

doi:10.3788/gzxb20184707.0701002

基于多轴差分吸收光谱技术的最优估算法 反演气溶胶消光廓线研究

牟福生, 雒静, 李素文, 王家伟, 施瑞瑞, 韦民红

(淮北师范大学 物理与电子信息学院, 安徽 淮北 235000)

摘 要:研究了多轴差分吸收光谱技术的气溶胶消光系数垂直廓线反演方法, 基于非线性最优估算法, 通过地基多轴差分吸收光谱仪观测的 O_4 气体差分斜柱浓度, 结合大气辐射传输模型, 反演气溶胶消光廓线和光学厚度. 2017 年 7 月和 8 月在淮北地区开展了外场观测实验, 低仰角 (小于 15°) 的 O_4 差分斜柱浓度模拟结果和测量结果相关性高于 0.9, 较好反演了对流层的气溶胶状态. 研究表明淮北地区夏季气溶胶含量整体较低, 出现的两天高值天气 (7 月 24 日和 8 月 12 日) 的光学厚度日均值为 0.65 和 0.59, 分别为季节均值的 1.6 倍和 1.4 倍. 通过气溶胶消光廓线时序图可知, 两天的气溶胶高值都位于 0.5 km 以下, 污染主要为本地积累产生.

关键词: 大气光学; MAX-DOAS; 最优估算法; 气溶胶; 柱浓度

中图分类号: X122

文献标识码: A

文章编号: 1004-4213(2018)07-0701002-6

Aerosol Extinction Retrieved with Optical Estimation Algorithm Based on Multi-axis Differential Optical Absorption Spectroscopy

MOU Fu-sheng, LUO Jing, LI Su-wen, WANG Jia-wei, SHI Rui-rui, WEI Min-hong

(The College of Physics and Electronic Information, Huaibei Normal University, Huaibei, Anhui 235000, China)

Abstract: A method for retrieving aerosol extinction coefficient vertical profile based on multi-axis differential absorption spectroscopy was studied, which is based on nonlinear optimal estimation algorithm. The aerosol extinction profile and optical thickness are retrieved from the concentration of O_4 gas differential diagonal column, combined with the atmospheric radiation transmission model, by the multi axis differential absorption spectrometer. Field observation experiments were carried out in Huaibei area in July and August, 2017. The difference between the simulated results of O_4 differential column with low elevation angle (less than 15 degrees) is higher than 0.9, and the aerosol state of troposphere is well retrieved. The study shows that the overall aerosol content in Huaibei is low in summer, and the daily average optical thickness of the two day high value weather (July 24th and August 12th) is 0.65 and 0.59, respectively, 1.6 times and 1.4 times the seasonal average. Through the aerosol extinction profile time series, we can see that the high values of aerosol over two days are below 0.5 km, and the pollution is mainly caused by local accumulation.

Key words: Atmospheric optics; MAX-DOAS; Optimal estimation algorithm; Aerosol ; Column density

OCIS Codes: 010.1290; 120.0280; 300.6540; 320.7140

基金项目: 国家自然科学基金 (Nos. 41705012, 41475017, 61275151, 91544104, 11504121), 国家高技术研究发展计划 (Nos. 2014AA06A511, 2014AA06A508), 安徽省自然科学基金 (Nos. 1308085QF124, 1508085QD71) 和安徽省高校自然科学基金 (Nos. KJ2017B013, KJ2017A381) 资助

第一作者: 牟福生 (1987-), 男, 讲师, 博士, 主要研究方向为大气光谱探测. Email: moufusheng@163.com

通讯作者: 李素文 (1968-), 女, 教授, 博士, 主要研究方向为监测系统研发及其应用. Email: swli@chnu.edu.cn

收稿日期: 2018-03-08; **录用日期:** 2018-05-10

<http://www.photon.ac.cn>

0 引言

大气中悬浮的气溶胶颗粒对地-气系统辐射收支、全球气候变化、局地空气质量以及人类健康都有十分重要的影响,同时气溶胶特性和垂直分布随地区变化剧烈,因此了解气溶胶颗粒的化学组成和物理性质的时空分布十分重要^[1-2].获取气溶胶光学特性(气溶胶消光系数、光学厚度和单次散射反照率等)有利于更好地了解气溶胶在大气过程中作用,准确的垂直分布测量一直是研究气溶胶环境和气候效应的关键条件^[3].

