

引用格式: MOU Fu-sheng, LUO Jing, LI Su-wen. Sensitivity Study of Aerosol Parameters from Observations of O_4 Absorption by MAX-DOAS[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2020, 49(2): 0201002

牟福生, 雒静, 李素文. MAX-DOAS 仪器观测 O_4 吸收对气溶胶参数的敏感性研究[J]. 光子学报, 2020, 49(2): 0201002

MAX-DOAS 仪器观测 O_4 吸收对气溶胶参数的敏感性研究

牟福生, 雒静, 李素文

(淮北师范大学 物理与电子信息学院, 安徽 淮北 235000)

摘 要: 研究了基于地基差分吸收光谱技术观测的 O_4 吸收反演气溶胶光学参数的敏感性. 利用大气辐射传输模型 McArtim 分析了不同波长、不同气溶胶光学参数(光学厚度、边界层高度、单次散射反照率、非对称因子)对 O_4 吸收(大气质量因子)的影响. 结果表明, 大气质量因子对中心波长变化不敏感, 气溶胶光学厚度和边界层高度对 O_4 吸收具有重要影响, 气溶胶光学厚度从 0.1 增加到 1 时, 3° 仰角测量的大气质量因子减少了 28%, 边界层高度从 0.1 km 增加到 1 km, 3° 仰角测量的大气质量因子增加了 9.2%. 平纬圈观测模式下 O_4 吸收对单次散射反照率和非对称因子具有较好的灵敏度, 提供了一种基于地基 MAX-DOAS 观测 O_4 吸收反演气溶胶光学参数的新方法.

关键词: 大气探测; 多轴差分吸收光谱; 敏感性; O_4 吸收; 气溶胶光学参数

中图分类号: X122

文献标识码: A

doi: 10.3788/gzxb20204902.0201002

Sensitivity Study of Aerosol Parameters from Observations of O_4 Absorption by MAX-DOAS

MOU Fu-sheng, LUO Jing, LI Su-wen

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

Abstract: Sensitivity of retrieving aerosol optical parameters from O_4 absorption measured by ground-based differential optical absorption spectroscopy was studied. The influence of different wavelength and aerosol optical parameters (aerosol optical density, boundary layer height, single scattering albedo and asymmetric factor) on the absorption of O_4 was analyzed by the atmospheric radiation transfer model (McArtim). The results show that the air mass factor is not sensitive to the wavelength change, and the aerosol optical density and boundary layer height have an important influence on O_4 absorption (air mass factor). When the aerosol optical density increases from 0.1 to 1, the air mass factor measured at 3° decreases by 28%. And when the boundary layer height increases from 0.1 km to 1 km, the air mass factor measured at 3° increases by 9.2%. The O_4 absorption has a good sensitivity to single scattering albedo and asymmetric factor under the flat-latitude observation mode, which provides a new method to retrieve aerosol optical parameters based on the observation of O_4 absorption by ground-based MAX-DOAS.

Key words: Atmospheric detection; Multi-axis differential optical absorption spectroscopy; Sensitivity; O_4 absorption; Aerosol optical parameters

基金项目: 国家自然科学基金 (Nos.41705012, 41875040, 41605013, 11504121), 安徽省高校自然科学基金 (Nos. KJ2017B013, KJ2018A0392, KJ2017A381)

第一作者: 牟福生 (1987—), 男, 讲师, 博士, 主要研究方向为环境光学检测等. Email: moufusheng@163.com

通讯作者: 雒静 (1986—), 女, 讲师, 博士, 主要研究方向为光电信息获取与处理. Email: ljmf0926@163.com

收稿日期: 2019-08-01; **录用日期:** 2019-11-06

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

0 引言

近年来随中国经济和工业的迅猛发展,各种污染源向大气中输送了大量气溶胶粒子,大气中的气溶胶种类和性质产生了显著变化^[1].大气气溶胶含量和分布的改变产生了严重的环境问题,并影响全球气候变化.对气溶胶光学特性参量(光学厚度、单次散射反照率、非对称因子等)进行研究对于认识气溶胶在大气中演化过程十分重要^[2-3].

