

基于气溶胶光学厚度反演大气气溶胶尺度分布^{*}

左浩毅[†] 杨经国

(四川大学物理系, 成都 610064)

(2006 年 12 月 14 日收到, 2007 年 3 月 8 日收到修改稿)

介绍一种基于气溶胶光学厚度测量反演大气气溶胶尺度分布的新方法. 从实测气溶胶光学厚度出发, 依据严格的 Mie 散射理论, 将气溶胶尺度分布函数离散, 采用线性回归法确定气溶胶尺度分布. 还通过对多重共线性的讨论, 确定了用于反演气溶胶尺度分布的光谱波段.

关键词: Mie 散射, 气溶胶光学厚度, 气溶胶尺度分布, 线性回归

PACC: 8670L

1. 引 言

气溶胶是大气的重要组成成分, 它对全球气候的变化, 大气热量收支平衡起着非常重要的作用. 为了能够定量分析气溶胶对大气的影响, 需要详细了解气溶胶的物理化学特性, 其中气溶胶尺度分布 $n(r)$ 和总密度是气溶胶非常重要的特征参数, 确定气溶胶尺度函数和绝对含量一直是大气科学工作的一项重要任务^[1-6]. 采用光学方法确定气溶胶尺度分布以 Mie 散射理论为依据, 但由于该理论的计算十分复杂, 长期以来都只能用某些近似方法代替, 如在忽略气溶胶吸收的条件下, 气溶胶消光效率因子 $Q(\lambda, r)$ 可用 Van de Hulst 方法近似, 该方法的表达形式较为简洁, 但所确定的 $Q(\lambda, r)$ 因子与严格的 Mie 散射理论相比有偏差, 差别最大可达到 20%^[1]. 在计算方法上, 传统气溶胶尺度反演方法大多为非独立模式, 即预先假设尺度分布符合某一函数形式 (如 Junge 分布, 正态分布等), 再根据实测气溶胶光学厚度确定函数中的参数, 以此确定出尺度分布的具体形式. 但实际气溶胶尺度分布难以完全符合已知的函数形式, 因而该方法确定的气溶胶尺度分布存在不合理因素. 此外, 实验中为获得大气气溶胶光学厚度, 首先要获得作为参考光谱的大气上界太阳光谱, 再与地表太阳光谱比较获得光学厚度, 由于采集大气外界太阳光谱和采集地面样本光谱可能存

在条件差异, 将给所测光学厚度带来误差, 导致气溶胶尺度分布反演不准确.

近年来, 由于计算技术的飞速发展, 计算机运算速度不断加快, 使得将严格的 Mie 散射理论应用于实际成为可能. 本文依据实测气溶胶光学厚度, 从严格的 Mie 散射理论出发, 计算了气溶胶消光因子 $Q(\lambda, r)$, 将气溶胶尺度分布函数离散, 使用线性回归法, 获得了气溶胶尺度分布函数和气溶胶垂直总密度. 另外, 本文所使用的大气外界光谱为 9600 m 高空获得, 与地面样品光谱采集使用了同一台光谱仪, 能更准确地获得气溶胶光学厚度.

2. 气溶胶分布反演方法

强度为 $I_0(\lambda)$ 的光经一定厚度的大气后由于气溶胶和各种气体分子的消光, 强度变为了 $I(\lambda)$, 根据比尔-朗伯定律 (Beer-Lambert) 有

$$I(\lambda) = I_0(\lambda) \exp[-\tau_0(\lambda)], \quad (1)$$

$\tau_0(\lambda) = \tau(\lambda) + \tau_{\text{out}}(\lambda)$, $\tau_{\text{out}}(\lambda)$ 为该层大气内除气溶胶外其他因素消光的光学厚度. $\tau(\lambda)$ 为气溶胶光学厚度, 为气溶胶的散射光学厚度 $\tau_{\text{sca}}(\lambda)$ 和吸收光学厚度 $\tau_{\text{abs}}(\lambda)$ 总和, 即

$$\tau(\lambda) = \tau_{\text{sca}}(\lambda) + \tau_{\text{abs}}(\lambda), \quad (2)$$

$\tau(\lambda)$ 实际上是光路上所有气溶胶的散射消光和吸收消光能力的总和, 可以表示为

^{*} 国家自然科学基金 (批准号: 60078020, 60478044) 资助的课题.

