



基于多轴差分吸收光谱技术测量青岛市大气水汽垂直柱浓度及垂直分布

任红梅 李昂 胡肇焜 黄业园 徐晋 谢品华 钟鸿雁 李晓梅

Measurement of atmospheric water vapor vertical column concentration and vertical distribution in Qingdao using multi-axis differential optical absorption spectroscopy

Ren Hong-Mei Li Ang Hu Zhao-Kun Huang Ye-Yuan Xu Jin Xie Pin-Hua Zhong Hong-Yan Li Xiao-Mei

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 69, 204204 (2020) DOI: 10.7498/aps.69.20200588

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200588>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

基于TDLAS技术的水汽低温吸收光谱参数测量

Measuring spectral parameters of water vapor at low temperature based on tunable diode laser absorption spectroscopy

物理学报. 2017, 66(20): 204204 <https://doi.org/10.7498/aps.66.204204>

基于高分辨率激光外差光谱反演大气CO₂柱浓度及系统测量误差评估方法

Atmospheric CO₂ column concentration retrieval based on high resolution laser heterodyne spectra and evaluation method of system measuring error

物理学报. 2020, 69(14): 144201 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200125>

机载腔增强吸收光谱系统应用于大气NO₂空间高时间分辨率测量

Airborne cavity enhanced absorption spectroscopy for high time resolution measurements of atmospheric NO₂

物理学报. 2017, 66(9): 090704 <https://doi.org/10.7498/aps.66.090704>

基于可调谐激光吸收光谱技术的二硫化碳中红外光谱参数测量

Measurement of middle infrared spectroscopic parameters of carbon disulfide based on tunable diode laser absorption spectroscopy

物理学报. 2019, 68(8): 084204 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20182140>

基于可调谐半导体激光器吸收光谱的高灵敏度甲烷浓度遥测技术

High sensitive scheme for methane remote sensor based on tunable diode laser absorption spectroscopy

物理学报. 2017, 66(10): 100702 <https://doi.org/10.7498/aps.66.100702>

深海大深度声场垂直相关特性

Vertical correlations of sound field at large depths in deep water

物理学报. 2019, 68(13): 134305 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190134>

基于多轴差分吸收光谱技术测量青岛市大气水汽垂直柱浓度及垂直分布*

任红梅¹⁾²⁾ 李昂^{1)†} 胡肇焜¹⁾ 黄业园¹⁾²⁾ 徐晋¹⁾
谢品华¹⁾²⁾³⁾ 钟鸿雁¹⁾⁴⁾ 李晓梅¹⁾²⁾

1) (中国科学院合肥物质科学研究院, 安徽光学精密机械研究所, 环境光学与技术重点实验室, 合肥 230031)

2) (中国科学技术大学, 合肥 230026)

3) (中国科学院区域大气环境研究卓越创新中心, 厦门 361021)

4) (安徽大学物质科学与信息技术研究院, 合肥 230601)

(2020年4月22日收到; 2020年6月15日收到修改稿)

本文研究了多轴差分吸收光谱技术 (MAX-DOAS) 在可见蓝光波段 (434.0—451.5 nm) 对大气水汽垂直柱浓度和垂直廓线的反演方法. 首先, 针对水汽吸收峰较窄且较密的问题, 采用和仪器狭缝函数卷积的方法获取适用于 MAX-DOAS 的水汽吸收参考截面, 并采用修正系数法校正了水汽饱和吸收效应在该波段对反演的影响. 其次, 研究了非线性最优估算法痕量气体廓线反演算法 (PriAM 算法) 中气溶胶状态和先验廓线的线型对水汽反演结果的影响. 结果表明, 气溶胶线型变化对水汽廓线反演结果的影响可忽略, 而高气溶胶状态会使反演结果差异变大, 但均在廓线反演总误差范围内, 这表明, PriAM 算法对水汽廓线反演仍具有适用性. 采用该方法在青岛市鳌山区域站开展连续观测实验, 并将观测的水汽垂直柱浓度结果和欧洲中期天气预报中心日均值数据对比, $R^2 = 0.93$; 将反演的水汽廓线近地面浓度与欧洲中期天气预报中心和怀俄明大学探空数据对比, R^2 分别大于 0.70 和 0.66, 结果表明了 PriAM 算法对大气水汽廓线反演的准确性较高. 最后, 分析了青岛市水汽垂直分布特征: 青岛市水汽主要分布在 1.5 km 以下.