利用太阳散射光的地基多轴差分吸收光谱技术(Multi-Axis DOAS, MAX-DOAS)已成为监测大气气溶胶状态的重要手段^[4-6].地球大气中 O_4 浓度可看作常数,观测到 O_4 吸收主要受光子路径影响,气溶胶在大气中的分布是影响光传输路径的主要因素,结合观测到的 O_4 浓度使得获取大气气溶胶光学特性参数成为可能^[7].2004年德国马普化学所 WAGNER T 等提出可以通过 MAX-DOAS 观测的 O_4 吸收获取大气中气溶胶垂直分布和气溶胶光学厚度^[8],之后国内外学者利用查表法和最优估算法对大气中气溶胶垂直分布进行了研究^[9-11].为反演更多气溶胶光学参量,2009年 WAGNER T 研究了 MAX-DOAS 观测大气 Ring 效应对气溶胶光学参量的灵敏度^[12],2016年美国科罗拉多大学 ORTEGA I 基于 MAX-DOAS 测量的 Ring 效应反演了气溶胶光学厚度和非对称因子^[13].2013年中科院安徽光机所王杨利用 MAX-DOAS 观测 O_4 浓度反演了气溶胶光学厚度和垂直分布信息^[14],裴显等针对 Ring 效应反演气溶胶光学参数开展了相关研究^[15-16].目前基于 MAX-DOAS 观测获取气溶胶光学特性主要有两种方法,一种是多仰角观测方式下利用 O_4 吸收获取气溶胶光学厚度和垂直分布信息,另一种是多方位角观测方式下利用 Ring 效应获取气溶胶非对称因子,而利用多方位角观测 O_4 吸收反演单次散射反照率和非对称因子的研究较少.

本文基于大气辐射传输模型研究了地基 MAX-DOAS 观测 O_4 吸收对气溶胶光学参量(光学厚度、边界层高度、单次散射反照率和非对称因子等)的灵敏度,确定了反演的重要参量和合适观测方式,为下一步开展外场实验提供了数据支撑.

1 原理

太阳光在大气传输过程中受到气体分子和气溶胶颗粒的消光作用,由于不同气体吸收特性存在差异,因此可以利用 MAX-DOAS 技术对大气中痕量气体种类和浓度进行测量^[17].入射太阳光 I_0 经大气消光后,被 MAX-DOAS 接收为 I ,两者满足朗伯比尔定律,因测量路径未知,通过 DOAS 方法处理后可得 O_4 的斜柱浓度(Slant Column Density, SCD).对于某一仰角 α ,SCD 为测量气体沿路径的积分,即

$$SCD_{\alpha} = \int c(s) ds = \frac{1}{\sigma} \log \left(\frac{I_0}{I_{\alpha}} \right) \quad (1)$$

式中, σ 为气体吸收截面, s 为为望远镜接收光子入射路径, $c(s)$ 为测量路径上 O_4 气体浓度, I_0 和 I_{α} 分别为参考谱和测量光谱.大气中的 O_4 气体的浓度和氧气浓度的平方成正比,因此大气中 O_4 的垂直柱浓度(Vertical Column Density, VCD)主要取决于温度和压强,可以作为已知量.SCD 即为 MAX-DOAS 系统测量的 O_4 吸收强度,因仰角和大气环境不同 SCD 会发生变化,由于 O_4 气体 VCD 为固定值,故可通过式(2)将 SCD 转化为大气质量因子(Air Mass Factor, AMF),并利用大气辐射传输模型输出 AMF 结果对各气溶胶光学参量开展敏感性分析^[18].