[†] E-mail: zuohaoyi@sohu.com

$$\tau(\lambda) = l \int_0^{\infty} n(r) \alpha(\lambda, r) dr, \quad (3)$$

其中 $\alpha(\lambda, r)$ 为气溶胶消光截面, $n(r)$ 为气溶胶尺度分布函数, l 为光程. 如以太阳为光源, 则 l 表示大气光学质量, 其大小由太阳高度角决定, 其计算方法由文献 7 给出; $\int_0^{\infty} n(r) dr$ 为气溶胶垂直柱体总密度(VCD). 类似可以定义散射光学厚度 $\tau_{\text{sca}}(\lambda)$ 和吸收光学厚度 $\tau_{\text{abs}}(\lambda)$:

$$\tau_{\text{sca}}(\lambda) = l \int_0^{\infty} n(r) \sigma_{\text{sca}}(\lambda, r) dr, \quad (4)$$

$$\tau_{\text{abs}}(\lambda) = l \int_0^{\infty} n(r) \sigma_{\text{abs}}(\lambda, r) dr, \quad (5)$$

其中 $\sigma_{\text{sca}}(\lambda, r)$ 和 $\sigma_{\text{abs}}(\lambda, r)$ 分别为气溶胶散射截面和吸收截面. 分别定义 Mie 散射效率因子 $Q_{\text{sca}}(\lambda, r)$, 吸收效率因子 $Q_{\text{abs}}(\lambda, r)$ 和消光效率因子 $Q(\lambda, r)$ 如下:

$$Q_{\text{sca}}(\lambda, r) = \sigma_{\text{sca}}(\lambda, r) / \pi r^2, \quad (6)$$

$$Q_{\text{abs}}(\lambda, r) = \sigma_{\text{abs}}(\lambda, r) / \pi r^2, \quad (7)$$

$$Q(\lambda, r) = Q_{\text{sca}}(\lambda, r) + Q_{\text{abs}}(\lambda, r), \quad (8)$$

其中, 消光效率因子 $Q(\lambda, r)$ 可表示为

$$Q(\lambda, r) = \frac{2}{\alpha^2} \sum_{p=1}^{\infty} (2p+1) \text{Re}(a_p + b_p), \quad (9)$$

其中 a_p 和 b_p 与波长 λ , 粒子半径 r 及复折射系数 m 有关, 由第一类和的三类 Bessel 函数表达^[8], $\alpha = 2\pi r / \lambda$, Re 表示取实部. 在此基础上 (3) 式可以变为

$$\tau(\lambda) = l \int_0^{\infty} \pi r^2 Q(\lambda, r) n(r) dr, \quad (10)$$

实际大气气溶胶半径上下限不可能为零和无穷大, 通常选取有限值 r_{max} , r_{min} 分别作为上下限. 那么 (10) 式变为

$$\tau(\lambda) = l \int_{r_{\text{min}}}^{r_{\text{max}}} \pi r^2 Q(\lambda, r) n(r) dr, \quad (11)$$

等式左端 $\tau(\lambda)$ 为实测气溶胶光学厚度, 右端为理论计算值, 通过二者的对比, 可以确定 $n(r)$. 可将积分上下限分为 k 个区间, 并且假设在每一区间 Δr_i ($i=1, 2, 3, \dots, k$) 内 $n(r)$ 为一常数 n_i , 则有

$$\tau(\lambda) = l \sum_{i=1}^k n_i \int_{r_{i-1}}^{r_i} \pi r^2 Q(\lambda, r) dr, \quad (12)$$

其中 $\int_{r_{i-1}}^{r_i} \pi r^2 Q(\lambda, r) dr$ 可以根据 (9) 式计算获得, 设

$$\tau_i(\lambda) = \int_{r_{i-1}}^{r_i} \pi r^2 Q(\lambda, r) dr, \quad (13)$$

有

$$\tau(\lambda) = l \sum_{i=1}^k n_i \tau_i(\lambda), \quad (14)$$

(14) 式对于所有波长 λ 均成立, 设共有 s 个波长 ($\lambda_1, \lambda_2, \dots, \lambda_s$), 所以有

$$\begin{pmatrix} \tau(\lambda_1) \\ \tau(\lambda_2) \\ \dots \\ \tau(\lambda_s) \end{pmatrix} = l \begin{pmatrix} \tau_1(\lambda_1) & \tau_2(\lambda_1) & \dots & \tau_k(\lambda_1) \\ \tau_1(\lambda_2) & \tau_2(\lambda_2) & \dots & \tau_k(\lambda_2) \\ \dots & \dots & \dots & \dots \\ \tau_1(\lambda_s) & \tau_2(\lambda_s) & \dots & \tau_k(\lambda_s) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} n_1 \\ n_2 \\ \dots \\ n_k \end{pmatrix}, \quad (15)$$