关键词: 多轴差分吸收光谱技术, 大气水汽, 垂直柱浓度, 垂直廓线

PACS: 42.68.Ca, 92.60.Jq, 07.88.+y, 42.72.Bj

DOI: 10.7498/aps.69.20200588

1 引言

水汽是一种温室气体, 是大气中的重要成分之一, 也是大气中唯一能发生相变的成分, 是大气潜热径向运输的重要媒介^[1,2]. 水汽在对流层参与许多化学反应, 能同大气中的气溶胶、污染粒子等发生作用, 影响大气化学反应. 在各种空间和时间尺度上测量大气水汽含量对天气预报、气候研究、大

气化学以及地球辐射预算都至关重要^[1]. 对流边界层高精度、高时空分辨率的水汽浓度廓线持续观测数据对研究水循环、大气潜热通量廓线以及水汽垂直方向输送情况都具有重要意义^[3].

目前, 水汽测量主要分为探空、星载、机载和地基几种方式. 无线电探空气球是水汽测量的传统做法, 可以同时测量温度、气压、风速和风向等气象要素, 并且探测高度可达 30 km, 但是测量成本高且数据不连续. 星载测量包括 SCIAMACHY

* 国家重点研发计划 (批准号: 2018YFC0213201)、国家自然科学基金 (批准号: 41775029) 和上海市科委科技项目 (批准号: 17DZ1203102) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: angli@aiofm.ac.cn

(scanning imaging absorption spectrometer for atmospheric chartography), GOME (global ozone monitoring experiment), AMSU (advanced microwave sounding unit) 和 S-5P/TROPOMI (sentinel-5 precursor/tropospheric monitoring instrument) 等^[4-8], 它们可以在红外波段和可见蓝光波段对水汽进行测量反演, 相比于地基观测, 它的时间和空间分辨率较低, 但可大范围全球观测, 为大区域分析水汽输送及演变等问题提供了方法. 机载包括差分雷达和机载腔衰荡技术, 它们都具有高时间分辨率, 并已获得水汽混合比垂直廓线^[9]. 地基主要有 GPS 观测、微波辐射计以及太阳光度计 (CE318), 它们都具有时空分辨率高、成本低、可连续观测的特点, 应用范围较广.

多轴差分吸收光谱技术 (multi-axis differential optical absorption spectroscopy, MAX-DOAS) 是一种被广泛使用的测量地球大气中痕量气体的方法^[10]. 它可对大气中 NO_2 , SO_2 , HONO, 气溶胶, HCHO 等多个气体同时在线测量^[11-15], 同时结合大气辐射传输模型, 可反演出对流层痕量气体的柱浓度和廓线信息. 由于其独特的优越性, MAX-DOAS 技术逐渐成为反演大气水汽浓度的一种新方法. 2011 年, Irie 等^[15] 用 MAX-DOAS 系统在 495—515 nm 波段对大气水汽进行测量, 并和地面数据集对比, 相关性大于 0.75. 2013 年 Wagner 等^[1] 利用地基 MAX-DOAS 系统在 543—620 nm 和 608—680 nm 波段对水汽垂直柱浓度进行反演, 并和地基气溶胶遥感观测网 (aerosol robotic network, AERONET) 以及欧洲气象中心数据进行对比, 结果有良好的一致性. 2013 年, 刘进等^[2] 利用地基 MAX-DOAS 系统在 560—610 nm 波段对水汽垂直柱浓度进行了测量, 且与 CE318 数据对比趋势一致. Lampel 等^[16,17] 利用 MAX-DOAS 系统验证了在可见蓝光和紫外波段均存在水汽吸收. 利用 MAX-DOAS 对水汽的测量近些年不断被研究, 但在国内此方面研究相对较少, 特别是在紫外和可见蓝光波段更是鲜有研究. 近日, Borger 等^[8] 和 Chan 等^[6] 分别在 S-5P/TROPOMI 和 GOME-2 的蓝光波段反演了水汽垂直柱浓度, 这对利用 MAX-DOAS 在吸收比较弱的可见蓝光波段反演水汽垂直柱浓度和垂直廓线提供了思路. 在可见蓝光波段反演水汽不仅可以同时测量气溶胶, NO_2 , HONO 和 CHOCHO 等气体的柱浓度和廓线, 也