利用气体分子在紫外可见波段的特征吸收的差分吸收光谱技术(Differential Optical Absorption Spectroscopy, DOAS)已经成为检测大气污染的重要手段^[4-6],通过观测天顶方向和低仰角光谱的多轴 DOAS(Multi-AXis DOAS, MAX-DOAS)能够反演痕量气体廓线信息,由于 O_4 气体在大气中垂直分布和柱浓度已知且基本不变,观测到的 O_4 浓度反映了大气中光子路径,因此反演不同仰角的 O_4 差分斜柱浓度(Differential Slant Column Density, dSCD $_{O_4}$)可提供气溶胶散射对于光子路径的影响,结合大气辐射传输模型可以反演气溶胶消光廓线和光学厚度,目前国内外多个研究组已广泛开展了相关算法和观测实验研究^[7-8].在国外 2006 年海德堡大学 Frieß 首次提出将最优估算法应用于气溶胶消光廓线和整层光学厚度(Aerosol Optical Depth, AOD)反演^[9].2011 年德国马普化学所 Wagner 提出了几个参数表述廓线的查表方法^[10],此后不同研究组基于这两种方法对于气溶胶消光廓线反演开展了广泛研究^[11-12],2015 年比利时空间大气物理研究所 T Vlemmix 利用两种方法对气溶胶廓线进行了反演,最优估算法稳定但受先验廓线影响较大,查表法对边界层高敏感但反演结果系统性偏高^[13].国内,2013 年中国科学院安徽光机所吴丰成、王杨分别用查表方法和最优估算法反演了对流层气溶胶消光廓线^[14-15],并进行了模拟验证,2016 年复旦大学王珊珊研究了最优估算法中不同先验廓线对气溶胶消光廓线的影响^[16].之前的研究多为验证算法有效性和通过柱浓度时间序列研究地区污染规律,关于气溶胶廓线分析区域污染来源和输送方面研究较少.

本文介绍了最优估算法应用于 MAX-DOAS 获取气溶胶消光廓线的计算方法,然后在淮北地区夏季开展了 2 个月的连续观测实验,利用改进过的最优估算法获取了气溶胶消光廓线和 AOD,将模拟结果和观测结果进行了对比.通过分析 AOD 时间序列和重点时段气溶胶消光廓线,对气溶胶的来源进行了研究,分析其在实际观测中的应用效果.

1 方法及原理

1.1 MAX-DOAS 仪器和设置

测量采用中科院安光所的一维 MAX-DOAS 系统,观测地点位于淮北北部郊区,望远镜指向方位 75° ,如图 1(a)所示.光谱仪反演波段为 $338\sim 380\text{ nm}$,分辨率约为 0.5 nm ,为减少光谱仪因温度变化而造成的反演误差,将光谱仪置于温控系统中并设定温度为 27° .测量过程中,选取观测仰角 $1^\circ, 2^\circ, 3^\circ, 4^\circ, 5^\circ, 6^\circ, 8^\circ, 10^\circ, 15^\circ$,