从数学上讲, 当 $s > k$ 时, 待定矩阵可根据 (15) 式由线性回归法求得, 但该方程组存在严重的多重共线性, 所以在线性回归之前需对方程组作优化处理. 经过优化的方程组可用非负线性回归法求解, 获得的向量 N 即为待测气溶胶尺度分布, 将其累加可获得气溶胶垂直柱密度.

3. 气溶胶光学厚度实测与尺度分布反演

为获得气溶胶光学厚度, 需要测量大气上界太阳光谱和地面太阳光谱. 地面光谱可以由光谱仪在实测地采集获得, 而大气上界太阳光谱较难获得, 并且由于采集上界光谱的光谱仪常数 (分辨率, 强度响应等) 与地面所使用光谱仪不同, 所以无法直接比较. 大多数工作中采用了一些近似的方法, 比如将在海拔较高地区采集到的光谱近似看作大气上界太阳光谱, 甚至也有人用在气溶胶待测地正午时分的太阳光谱来代替^{9, 10]}. 本文使用的大气上界太阳光谱和地面光谱均由同一台光谱仪 (71GFS10 小型光谱仪) 采集, 大气上界太阳光谱于 2006 年 10 月 22 日 09:00 从成都飞往丽江的飞行途中, 在 9600 m 海拔高度采集. 太阳光由光纤导入光谱仪, 光纤头由小型太阳定位装置控制, 可较准确地对准太阳. 图 1(a) 为用该光谱仪测量的大气上界太阳光谱 (曲线 A, 太阳高度角 20.8°) 和成都地区地面光谱 (曲线 B, 太阳高度角 35.8°).

通过对比大气上界太阳光谱和地面太阳光谱可以获得总光学厚度 $\tau_0(\lambda)$, 又有

$$\tau_0(\lambda) = \tau(\lambda) + \tau_{\text{oh}}(\lambda), \quad (16)$$

$\tau(\lambda)$ 为气溶胶光学厚度, $\tau_{\text{oh}}(\lambda)$ 为除气溶胶外其他因素消光的光学厚度, 在本文用于反演波段范围 $\tau_{\text{oh}}(\lambda)$ 主要包括臭氧和二氧化氮的吸收以及大气分

子的散射. 即

$$\tau_{\text{oh}}(\lambda) = \tau_{\text{O}_3}(\lambda) + \tau_{\text{N}}(\lambda) + \tau_{\text{R}}(\lambda) \quad (17)$$

式中 $\tau_{\text{O}_3}(\lambda)$, $\tau_{\text{N}}(\lambda)$, $\tau_{\text{R}}(\lambda)$ 分别为臭氧吸收, 二氧化氮吸收以及大气分子散射的光学厚度. 由于臭氧吸收主要在紫外光谱段 (UV-B, UV-C) 发生, 而本文所使用波段在可见光波段, 并且, 飞机飞行高度 (9600 m)

低于臭氧层所在高度 (约 15000 m), 所以臭氧对光学厚度的影响可以忽略. 通过差分吸收计算获得大气二氧化氮浓度^[7], 进而得到 $\tau_{\text{N}}(\lambda)$. 最后, $\tau_{\text{R}}(\lambda)$ 可由瑞利散射公式计算获得^[8].

在获得 $\tau_{\text{oh}}(\lambda)$ 后, 将其扣除, 可以获得气溶胶光学厚度 $\tau(\lambda)$, 如图 1 (b) 所示.