对测量 HONO 和 CHOCHO 时水汽的扣除提供了方法.

针对基于 MAX-DOAS 可见蓝光波段的水汽垂直柱浓度和垂直廓线的反演问题, 选取青岛市 MAX-DOAS 鳌山区域站 2019 年 3 月 4 日—31 日数据作为研究案例. 本文第一步研究基于与仪器狭缝函数卷积的方法获取适用于 MAX-DOAS 的反演参考截面, 并采用修正系数法进行饱和和吸收校正, 从而正确获取水汽垂直柱浓度. 第二步研究分析了采用基于最优估算法 (optimal estimation method, OEM) 的 PriAM 算法反演水汽垂直廓线的可行性. 利用 MAX-DOAS 在可见蓝光波段探测水汽垂直分布信息, 对研究水汽通量廓线以及重霾期间水汽和气溶胶的关系都具有重要意义.

2 测量原理

2.1 MAX-DOAS 技术

MAX-DOAS 技术以被动 DOAS 为基础, 在天顶观测的基础上增加多个仰角 α (望远镜观测方向和水平方向的夹角) 接收太阳散射光, 从而获取大气中污染气体的空间分布^[18]. 依据的理论基础是朗伯-比尔 (Lambert-Beer) 定律^[10]

$$I(\lambda) = I_0(\lambda) \cdot \exp[-\sigma(\lambda) \cdot c \cdot L], \quad (1)$$

其中 $I(\lambda)$ 表示经过光路衰减后的接收光, $I_0(\lambda)$ 表示入射光强, $\sigma(\lambda)$ 为痕量气体的吸收截面, c 表示分子浓度, L 表示光程.

大气消光过程是散射和多种痕量气体的吸收共同导致的^[19]. 痕量气体 j 的光谱吸收结构可分为随波长的快变化和随波长的慢变化, 通过高通滤波滤除光学厚度 (optical density, OD) 谱中的慢变化和散射等宽带结构特征, 获取 OD, 再与标准气体分子吸收截面进行最小二乘拟合, 即可获得气体的斜柱浓度 SCD_j (slant column density, SCD). 表示为

$$\ln \frac{I_0(\lambda)}{I(\lambda)} = \sum_{j=1}^n \sigma'_j(\lambda) \cdot \text{SCD}_j - P, \quad (2)$$

其中 $\ln \frac{I_0(\lambda)}{I(\lambda)}$ 为 OD, $\sigma'_j(\lambda)$ 代表分子的窄带吸收, P 为低阶多项式, 包含瑞利散射、米氏散射、仪器响应以及分子宽带吸收所引起的宽带光谱结构^[10].