$$AMF_{\alpha} = \frac{SCD_{\alpha}}{VCD} \quad (2)$$

研究采用了蒙特卡洛大气辐射传输模型(McArtim)^[19],该模型可以计算给定大气条件下的测量光谱.McArtim 模型为前向模型,使用时需要输入太阳天顶角(Solar Zenith Angle, SZA)、太阳相对方位角(Solar Relative Azimuth Angle, SRAA)、气溶胶光学参量和大气中温度、湿度和压力廓线等.研究中采用参量化方法表示气溶胶光学特性,通过改变气溶胶光学厚度(Aerosol Optical Density, AOD)、边界层高度(Boundary Layer Height, BLH)、单次散射反照率(Single Scattering Albedo, SSA)和非对称因子(Asymmetric Factor, AF)等获得不同大气条件下的气溶胶状态并进行灵敏度分析.自由对流层高度(β)和边界层内气溶胶所占比重(ω)都设为固定值, β 为 6 km, ω 为 1.温度、湿度、压力和痕量气体廓线都采用美国标准大气.具

体设置如表 1.

表 1 灵敏度研究中 McArtim 模型设置
Table 1 McArtim model settings in sensitivity study

Parameter	Value
AF	0.4,0.5,0.6,0.7,0.8
SSA	0.6,0.7,0.8,0.9,1
Groundalbedo	0.05
Photonnumber	660 000
AOD	0.1,0.3,0.6,1,1.5
ω	1
BLH/km	0.1,0.6,1,1.5
β /km	5
Trace gas profile	O ₄ US standard
Wavelength/nm	350
Elevation angle/(°)	2,3,4,6,8,10,20,30,90

2 灵敏度分析

2.1 波长对 O₄ 吸收的影响

为确定反演中重要参量以及合适的观测方式,利用 McArtim 大气辐射传输模型对波长和气溶胶光学特性等开展了模拟研究,在多种大气条件下分析了 O₄ 吸收和不同参量的关系.模型参数设置如表 1.在利用 DOAS 方法分析痕量气体浓度时,为增加反演信息反演波段通常包含多个波长,而在单次模型仿真过程中 O₄ AMF 只能设定单一波长.图 1 为多个波长 O₄ 吸收的模拟结果,在模拟过程中设置观测仰角为 8°,SRAA=180°,AOD=0.2, AOD=1.由图 1 可知在高低两种气溶胶条件下波长改变对 O₄ AMF 产生影响较小,反演 O₄ 气体时反演波段选取 337~371 nm,在模型中可设定该波段的中心波长(350 nm)进行模拟.

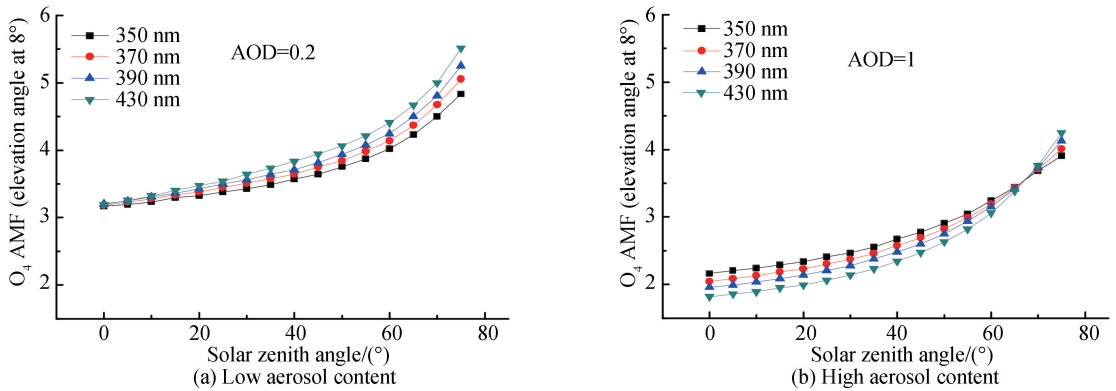


图 1 不同波长处的 O₄ AMF 模拟结果
Fig.1 O₄ AMF simulation results at different wavelengths

2.2 气溶胶光学厚度 (AOD)