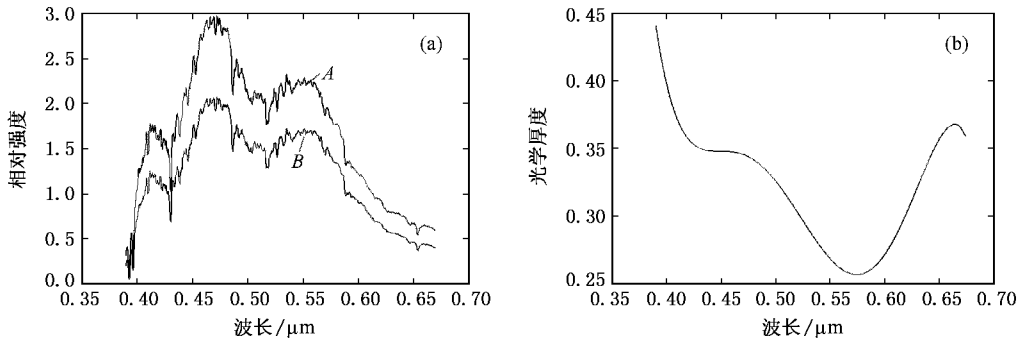


图 1 实际测量的大气上界太阳光谱、地面太阳光谱和计算的气溶胶光学厚度

根据大陆气溶胶特征, 设气溶胶折射率 $m = 1.55 - 0.01i$ ^[11, 12], 将积分上下限分别定为 2 和 $0.1 \mu\text{m}$ ^[6], 即 $r_{\text{max}} = 2$, $r_{\text{min}} = 0.1$, 将这一积分区间分为 40 等分, 依据 $\tau(\lambda)$, 选取 390—660 nm 光谱段, 采用 (15) 式进行线性回归, 获得系数 n_i , 将 n_i 累加, 可获得气溶胶垂直总密度. 根据 n_i 可绘制出气溶胶尺

度分布. 使用该方法获得了 2006 年 5 月 15 日下午 17:22, 17:27, 17:50 和 18:20 (太阳高度角分别为 30.7° , 29.6° , 24.7° , 18.4°) 成都地区气溶胶垂直总密度, 分别为 3.427, 3.018, 3.529, 2.835 ($\times 10^7 \text{ particle/cm}^2$), 气溶胶尺度分布分别如图 2 (a)—(d) 所示 (均作归一化处理). 由图可见气溶胶主要

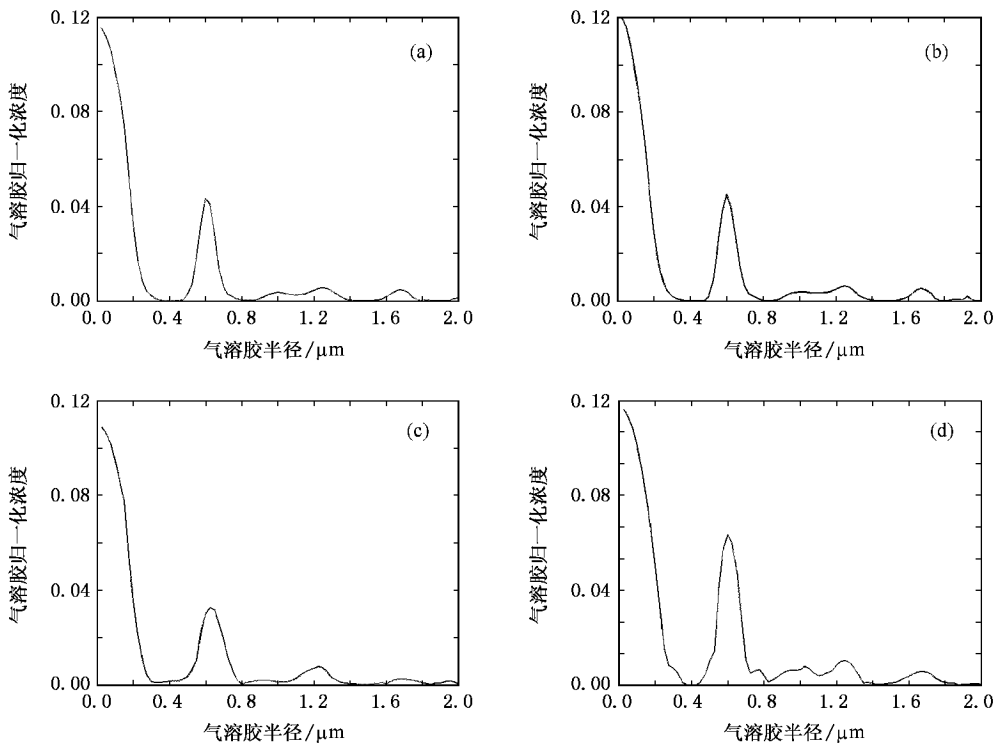


图 2 2006 年 5 月 15 日成都地区气溶胶谱分布

集中在小粒子部分,大粒子相对较少。在小于 $0.4 \mu\text{m}$ 的范围内,气溶胶尺度函数近似符合 Junge 分布;在 $0.4\text{—}0.8 \mu\text{m}$ 范围内,气溶胶尺度近似为正态分布;在大于 $0.8 \mu\text{m}$ 范围内,分布函数无规则。