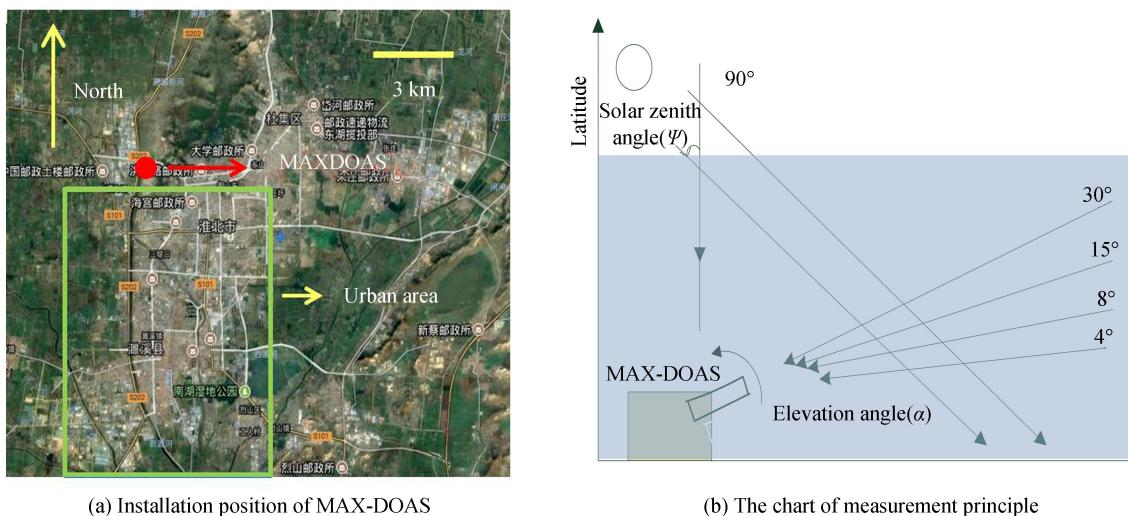


图 1 MAX-DOAS 位置和测量原理图

Fig.1 Position of the MAX-DOAS and measurement principle diagram

30°和 90°,观测原理图如图 1(b)所示.为避免饱和,积分时间根据光强自动调整.反演中选取固定参考谱,具体反演设置如表 1 所示.

表 1 基于 DOAS 的 O₄反演设置
Table 1 Retrieval setup of O₄ by DOAS

Parameter	Data source
NO ₂	Vandaele, et al.(1998),294k
O ₃	Bogumil, et al. (2003),223k
O ₄	Greenblatt, et al. (1990),296k
HCHO	Meller, et al.(2000),298k
Ring	Calculated with DOASIS from reference spectrum
Polynomial degree	5
Intensity offset	Constant

1.2 气溶胶垂直廓线反演算法

大气中 O₄垂直分布可以作为已知量^[17],因此决定 MAX-DOAS 测量的 O₄差分斜柱浓度(dSCD_{O₄})大小主要是光的传输路径,太阳天顶角和观测方位角固定时,气溶胶消光(σ_{aerosol})廓线的变化是影响传输路径的主要因素^[7].MAX-DOAS 不同仰角的测量对不同高度大气敏感性不同,故可用多仰角 dSCD_{O₄}反演气溶胶消光(σ_{aerosol})廓线.因反演问题是病态的,所以需要解决该类问题的最优估算方法和大气辐射传输模型.该研究中采用的是中科院安徽光机所王杨开发的气溶胶和痕量气体反演算法^[12]和 SCIATRAN2.2 模型软件包^[18],基于该算法反演结果与其他仪器测量和其他算法结果进行了对比验证,结果表明算法在不同大气条件下都可以较好反演气溶胶消光廓线^[19].为获取反演最优解 x ,反演算法引入了先验廓线 x_a ,通过最小化价值函数 $\chi^2(x)$ (如式(1))获取测量(y)和先验(x_a)之间的最优解 x ,最终重建最为真实的大气状态.

$$\chi^2(x) = [F(x) - y]^T S_\epsilon^{-1} [F(x) - y] + [x - x_a]^T S_a^{-1} [x - x_a] \quad (1)$$

式中, S_ϵ 和 S_a 分别为测量不确定度和先验廓线的协方差矩阵, S_ϵ 由测量误差决定,值越小表示反演结果越依赖于测量信息, S_a 越小表示反演结果越依赖于先验值,决定了允许反演结果偏离先验值的程度. $F(x)$ 为大气辐射传输模型,表示对应输入信息 x 的模拟结果.为使反演结果更依赖于测量值,算法中采用 Levenberg-Marquardt 修正过的 Gauss-Newton 方法实现迭代过程,每个迭代过程采用式(2).由于多轴 DOAS 技术灵敏度在高度大于 1 km 时急剧下降,因此只针对 4km 以下大气进行反演,格子高度为 0.2 km.

$$x_{i+1} = x_i + [(1 + \gamma_i) S_a^{-1} + K_i^T S_\epsilon^{-1} K_i]^{-1} \{K_i^T S_\epsilon^{-1} [y - F(x_i)] - S_a^{-1} [x_i - x_a]\} \quad (2)$$

式中, K_i 表示权重函数,表示 dSCD_{O₄}和气溶胶消光廓线的关系.中国城市地区大气中气溶胶含量变化剧烈并常出现高气溶胶状态,本文采用改变先验廓线的迭代方式可以使反演更依赖于测量并更好反演变化剧烈的气溶胶状态^[19].获取气溶胶消光廓线后,对整个大气柱垂直积分可以获取整层 AOD.