通过选取一条“干净”的太阳散射光谱作为夫琅禾费参考光谱 (Fraunhofer reference spectrum, FRS) 进而扣除强烈的夫琅禾费线的干扰^[20], 通常选取接近正午较小太阳天顶角下仰角 $\alpha = 90^\circ$ 时的光谱作为参考光谱, 即可获得各个仰角 α 下的痕量气体差分斜柱浓度 (differential slant column densities, dSCD),

$$\text{dSCD} = \text{SCD}_\alpha - \text{SCD}_{\text{ref}}, \quad (3)$$

90° 仰角方向的 dSCD 里含有平流层浓度的信息, 将每个测量循环中离轴方向的 dSCD 减去 90° 方向的 dSCD 即可扣除平流层痕量气体吸收, 计算公式为

$$\Delta\text{SCD} = \text{dSCD}_{\alpha \neq 90^\circ} - \text{dSCD}_{\alpha = 90^\circ}. \quad (4)$$

斜柱浓度 SCD 强烈依赖于观测的地理条件和气象条件, 通常需要转换为垂直柱浓度 (vertical column density, VCD), 即垂直穿过大气层的积分浓度^[18]. 计算公式为

$$\text{VCD} = \frac{\text{dSCD}_{\alpha \neq 90^\circ} - \text{dSCD}_{\alpha = 90^\circ}}{\text{AMF}_{\alpha \neq 90^\circ} - \text{AMF}_{\alpha = 90^\circ}} = \frac{\Delta\text{SCD}}{\Delta\text{AMF}}. \quad (5)$$

大气质量因子 (air mass factors, AMF) 依赖于太阳位置、观测角度、气溶胶特性分布以及痕量气体分布, 常使用大气辐射传输模型 (RTM) 来计算. 本文利用 SCAITRAN 2.2 计算出 20° 和 90° 仰角的 AMF 得到 ΔAMF , 再结合 20° 的 ΔSCD 计算出水汽的 VCD.

2.2 垂直廓线反演算法

本文采用的廓线反演算法为安徽光学精密机械研究所 (AIOFM) 和马普化学所 (MPIC) 共同研发的 PriAM 算法^[11–14,21–23], 该算法的核心是基于最优估算法求解迭代方程的非线性反演问题, 反演的目的是最小化价值函数, 价值函数表达式为

$$\chi^2(\mathbf{x}) = \sum_{m=0}^M \left(\frac{\mathbf{F}_m(\mathbf{x}) - \mathbf{y}_m}{\sigma_{\varepsilon,m}} \right)^2 + \sum_{n=0}^N \left(\frac{\mathbf{x}_n - \mathbf{x}_{a,n}}{\sigma_{a,n}} \right)^2, \quad (6)$$

其中 \mathbf{x} 是反演得到的状态向量, 有 N 个元素, 表示某一物理量的廓线, \mathbf{y} 是测量向量, 有 M 个元素. F 代表前向模型函数, \mathbf{x}_a 是先验状态向量, $\sigma_{\varepsilon,m}$ 和 $\sigma_{a,n}$ 分别表示测量误差和先验误差.

通过 Gauss-Newton 方法多次迭代并采用 Levenberg-Marquardt 算法对迭代进行修正, 最后逐渐获得最优化解, 迭代过程表示为

$$\begin{aligned} \mathbf{x}_{i+1} = & \mathbf{x}_i + [\mathbf{K}_i^T \mathbf{S}_\varepsilon^{-1} \mathbf{K}_i + (1 + \gamma_i) \mathbf{S}_a^{-1}]^{-1} \\ & \times \{ \mathbf{K}_i^T \mathbf{S}_\varepsilon^{-1} [\mathbf{y} - F(\mathbf{x}_i)] - \mathbf{S}_a^{-1} [\mathbf{x}_i - \mathbf{x}_a] \}, \end{aligned} \quad (7)$$

其中 \mathbf{x}_{i+1} 和 \mathbf{x}_i 分别是当前和先前的状态向量. \mathbf{S}_ε 是测量误差协方差矩阵 ($M \times M$), \mathbf{K}_i 为权重函数矩阵. γ_i 是一个修正系数, 用于改变状态量向价值函数接近的速率, \mathbf{S}_a 是先验误差协方差矩阵 ($N \times N$). 非线性最优估算法反演气体廓线首先要输入一条起始先验廓线作为 \mathbf{x}_i , 再由 (7) 式迭代计算 \mathbf{x}_{i+1} , 如果满足 (8) 式, 则迭代就要停止, 如果不满足 (8) 式, 则将 \mathbf{x}_{i+1} 作为 \mathbf{x}_i 代入 (7) 式继续迭代, 直至满足 (8) 式, 迭代停止.