通过气溶胶尺度分布又可反演气溶胶总光学厚度 $\tau(\lambda)$,比较 $\tau'(\lambda)$ 和实测总光学厚度 $\tau(\lambda)$ 的差别可以检验所得气溶胶尺度分布是否合理。图 $\alpha(a)\text{—}\alpha(d)$ 四个图的 $\tau'(\lambda)$ 和 $\tau(\lambda)$ 的标准差分别为 0.47% 、 0.40% 、 0.32% 、 0.38% 。由此可见计算所得的气溶胶光学厚度和实测光学厚度相差很小。

4. 反演中光谱段的选择

在线性回归中,要求设计矩阵列向量之间线性无关,如果某一列向量可以由其他列向量线性表出,那么列向量之间就是线性相关的,即列向量之间存在多重共线性,这将使回归结果不可靠^[2]。方程(15)中,矩阵向量之间存在明显的多重共线性,将影响反演结果,虽然在反演之前做了优化处理,但为了使反演结果更加准确,用于反演的光谱段不能任意选择,因为波段不同,矩阵向量间多重共线性严重程度有所不同。可采用方差扩大因子法检测矩阵多重共线性,因为该因子既可以反映共线性的强度,又可以判明哪些变量间存在共线性。设 $\tau_i(\lambda)$ 和 $\tau_{i+1}(\lambda)$ 之间的线性相关系数为 R_i ($i = 1, 2, 3, \dots, 39$),方差扩大因子 VIF_i 可表示为

$$VIF_i = 1/(1 - R_i^2), (i = 1, 2, 3, \dots, 39) \quad (18)$$

VIF_i 值越大说明 $\tau_i(\lambda)$ 和 $\tau_{i+1}(\lambda)$ 之间的多重共线性越严重^[13]。在选取反演波段时可以此为根据:在所选波段内数值超过 $10^{[13]}$ 的 VIF_i 的个数不能过多,否则该波段不适合于解谱。首先考察当波段宽度相同时不同波段范围内 VIF_i 的值,结果如表 1。

表 1 不同波段内(谱宽相同)大于 10 的 VIF_i 个数

波段/nm	300—700	400—800	500—900	600—1000
大于 10 的 VIF_i 个数	4	7	18	27

由表 1 可见宽度同为 400 nm ,波段越是靠近红外端,矩阵列向量之间的多重共线性越严重,而越靠近紫外端,矩阵列向量之间的多重共线性越不明显。所以波段选取应当靠近短波方向。下面考察当波段一端固定,而波段宽度不同时的 VIF_i 值,结果如表 2。

由表 2 可见,并非波段范围越宽越好,而是当波段位于 $350\text{—}650 \text{ nm}$ 附近时最合适。

表 2 不同波段内(短波端固定)大于 10 的 VIF_i 个数

波段/nm	350—800	350—750	350—700	350—650	350—600	350—550
大于 10 的 VIF_i 个数	6	6	7	5	6	7

使用其他方法做判断,获得了类似结果。所以在实际反演的时候,波段应该尽量处于 $350\text{—}650 \text{ nm}$ 附近,模拟结果也证实了该波段较适合解谱。

5. 结论与讨论

本文从严格的 Mie 散射理论出发,获得气溶胶消光效率因子 $Q(\lambda, r)$,并将气溶胶尺度分布函数离散,分成多个区间,并假设在每一区间内分布函数为一个常数,以实测气溶胶光学厚度为参考,采用线性回归的方法确定这些常数,进而获得了 $0.1\text{—}2 \mu\text{m}$ 范围内气溶胶尺度分布谱。该方法以严格的 Mie 散射为基础,不需对 $Q(\lambda, r)$ 因子做近似,且不需事先假定气溶胶谱分布的函数形式,从而使反演结果更加合理。本文所用参考光谱是于海拔 9600 m 高空采集的太阳光谱,与地面样本光谱采集使用了同一台光谱仪器,从而避免参考光谱中气溶胶的消光以及仪器常数给测量带来的误差。

