湿过程中的变化复杂性进行了简述, 同时例证了现有湿度订正模型在成都地区的非适用性, 创新性地提出其非适用性可能源自消光系数序列自身特性。运用相空间重构理论、Cao 方法以及替代数据法研究了单位质量消光系数数据的随机性特征, 结果表明, 基于相空间重构理论, 通过独立法及相关法确定该时间序列的最佳延迟时间 f 和最佳嵌入维数 m , 据此计算饱和关联维数、最大 Lyapunov 指数以及 Kolmogorov 熵等特征量, 结果表明该序列具有低维 Chaos 的特征; 另外, 结合 Cao 方法排除了单位质量消光系数时间序列为非线性序列的可能性, 进一步根据替代数据法明确了该序列本质为一随机序列。上述结论不仅明晰了单位质量消光系数序列的特性, 还可为大气颗粒物湿度订正模型的改进奠定坚实的理论基础。

参 考 文 献

- 1 Yuan C S, Lee C G, Liu S H, *et al.* Correlation of atmospheric visibility with chemical composition of Kaohsiung aerosols [J]. Atmospheric Research, 2006, 82(3-4): 663-679.
- 2 Gong Chunwen, Li Xuebin, Li Jianyu, *et al.* New method of aerosol extinction coefficient measurement [J]. Acta Optica

- Sinica, 2014, 34(1): 0101001.
宫纯文, 李学彬, 李建玉, 等. 大气气溶胶消光系数测量新方法[J]. 光学学报, 2014, 34(1): 0101001.
- 3 Bo Guangyu, Liu Dong, Wu Decheng, *et al.* Two-wavelength lidar for observation of aerosol optical and hygroscopic properties in fog and haze days[J]. Chinese J Lasers, 2014, 41(1): 0113001.
伯广宇, 刘东, 吴德成, 等. 双波长激光雷达探测典型雾霾气溶胶的光学和吸湿性质[J]. 中国激光, 2014, 41(1): 0113001.
- 4 Chen Linghong, Jiang Yiqi, Sun Yangyang, *et al.* Analysis of absorption and scattering properties of water host haze droplet with insoluble solid inclusion[J]. Chinese J Lasers, 2015, 42(3): 0308001.
陈玲红, 蒋一奇, 孙洋洋, 等. 不可溶性固态内核霾滴的散射及吸收特性分析[J]. 中国激光, 2015, 42(3): 0308001.
- 5 Pitchford M, Malm W, Schichtel B, *et al.* Revised algorithm for estimating light extinction from IMPROVE particle speciation data[J]. J Air Waste Manag Assoc, 2007, 57(11): 1326-1336.
- 6 Yan Guoliang, Han Yongxiang, Zhang Xiangzhi, *et al.* Analysis of a haze event in Nanjing with micro-pulse lidar measurements[J]. China Environment Science, 2014, 34(7): 1667-1672.
严国梁, 韩永翔, 张祥志, 等. 南京地区一次灰霾天气的微脉冲激光雷达观测分析[J]. 中国环境科学, 2014, 34(7): 1667-1672.
- 7 Han Daowen, Liu Wenqing, Liu Jianguo, *et al.* Retrieval method for aerosol mass concentration vertical distribution[J]. Chinese J Lasers, 2006, 33(11): 1567-1573.
韩道文, 刘文清, 刘建国, 等. 气溶胶质量浓度空间垂直分布的反演方法[J]. 中国激光, 2006, 33(11): 1567-1573.
- 8 Tao Zongming, Shan Huihui, Ma Xiaomin, *et al.* Retrieval method of PM_{2.5} mass concentration profile in near-ground and case study[J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2015, 52(11): 110102.
陶宗明, 单会会, 麻晓敏, 等. 近地面 PM_{2.5} 质量浓度廓线反演方法及个例研究[J]. 激光与光电子学进展, 2015, 52(11): 110102.
- 9 Li Xuebin, Xu Qingshan, Wei Heli, *et al.* Study on relationship between extinction coefficient and mass concentration [J]. Acta Optica Sinica, 2008, 29(9): 1655-1658.
李学彬, 徐青山, 魏合理, 等. 气溶胶消光系数与质量浓度的相关性研究[J]. 光学学报, 2008, 29(9): 1655-1658.
- 10 章澄昌, 周文贤. 大气气溶胶教程[M]. 北京: 气象出版社, 1995.
- 11 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.
- 12 Tang I N. Chemical and size effects of hygroscopic aerosols on light scattering coefficients[J]. J Geophys Res, 1996, 101(D14): 19245-19250.
- 13 Zhang Y H, Chan C K. Understanding the hygroscopic properties of supersaturated droplets of metal and ammonium sulfate solutions using Raman spectroscopy[J]. J Phys Chem A, 2002, 106(2): 285-292.
- 14 Sjogren S, Gysel M, Weingartner E, *et al.* Hygroscopic growth and water uptake kinetics of two-phase aerosol particles consisting of ammonium sulfate, adipic and humic acid mixtures[J]. J Aerosol Sci, 2007, 38(2): 157-171.
- 15 Pueschel R F, Noll K E. Visibility and aerosol size frequency distribution[J]. Journal of Applied Meteorology, 1967, 6(6): 1045-1052.
- 16 Pandis S N, Harley R A, Cass G R, *et al.* Secondary organic aerosol formation and transport [J]. Atmospheric Environment. Part A. General Topics, 1992, 26(13): 2269-2282.
- 17 Wu Dui. Hazy weather research in China in the last decade: A review[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2012, 32(2): 257-269.
吴兑. 近十年中国灰霾天气研究综述[J]. 环境科学学报, 2012, 32(2): 257-269.
- 18 Ye Xingnan, Chen Jianmin. Advances in the mechanism of secondary fine particulate matters formation[J]. Progress in Chemistry, 2009, 21(2-3): 288-296.
叶兴南, 陈建民. 大气二次细颗粒物形成机理的前沿研究[J]. 化学进展, 2009, 21(2-3): 288-296.
- 19 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]. J Appl Meteorol, 1972, 11(6): 968-976.
- 20 Pan Xiaole. Observation study of atmospheric aerosol scattering characteristics as a function of relative humidity [D]. Beijing: Chinese Academy of Meteorological Sciences, 2007.
潘小乐. 相对湿度对气溶胶散射特性影响的观测研究[D]. 北京: 中国气象科学研究院, 2007.
- 21 Ye Xingnan, Chen Jianmin. Haze and hygroscopic growth[J]. Chinese J Nature, 2013, 35(5): 337-341.
叶兴南, 陈建民. 灰霾与颗粒物吸湿增长[J]. 自然杂志, 2013, 35(5): 337-341.