2 实验结果和分析

2.1 光谱分析

利用 MAX-DOAS 对淮北地区 2017 年 7 月-8 月开展了连续观测,按照表 1 设置对测量光谱进行处理,获取 O₄气体的差分斜柱浓度 dSCD_{O₄}.图 2 为 2017 年 8 月 17 日 12:57 时刻 3°光谱的反演结果,dSCD_{O₄} = 4.4×10^{43} mole.²/cm⁵.反演残差为 6.9×10^{-3} ,主要来源于噪声和未知结构.

通过反演和迭代反演分别获取了测量和模拟的各仰角 dSCD_{O₄}结果,并把两者结果进行了相关性对比(图 2).由图可知在低仰角(<8°)情况下反演 dSCD_{O₄}和测量结果一致性较好($R^2 > 0.90$),其中模型输出结果和测量结果在在 4°时相关性达到最大值 0.96.随仰角增加(>15°)时两者相关性较差($R^2 < 0.70$),并在在 30°仰角时达到最小值($R^2 = 0.49$).对比发现高仰角测量结果较小时测量值高于模拟值,测量结果较大时测量值低于模拟值,主要是因为望远镜指向城市郊区方向,大气较为清洁,加之高仰角接受光子光程较短,较大的反演误差使得算法迭代过程中反演状态量受测量结果限制减少.相关性研究表明 15°以下测量值和模拟值有很好的相关性($R^2 > 0.90$),15°和 30°的相关性较差,这与仰角增大时测量对气溶胶不够敏感有关^[20],本文廓线反演采用 15°以下仰角结果.