AOD 表示因气溶胶的散射和吸收作用对太阳光的消光能力,仿真过程中分析了不同仰角(3°和 10°)下 O₄ AMF 对 AOD 的敏感性(如图 2).由图可知 O₄ 吸收强度随 AOD 提升而降低,这主要是因为随 AOD 增加,望远镜接受光子的平均散射光程减小导致 O₄ 吸收减弱,不同仰角观测结果差异也会降低.O₄ AMF 对 AOD 灵敏度和 SZA 并无明显关系,因此基于 O₄ 吸收反演 AOD 在一天中并无最优时段.在高低两种仰角条件下 O₄ 吸收对低气溶胶变化较为敏感,SZA 为 50°时,AOD 从 0.1 增加到 1,3°和 10°仰角的 AMF 分别减少 28%和 26.1%,在 AOD 大于 1 时 O₄ AMF 对 AOD 的区别并不明显.

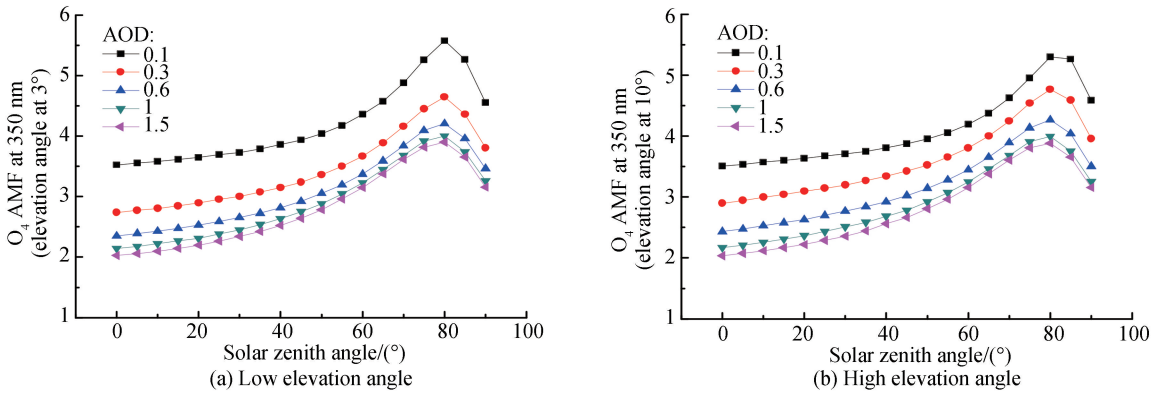


图2 不同气溶胶含量下的 O_4 AMF 模拟结果
Fig.2 O_4 AMF simulation results at different aerosol contents

2.3 边界层高度 (BLH)

模型中假定大气中气溶胶为盒子型分布,在边界层高度以下气溶胶消光为一常数,边界层上则随指数衰减^[19].在设置望远镜方向指向正北方向,气溶胶为中等气溶胶(AOD=0.5),选取边界层高度为 0.1 km、0.6 km、1 km、1.5 km,其他设置如表 1.基于 McArtim 模型对 O_4 AMF 开展了模拟,由图 3 可知对于 O_4 AMF 随着 BLH 增加而增大,这主要是因为 BLH 增加后气溶胶粒子垂直分布范围更广,望远镜接收光子的有效光程增加.相比 10° 仰角, O_4 AMF 在低仰角(3°)时对边界层高度变化更为敏感,SZA 为 50° 时,BLH 从 0.1 km 增加到 1 km, 3° 和 10° 仰角的 AMF 分别增加了 9.4% 和 3.2%.