$$[\mathbf{F}(\mathbf{x}_{i+1}) - \mathbf{F}(\mathbf{x}_i)]^T \mathbf{S}_{\sigma_y}^{-1} [\mathbf{F}(\mathbf{x}_{i+1}) - \mathbf{F}(\mathbf{x}_i)] < M, \quad (8)$$

其中 M 指仰角个数, 式中协方差矩阵表示为

$$\mathbf{S}_{\sigma_y} = \mathbf{S}_\varepsilon (\mathbf{K} \mathbf{S}_a \mathbf{K}^T + \mathbf{S}_\varepsilon)^{-1} \mathbf{S}_\varepsilon. \quad (9)$$

迭代反演误差主要由三部分组成: 平滑误差 (S_s)、测量误差 (S_m) 和剩余误差 (S_r), 总误差 (S_t) 是三种误差的均方根^[11,12].

由于气溶胶状态影响光在大气中的传输路径, 进而会影响由 ΔSCD 获取痕量气体垂直分布的反演. 因此, 需将反演过程分为两步: 首先, 基于最优估算法反演出气溶胶消光系数垂直廓线和气溶胶光学厚度 (aerosol optical depth, AOD), 再由气溶胶消光系数廓线反演痕量气体廓线^[13,14]. 由于在晴朗无云的天气下, 当太阳位置和观测方向确定时, 气溶胶消光系数廓线的变化是影响光在大气中传输路径的主要因素, 而多轴 DOAS 测量 O_4 的 ΔSCD 的大小主要是光的传输路径, 并且多轴 DOAS 多个仰角的测量对于不同高度的大气有不同的灵敏度, 所以可以通过多仰角 O_4 的 ΔSCD 反演气溶胶的垂直分布. 具体反演流程如图 1 所示.

3 实验装置

实验装置主要包括光谱仪、旋转云台、望远镜、光纤、计算机, 监控摄像头等. 旋转云台、望远镜和监控摄像头放置在室外, 其余均放置在室内, 通过软件控制旋转云台转动, 可控制仰角范围 $0^\circ - 90^\circ$, 方位角范围 $0^\circ - 360^\circ$. 太阳光通过安装在室外的望远镜聚焦, 经过光纤进入光谱仪, 再通过 USB 接口将数据存储到电脑. 采用荷兰 Avantes 光谱仪并将其置于 25°C 温控箱中. 光谱测量范围