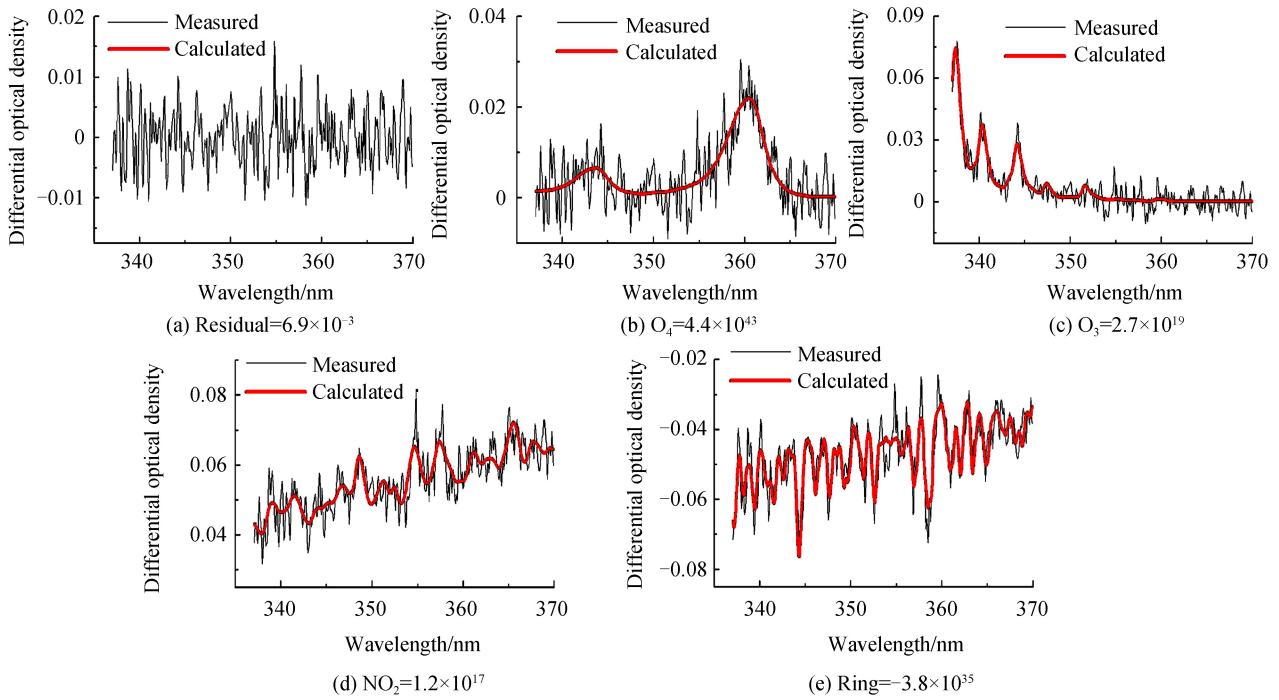


图2 测量光谱拟合过程示例
Fig.2 Fitting example of a measurement spectrum

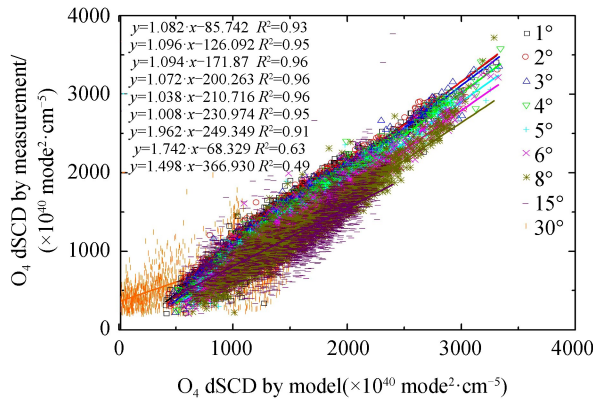


图3 O₄ dSCD 的模拟值和测量值的相关性分析
Fig.3 Correlation analysis between simulated and measured values of O₄ dSCD

2.2 气溶胶光学性质分析

图4为2017年7~8月晴朗天气AOD箱式图的时间序列,由图可知两个月AOD日均值一般低于0.4,相比北京等城市,淮北汽溶胶夏季季节均值含量相对较低^[21],主要是因为该地区城市和工业排放小,大气较为洁净.7月24~25日、8月4~5日和12日观测到AOD高值(>0.5),其中7月24日和8月12日AOD日均值分别0.65和0.59,分别为季节均值的1.6倍和1.4倍.为进一步研究高值时间段的气溶胶颗粒来源,选取这两天对气溶胶消光廓线进行了分析,如图5.通过气溶胶消光廓线时序图可知,高空没有气溶胶污染气团存在,因此两天内气溶胶没有外来输送,观测的AOD高值是由本地积累产生.两天的气溶胶高值都位于0.5 km以下,说明两天内气溶胶颗粒多为城市人类活动自身排放产生,由于边界层高度较低不利于扩散导致产生了污染积聚.

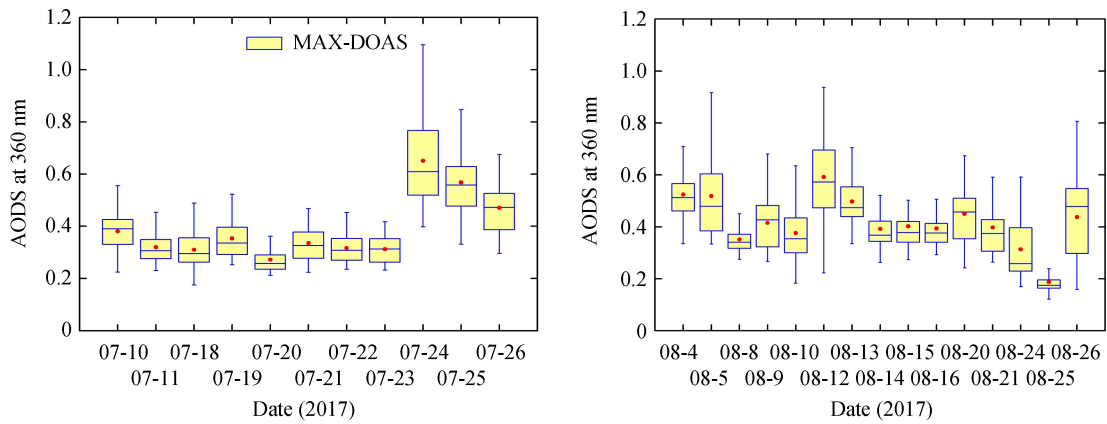


图4 基于 MAX-DOAS 反演的 2017 年 7 月和 8 月的 AOD 的箱式图时间序列

Fig.4 Time series of box type diagrams of AOD based on MAX-DOAS inversion in July and August 2017