从成都地区气溶胶尺度分布的反演结果来看,多数气溶胶集中在小粒子段,在小于 $0.4 \mu\text{m}$ 的范围内,气溶胶尺度函数近似符合 Junge 分布;在 $0.4\text{—}0.8 \mu\text{m}$ 范围内,气溶胶尺度函数近似为正态分布;在大于 $0.8 \mu\text{m}$ 范围内,分布函数无规则。总的来说成都地区气溶胶尺度分布函数不适合用单一的函数形式表达。

文章还讨论了如何通过选择适当的反演波段以提高反演的准确性。分析发现在 $350\text{—}650 \text{ nm}$ 波段附近的波段最适合用于解谱。

应当说明的是,本文在反演气溶胶光学厚度时,未扣除散射光强,关于散射光对反演结果影响的分析,是一个很复杂的过程,从分析结果来看,在一般条件下,这种影响较小,可以忽略。

在本文的计算过程中,假定了气溶胶的折射率为 $1.55 - 0.01i$,这种假设有可能给反演带来误差,下一阶段的工作应该考虑如何采用光学的方法获得气溶胶复折射率。

- [1] Lui C W , Clarkson M , Nicholls R W 1996 *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer.* **55** 519
- [2] Si F Q , Liu J G , Xie P H , Zhang Y J , Liu W Q , Hiroaki K , Liu C , Nofel L , Nobuo T 2005 *Chin. Phys.* **14** 2360
- [3] Lesnic D , Elliott L , Ingham D B 1995 *J. Aerosol. Sci.* **26** 797
- [4] Gichi Y , Masayuki T 1968 *Appl. Opt.* **8** 447
- [5] Vito V , Claudio T , Angelo L , Alessandra C , Stefano M C 2000 *Atmos. Environ.* **37** 5095
- [6] Eldering A , Irion F W , Chang A Y , Gunson M R , Mills F P , Steele H M 2001 *Appl. Opt.* **40** 3082
- [7] Zuo H Y , Gao J , Cheng J , Andrew Y C , Yang J G 2006 *Spectrosc. Spect. Anal.* **26** 1356 (in Chinese) [左浩毅、高 洁、程 娟、郑玉臣、杨经国 2006 光谱学与光谱分析 **26** 1356]
- [8] Van D H 1957 *Light Scattering by Small Particle* (New York :Wiley)
- [9] Chen D , Zhou B , Hao N , Chen L M 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 5555 (in Chinese) [陈 丹、周 斌、郝 楠、陈立民 2006 物理学报 **55** 5555]
- [10] Zhou B , Liu W Q , Zheng Z H , Zhang Y J , Song B C , Wang F P 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 2507 (in Chinese) [周 斌、刘文清、郑朝晖、张玉钧、宋炳超、王锋平 2000 物理学报 **49** 2507]
- [11] Michael A B , Shui Y L 1976 *J. Appl. Meteorol.* **15** 1068
- [12] Helen M S , Annmarie E , Bhaswar S , Geoffrey C T , Franklin P M , Brian H K 2003 *Appl. Opt.* **42** 2140
- [13] He X Q , Liu W Q 2001 *Application of the Regression Analysis* (Beijing :China Renmin University Press) p50 [何晓群、刘文卿 2001 应用回归分析 (北京 :中国人民大学出版社) 第 50 页]

Retrieving of aerosol size distribution based on the measurement of aerosol optical depth *

Zuo Hao-Yi[†] Yang Jing-Guo

(Department of Physics , Sichuan University , Chengdu 610064 , China)

(Received 14 December 2006 ; revised manuscript received 8 March 2007)

Abstract

A new method for retrieving aerosol size distribution from measurement of aerosol optical depth is reported. Depending on the rigorous Mie scattering theory and the measured optical depth , dispersing the aerosol size distribution , by using linear-regression method , the aerosol size distribution can be calculated directly. And also the suitable wavelength band to retrieve the aerosol size distribution is obtained by analyzing the multi -collinearity.

Keywords : Mie scattering , aerosol optical depth , aerosol size distribution , linear-regression

PACC : 8670L

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 60078020 , 60478044).

[†] E-mail : zuohaoyi@sohu.com