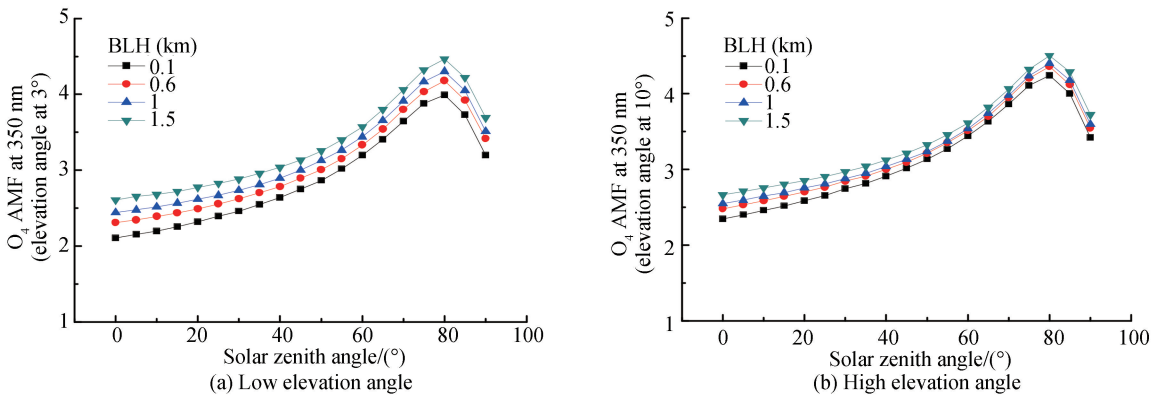


图3 不同边界层高度下的 O_4 AMF 模拟结果
Fig.3 O_4 AMF simulation results at different boundary layer heights

2.4 单次散射反照率(SSA)

SSA 表示气溶胶粒子的散射消光能力,利用 McArtim 模型研究了基于 MAX-DOAS 观测 O_4 AMF 反演 SSA 的可能性.模拟中设定望远镜观测仰角为 8° ,在两种模拟条件下开展 O_4 AMF 对 SSA 的敏感性研究.第一种情况(图 4(a))设置 SRAA= 180° 不变,SZA 变化;第二种情况(图 4(b))设置 SZA= 50° 不变,SRAA 变化,对应平纬圈观测方式.由图 4 可知两种观测条件下 O_4 AMF 对 SSA 都具有一定敏感性,当 SZA 为 50° 和 SRAA 为 180° 时,SSA 从 0.6 增加到 1, O_4 AMF 增加了 8.1%.在平纬圈观测方式(图 4(b))下,望远镜指向和太阳相对位置方向差异较大(SRAA= 180°)时 O_4 AMF 对 SSA 改变更为敏感,这主要是因为相对方位角较大时气溶胶粒子散射消光增加,光子到达望远镜路径增长.此外平纬圈观测方式可同时进行多方位角扫描,增加了有效测量量,因此基于 MAX-DOAS 的 O_4 AMF 平纬圈测量获取 SSA 是可行的^[13].

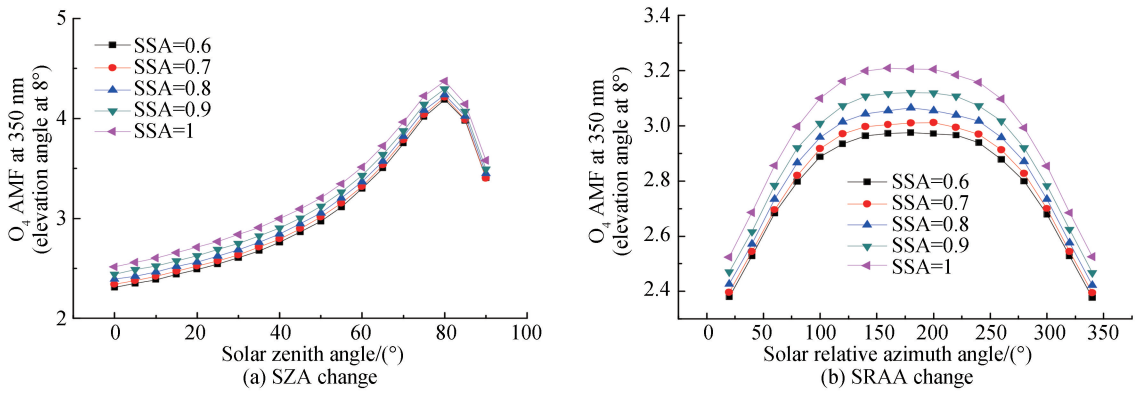


图 4 O₄ AMF 对单次散射反照率的敏感性
Fig.4 O₄ AMF sensitivity to single scattering albedo

2.5 非对称因子(AF)