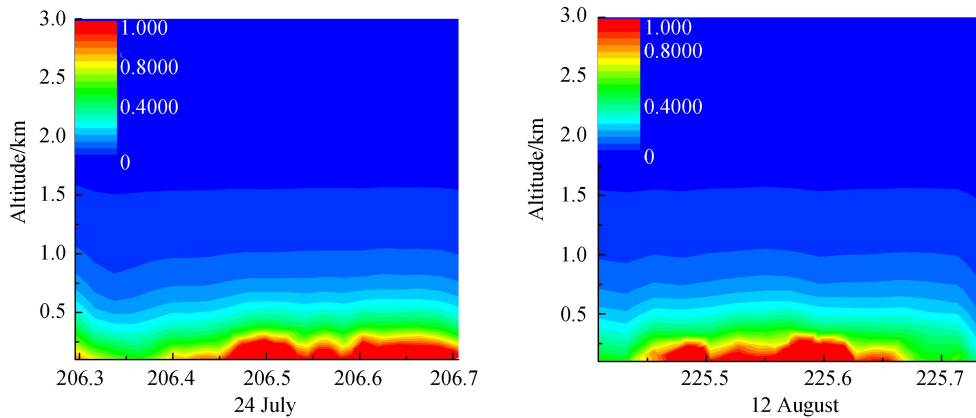


图5 2017 年 7 月 24 日和 8 月 12 日淮北地区的气溶胶消光廓线

Fig.5 Aerosol extinction profiles on 24 July 2017 and 12 August 2017 in Huaibei area

3 结论

利用 MAX-DOAS 测量的多高度角 O_4 差分斜柱浓度反演气溶胶消光廓线.该算法采用了非线性最优估算法,通过循环迭代和最小化价值函数,获得最优化的气溶胶消光廓线.利用该算法在淮北地区开展了外场观测实验,低仰角(小于 15°) O_4 差分斜柱浓度模拟结果和测量结果一致性较好(>0.9),表明该算法可以较好地重建对流层的气溶胶状态.分析了该地区气溶胶垂直分布特征和污染来源,发现淮北地区夏季大气气溶胶含量较低,高值主要为本地积累产生.研究表明最优估算法能够较好地反演气溶胶的消光廓线,下一步将研究以反演的气溶胶状态为基础,同步获取痕量气体状态的方法,并与在固定气溶胶廓线条件下的反演结果进行对比.

参考文献

- [1] ROSENFELD D. Aerosols, clouds, and climate[J]. *Science*, 2006, **312**: 1323-1324.
- [2] MOU Fu-sheng, XIE Pin-hua, LI Ang. Sensitivity study of aerosol properties from observation of atmospheric Ring effect[J]. *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 2016, **36**(9): 2725-2731.
牟福生,谢品华,李昂.MAX-DOAS 仪器观测大气 Ring 效应及对气溶胶参数的敏感性研究[J].光谱学与光谱分析, 2016, **36**(9): 2725-2731.
- [3] RAMANATHAN V, CRUTZEN P J, KIEHL J T, et al. Aerosols, climate, and the hydrological cycle [J]. *Science*, 2001, **294**: 2119-2124.
- [4] PLATT U, STUTZ J. Differential optical absorption spectroscopy principles and applications[M]. Berlin: Springer, 2008.
- [5] HONNINGER G, FRIEDEBURG C V, PLATT U. Multi axis differential optical absorption spectroscopy (MAX-DOAS)[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2004, **4**: 231-254.