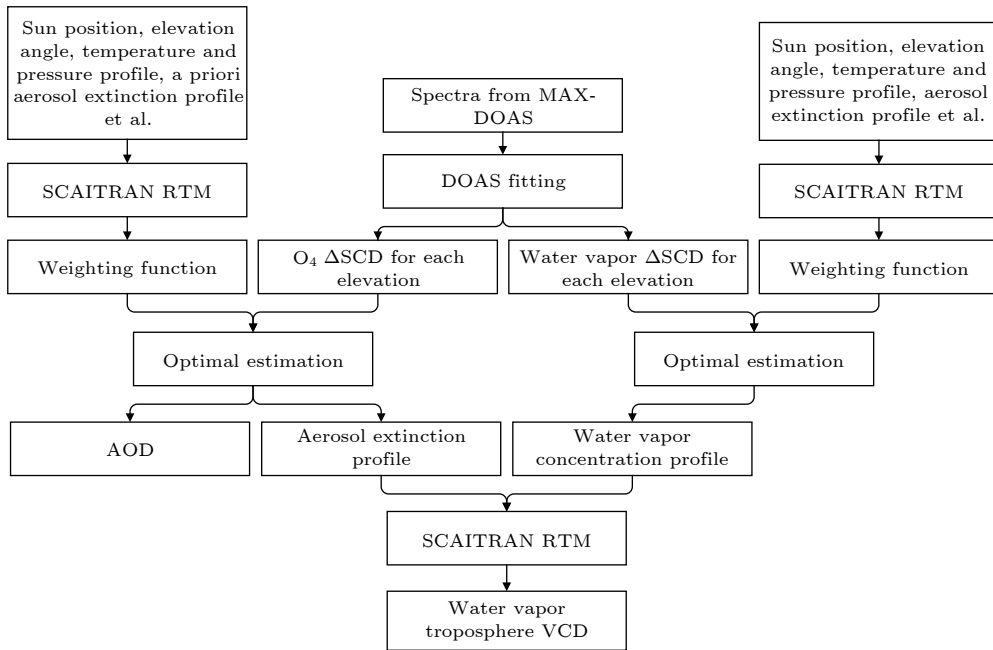


图 1 PriAM 算法反演气溶胶及水汽流程图

Fig. 1. Flow chart of aerosol and water vapor retrieval by PriAM algorithm.

表 1 MAX-DOAS 参数设置

Table 1. Parameter settings of MAX-DOAS.

Spectrometer name	Avantes	Longitude	120.67° E
Spectral range/nm	285–453	Latitude	36.35° N
FWHM/nm	0.6	Measuring time	4:00–22:00 LT
Temperature control/°C	25	Azimuth	0°
City	Qingdao	Elevation	1°, 2°, 3°, 4°, 5°, 6°, 8°, 10°, 20°, 30°, 90°

为 285–453 nm, 光谱分辨率为 0.6 nm. 本研究 MAX-DOAS 鳌山区域站安装在青岛市即墨区国基外语学校 (120.67° E, 36.35° N), 紧靠青岛市即墨区环境监测站, 海拔高度为 30 m, 偏离市区, 靠近海岸, 因此可避免人为排放的高浓度 NO₂ 对水汽吸收的影响. 监控摄像头的作用是可以远程观看当天天气情况, 摄像头装在望远镜的下方, 和望远镜光轴水平, 图 2 为摄像头采集的 2019 年 3 月 22 日仰角为 1° 时的视场图. 电脑控制采集软件每天早晨 4:00 自启, 开始采集光谱, 夜晚 22:00 自动关闭. 由于光强需求, 只使用白天的测量数据, 夜晚 22:00 附近低仰角光谱可用于校正暗电流. 整个观测期间只采用望远镜方位角为 0° (正北方向) 的光谱, 一次完整的扫描循环包含 1°, 2°, 3°, 4°, 5°, 6°, 8°, 10°, 20°, 30°, 90° 共 11 个仰角. 光谱采集的平均次数为 100 次, 积分时间根据光强自动调整, 表 1 为 MAX-DOAS 仪器的具体设置参数, 图 3 为 MAX-DOAS 观测原理图.



图 2 MAX-DOAS 望远镜观测视场图

Fig. 2. MAX-DOAS telescope observation field diagram.

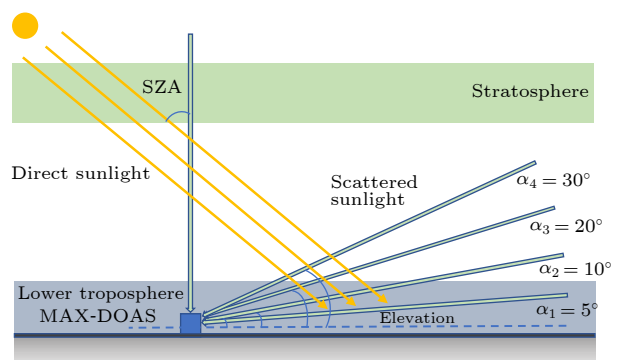


图 3 MAX-DOAS 观测原理图

Fig. 3. Schematic diagram of MAX-DOAS observation.