非对称因子 AF 表示气溶胶粒子前向散射能力强弱,如 2.4 节在两种条件下研究 O₄ AMF 对 AF 的灵敏度.由图 5(a)可知在第一种情况下随 SZA 增加,不同 AF 对应 O₄ AMF 差别减小,这表明在 SZA 较小(SZA<60°)时 O₄ 吸收对 AF 改变更为敏感,因此观测可以选择在 SZA 最小的正午时段开展.在平纬圈观测模式下(图 5(b)),在望远镜指向和太阳位置方向差异较大(SRAA=180°)时 AF 改变造成的 O₄ AMF 变化更为显著,当 SZA 为 50°和 SRAA 为 180°时,AF 从 0.4 增加到 0.8,O₄ AMF 增加了 13.1%,当 AF>0.7 时 O₄ AMF 对 AF 改变更为敏感,这主要是因为 SRAA 较小时望远镜接收光子平均散射光程较短,光子前向散射作用更加明显.模拟结果表明利用 O₄ AMF 对 AF 较为敏感,开展外场实验时应在正午 SZA 较少时开展观测,采用平纬圈观测方式时可增加 SRAA 较大的观测方位角以增加有效观测量.

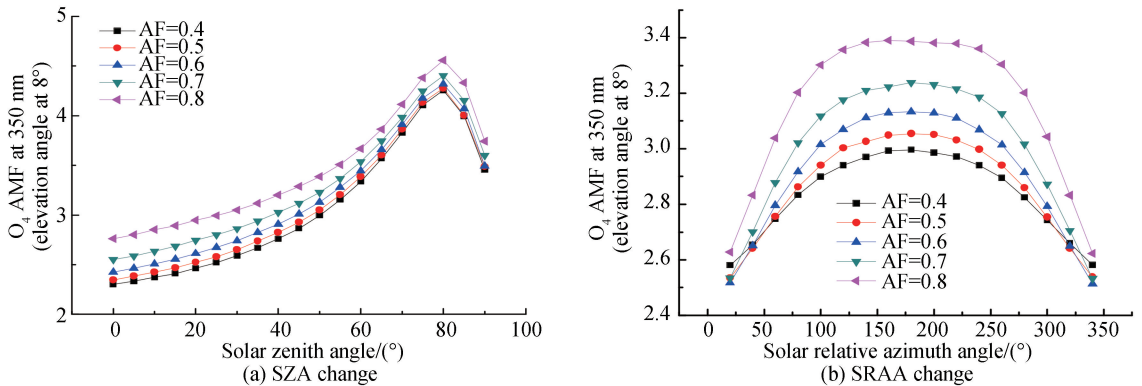


图 5 O₄ AMF 对非对称因子的敏感性
Fig.5 O₄ AMF sensitivity to asymmetry factors

3 结论

基于 McArtim 模型研究了地基 MAX-DOAS 获取的 O₄ 吸收对波长和不同气溶胶光学参量(AOD、BLH、SSA 和 AF)的敏感性.结果表明,在气溶胶光学参量中 O₄ AMF 对 AOD 最为敏感,在低观测仰角时 O₄ AMF 对 AOD 和 BLH 更为敏感,因此在外场观测中应增加低仰角观测数量.SSA 和 g 的敏感性分析表明,平纬圈观测方式下 O₄ AMF 对两者都具有一定敏感性,在 SRAA 为 180°附近时,O₄ AMF 对 SSA 和 AF 变化最为敏感,因此开展实验时应增加对应方向的方位角观测.研究表明基于 MAX-DOAS 观测 O₄ 吸收可以对气溶胶光学厚度和边界层高度进行反演,同时在平纬圈观测方式下观测 O₄ 吸收提供了一种新的 SSA 和 AF 的反演方式,但在实际观测中由于不同观测方向受排放源影响不同,因此对应的大气状态会存在差异,下一步的研究中将结合算法对其进行反演和分析.