- [6] LI Su-wen, WEI Min-hong, DAI Hai-feng. Reconstruction of spatial distributions of industrial emissions based on scanning multi-axis DOAS tomography[J]. *Acta Optica Sinica*, 2015, **35**(4): 0401003.
李素文, 韦民红, 戴海峰. 多轴 DOAS 断层扫描技术重构工业排放空间分布[J]. 光学学报, 2015, **35**(4): 0401003.
- [7] WAGNER T, DIX B, FRIEDEBURG C V. MAX-DOAS O₄ measurements: A new technique to derive information on atmospheric aerosols-Principles and information content [J]. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 2004, **109**(3): 1-19.
- [8] FRIEB U, BALTINK H K, BEIRLE S. Intercomparison of aerosol extinction profiles retrieved from MAX-DOAS measurements[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2016, **9**: 3205-3222.
- [9] FRIEB U, MONKS P S, REMEDIOS J J. MAX-DOAS O₄ measurements: A new technique to derive information on atmospheric aerosols: 2. Modeling studies[J]. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 2006(111): D14203.
- [10] WAGNER T, BEIRLE S, BRAUERS T. Inversion of tropospheric profiles of aerosol extinction and HCHO and NO₂ mixing ratios from MAX-DOAS observations in Milano during the summer of 2003 and comparison with independent data sets[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2011, **4**: 2685-2715.
- [11] SCHREIER S F, RICHTER A, WITTRUCK F. Estimates of free-tropospheric NO₂ and HCHO mixing ratios derived from high-altitude mountain MAX-DOAS observations at midlatitudes and in the tropics[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2016, **16**: 2803-2817.
- [12] WANG Y, LAMPEL J, XIE P H. Ground-based MAX-DOAS observations of tropospheric aerosols, NO₂, SO₂ and HCHO in Wuxi, China, from 2011 to 2014[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2017, **17**: 2189-2215.
- [13] VLEMMIX T, HENDRICK F, PINARDI G. MAX-DOAS observations of aerosols, formaldehyde and nitrogen dioxide in the Beijing area: comparison of two profile retrieval approaches [J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2015, **8**: 941-963.
- [14] WU Feng-cheng, XIE Pin-hua, LI Ang. Research of aerosol extinction inverted with look-up table method based on multi-axis differential optical absorption spectroscopy [J]. *Acta Optica Sinica*, 2013, **33**(6): 0601002.
吴丰成, 谢品华, 李昂. 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[J]. 光学学报, 2013, **33**(6): 0601002.
- [15] WANG Yang, LI Ang, XIE Pin-hua. Retrieving vertical profile of aerosol extinction by multi-axis differential optical absorption spectroscopy [J]. *Acta Physica Sinica*, 2013, **62**(18): 180705.
王杨, 李昂, 谢品华. 多轴差分吸收光谱技术反演气溶胶消光系数垂直廓线[J]. 物理学报, 2013, **62**(18): 180705.
- [16] WANG S S, CUEVAS C A, FRIEB U. MAX-DOAS retrieval of aerosol extinction properties in Madrid, Spain [J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2016, **9**: 5089-5101.
- [17] WAGNER T, FRIEDEBURG C V, WENIG M. UV/Vis observations of atmospheric O₄ absorptions using direct moon light and zenith scattered sunlight under clear and cloudy sky conditions [J]. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 2002, **107**(20): 1-15.
- [18] ROZANOV A, ROZANOV V, BUCHWITZ M. SCIATRAN 2.0-A new radiative transfer model for geophysical applications in the 175 - 2400 nm spectral region[J]. *Advances in Space Research*, 2005, **36**: 1015-1019.
- [19] WANG Y, BEIRLE S, LAMPEL J. Validation of OMI, GOME-2A and GOME-2B tropospheric NO₂, SO₂ and HCHO products using MAX-DOAS observations from 2011 to 2014 in Wuxi, China: investigation of the effects of priori profiles and aerosols on the satellite products[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2017, **17**: 5007-5033.
- [20] WANG Yang. Research the technology of the remote sensing of spatial distribution of atmospheric trace gases and aerosols based on passive DOAS method [D]. Hefei: Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics Chinese Academy of Sciences, 2014.
王杨. 基于被动 DOAS 方法的大气痕量气体和气溶胶空间分布遥测技术研究[D]. 合肥: 中国科学院安徽光机所, 2014.
- [21] YU Xing-na, LU Rui, LIU Chao. Seasonal variation of columnar aerosol optical properties and radiative forcing over Beijing, China[J]. *Atmospheric Environment*, 2017, **166**: 340-350.

Foundation item: The National Natural Science Foundation of China (Nos. 41705012, 41475017, 61275151, 91544104, 11504121), National High Technology Research and Development Program (Nos. 2014AA06A511, 2014AA06A508), Anhui Natural Science Foundation (Nos. 1308085QF124, 1508085QD71), Anhui University of Natural Science Foundation (Nos. KJ2017B013, KJ2017A381)

引用格式: MOU Fu-sheng, LUO Jing, LI Su-wen, et al. Aerosol Extinction Retrieved with Optical Estimation Algorithm Based on Multi-axis Differential Optical Absorption Spectroscopy[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2018, **47**(7): 0701002

牟福生, 雒静, 李素文, 等. 基于多轴差分吸收光谱技术的最佳估算法反演气溶胶消光廓线研究[J]. 光子学报, 2018, **47**(7): 0701002