- 22 Carrico C M, Kus P, Rood M J, *et al.* Mixtures of pollution, dust, sea salt, and volcanic aerosol during ACE-Asia: Radiative properties as a function of relative humidity[J]. *J Geophys Res*, 2003, 108(D23): 2015-2023.
- 23 Shi Z, Zhang D, Hayashi M, *et al.* Influences of sulfate and nitrate on the hygroscopic behaviour of coarse dust particles [J]. *Atmospheric Environment*, 2008, 42(4): 822-827.
- 24 Saxena P, Hildemann L M, McMurry P H, *et al.* Organics alter hygroscopic behavior of atmospheric particles [J]. *J Geophys Res*, 1995, 100(D9): 18755-18770.
- 25 Airborne Particles Expert Group. Source apportionment of airborne particulate matter in the United Kingdom [R]. London: Department for Environment, Food & Rural Affairs, 1999-01-28.
- 26 Song Yu, Tang Xiaoyan, Fang Chen, *et al.* Source apportionment on fine in Beijing [J]. *Environmental Science*, 2002, 23(6): 11-16.
宋 宇, 唐孝炎, 方 晨, 等. 北京市大气细粒子的来源分析 [J]. *环境科学*, 2002, 23(6): 11-16.
- 27 Shi G L, Li X, Feng Y C, *et al.* Combined source apportionment, using positive matrix factorization-chemical mass balance and principal component analysis/multiple linear regression-chemical mass balance models [J]. *Atmospheric Environment*, 2009, 43(18): 2929-2937.
- 28 Wang Shulan, Chai Fahe, Zhou Laidong, *et al.* Source analysis of air inhalational particles in Chengdu city [J]. *Scientia Geographica Sinica*, 2006, 26(6): 717-721.
王淑兰, 柴发合, 周来东, 等. 成都市大气可吸入颗粒物来源解析研究 [J]. *地理科学*, 2006, 26(6): 717-721.
- 29 吕金虎, 陆君安, 陈士华. 混沌时间序列分析及其应用 [M]. 武汉: 武汉大学出版社, 2002.
- 30 Theiler J. Spurious dimension from correlation algorithms applied to limited time-series data [J]. *Physical Review A*, 1986, 34(3): 2427-2432.
- 31 Ding Jing, Wang Wensheng, Zhao Yonglong. Characteristics of daily flow variation in the Yangtze River, 1, optimum determination of delay time for reconstruction of a phase space [J]. *Advances in Water Science*, 2003, 14(4): 407-411.
丁 晶, 王文圣, 赵永龙. 长江日流量混沌变化特性研究: I 相空间嵌入滞时的确定 [J]. *水科学进展*, 2003, 14(4): 407-411.
- 32 Grassberger P. An optimized box-assisted algorithm for fractal dimensions [J]. *Physics Letters A*, 1990, 148(1-2): 63-68.
- 33 Hu Xiao, Chen Yongjun, Zeng Min, *et al.* A new method to choose optimal delay time for phase space reconstruction [J]. *Journal of University of Electronic Science and Technology of China*, 2000, 29(3): 282-285.
胡 晓, 陈拥军, 曾 敏, 等. 一种选取相空间重构最优延迟时间的算法 [J]. *电子科技大学学报*, 2000, 29(3): 282-285.
- 34 Cao L. Practical method for determining the minimum embedding dimension of a scalar time series [J]. *Physica D: Nonlinear Phenomena*, 1997, 110(1-2): 43-50.
- 35 Schreiber T. Interdisciplinary application of nonlinear time series methods [J]. *Physics Reports*, 1999, 308(1): 1-64.
- 36 Theiler J, Eubank S, Longtin A, *et al.* Testing for nonlinearity in time series: The method of surrogate data [J]. *Physica D: Nonlinear Phenomena*, 1992, 58(1-4): 77-94.
- 37 Ma Junhai, Liu Lixia. Testing for nonlinearity in time series of monthly rainfall in Yunnan [J]. *Journal of Systems Engineering*, 2007, 22(6): 561-567.
马军海, 刘立霞. 云南地区月降雨量时序数据的非线性特性研究 [J]. *系统工程学报*, 2007, 22(6): 561-567.