参考文献

- [1] 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**(4): 941-963.
- [2] CLEMER K, VAN R M, FAYT C. Multiple wavelength retrieval of tropospheric aerosol optical properties from MAXDOAS measurements in Beijing[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2010, **3**(4): 863-878.
- [3] WANG Shan-shan, CUEVAS C A, FRIEB U. MAX-DOAS retrieval of aerosol extinction properties in Madrid, Spain [J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2016, **9**: 5089-5101.
- [4] WANG T, HENDRICK F, WANG P. Evaluation of tropospheric SO₂ retrieved from MAX-DOAS measurements in Xianghe, China[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2014, **14**(20): 11149-11164.
- [5] 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): 19-23.
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): 19-23.
- [6] XING Cheng-zhi, LIU Cheng, WANG Shan-shan. A new method to determine the aerosol optical properties from multiple-wavelength O₄ absorptions by MAX-DOAS observation[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2019, **12**(6): 3289-3302.
- [7] SINREICH R, FRIEB U, WAGNER T. Multi axis differential optical absorption spectroscopy (MAX-DOAS) of gas and aerosol distribution[J]. *Faraday Discussions*, 2005, **130**: 153-164.
- [8] 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*, 2004, **109**: D22205.
- [9] JIN Jun-li, MA Jian-zhong, LIN Wei-li. MAX-DOAS measurements and satellite validation of tropospheric NO₂ and SO₂ vertical column densities at a rural site of North China[J]. *Atmospheric Environment*, 2016, **133**: 12-25.
- [10] FRIEB U, BALTINK H K, BEIRLE S. Intercomparison of aerosol extinction profiles retrieved from MAX-DOAS measurements[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2016, **9**(1): 3205-3222.
- [11] 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*, 2006, **111**(D14): D14203.
- [12] WAGNER T, Deutschmann T. Determination of aerosol properties from MAX-DOAS observations of the ring effect[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2009, **2**(2): 495-512.
- [13] ORTEGA I, COBURN S, BERG L K. The CU 2-D-MAX-DOAS instrument-Part 2: Roman scattering probability measurements and retrieval of aerosol optical properties[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2016, **9**(8): 3893-3910.
- [14] 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.
- [15] PEI Xian, LI Ang, XIE Pin-hua. Ring effect simulation based on monte carlo atmospheric radiative transfer model[J]. *Journal of Atmospheric and Environmental Optics*, 2013, **8**(5): 354-363.
裴显, 李昂, 谢品华. 基于 Monte Carlo 大气辐射传输模型的 Ring 效应模拟[J]. *大气与环境光学学报*, 2013, **8**(5): 354-363.
- [16] MOU Fu-sheng, LI Ang, XIE Pin-hua. Retrieval of aerosol optical parameters based on Ring effect observed by MAX-DOAS[J]. *Acta Optica Sinica*, 2017, **37**(7): 0701001.
牟福生, 李昂, 吴丰成. 基于 MAX-DOAS 观测大气 Ring 效应的气溶胶光学参数反演[J]. *光学学报*, 2017, **37**(7): 0701001.
- [17] TIAN Xin, XIE Pin-hua, XU Jin. Ground-based MAX-DOAS observations of tropospheric formaldehyde VCDs and comparisons with the CAMS model at a rural site near Beijing during APEC 2014 [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2019, **19**(5): 3375-3393.
- [18] 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**(3): 2189-2215.
- [19] BEIRLE S, DORNER S, DONNER S. The Mainz profile algorithm (MAPA) [J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2019, **12**(3): 1785-1806.

Foundation item: The National Natural Science Foundation of China (Nos. 41705012, 41875040, 41605013, 11504121), Anhui Natural Science Foundation (Nos. KJ2017B013, KJ2018A0392, KJ2017A381)