4 实验结果与分析

4.1 水汽垂直柱浓度的反演

4.1.1 水汽吸收截面的选取

蓝色光谱区域的实验室水汽吸收线数据库包括 HITRAN 2009^[24], HITRAN 2012^[25], HITEMP 2010^[26] 和 POKAZATEL^[27]. 由于水汽吸收光谱中吸收峰较窄且峰与峰排列紧密, 首先要用汞灯对光谱仪进行定标, 获取仪器狭缝函数 (slit function), 再将其与实验室数据库里的水汽高分辨率吸收光谱 (这里只考虑了多普勒线展宽效应) 进行卷积, 从而获取用于 DOAS 反演的水汽有效吸收参考截面, 表达式为

$$\sigma(\lambda) = \sigma(\lambda)_h \otimes H, \quad (10)$$

其中 $\sigma(\lambda)_h$ 为水汽高分辨率吸收截面, H 为仪器狭缝函数.

图 4 示意了以 HITEMP 2010 为例的卷积过程. 为研究 4 种数据库下水汽吸收截面在 434.0—451.5 nm 波段反演水汽的差异, 取相同温压条件下 ($P = 1013 \text{ hPa}$, $T = 293 \text{ K}$) 的水汽吸收截面并与仪器狭缝函数卷积, 见图 5(a). 选取一天的光谱数据 (2019 年 3 月 9 日), 将卷积后的 4 种水汽吸收参考截面和光谱数据进行 DOAS 拟合, 由于以 20° 仰角计算水汽 VCD, 因此取 20° 仰角作为示例, 拟合残差见图 5(b), 即均方根误差 (root mean square, RMS). 图 5 表明, 4 种数据库反演的水汽 RMS 之间差异很小, 不同数据库下水汽有效吸收参考截面对水汽的反演没有显著影响, 具有一致性. 本文使用 HITEMP 2010 数据库下水汽有效吸收参考截面.

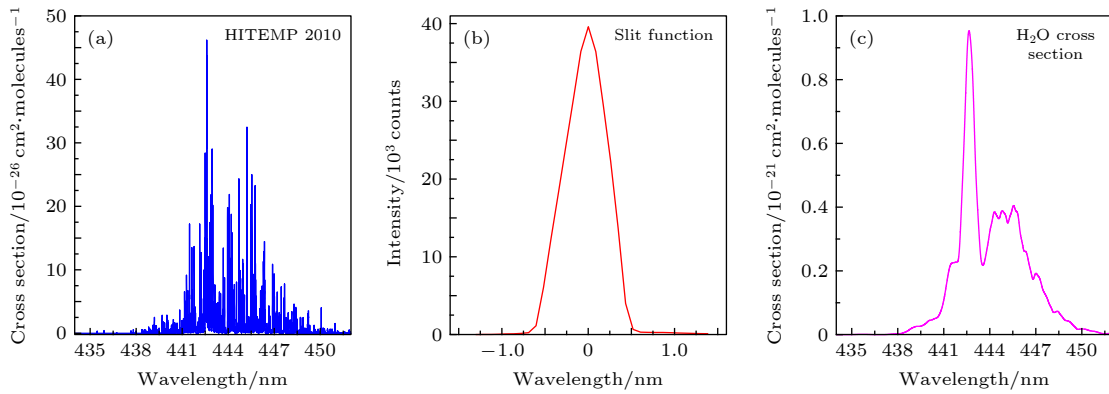


图 4 水汽有效吸收参考截面获取过程 (a) HITEMP 2010 水汽高分辨率吸收光谱; (b) 狭缝函数; (c) 水汽有效吸收参考截面

Fig. 4. Obtaining process of reference cross section for effective absorption of water vapor: (a) HITEMP 2010 high-resolution water vapor absorption spectrum; (b) slit function; (c) reference cross section for effective absorption of water vapor.

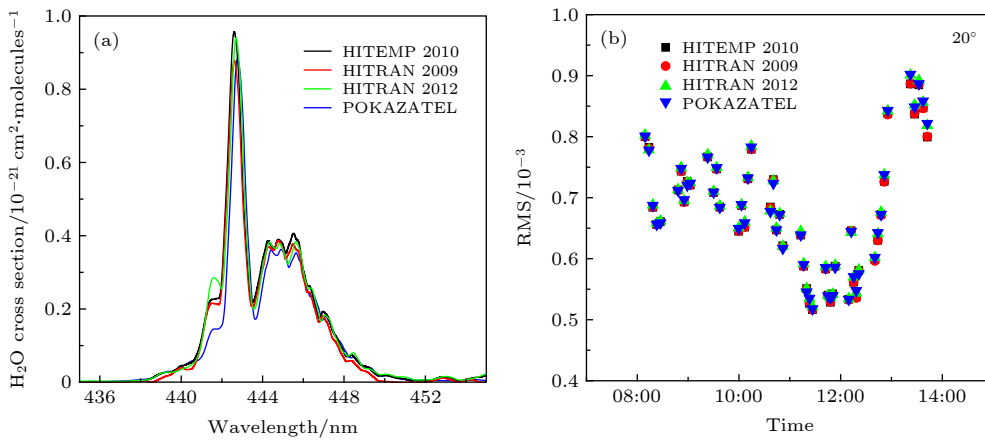


图 5 不同数据库下水汽有效吸收截面对比 (a) 4 种数据库下水汽有效吸收参考截面; (b) 20° 仰角下 DOAS 拟合残差对比

Fig. 5. Comparison of effective water vapor absorption cross sections under different databases: (a) Reference cross sections of effective water vapor absorption under four databases; (b) comparison of DOAS fitted residuals at 20° elevation.

4.1.2 饱和吸收效应

对于 DOAS 方法测量水汽, 当水汽浓度偏高时会出现饱和吸收效应, 从而产生较大的测量误差 [28]. 饱和效应的产生源于水汽高分辨率吸收截面和仪器函数卷积, 而不是朗伯比尔定律中的指数函数卷积 [29]. 对于给定的斜柱浓度 SCD, 饱和效应可以通过修正系数法进行修正, 表达式为

$$\sigma(\lambda)_{\text{sat}} = -\frac{1}{\text{SCD}} \ln \{ \exp[-\text{SCD} \cdot \sigma(\lambda)_h] \otimes H \}, \quad (11)$$

其中 $\sigma(\lambda)_{\text{sat}}$ 为饱和吸收截面, 取 7 个水汽 SCD 浓度梯度, 范围为 2×10^{23} molecules/cm² 到 1×10^{24} molecules/cm². 饱和吸收前后的 OD 见图 6(a), 图中表明当 SCD 小于 6×10^{23} molecules/cm² 时, OD 和 OD_{sat} 的差异很小 (OD_{sat} 为饱和吸收后的光学厚度). 图 6(b) 是最大吸收峰 442.6 nm 处的 OD 差异, 可以发现, 饱和效应对光学厚度 OD 的影响随着浓度的增大而增大. 当 SCD 为 4×10^{23} molecules/cm², 饱和吸收影响会使 OD 降低 1.76%, SCD 为 6×10^{23} molecules/cm², 饱和吸收

影响会使 OD 降低 2.61%. 本研究中, DOAS 拟合结果 SCD 均小于 4×10^{23} molecules/cm², 因此饱和和吸收效应对本文反演结果的影响较小.

另外, 因为水汽吸收大部分发生在边界层内, 在大气测量范围内的温度和压强的变化对蓝色波长区域的水汽测量没有显著的影响 [16], 所以可排除温度和压强对本文反演结果的显著影响.

4.1.3 光谱反演

将 MAX-DOAS 获得的原始光谱进行 DOAS 拟合, 选择当天中午 12:00 附近仰角为 90° 的光谱作为 FRS, 拟合波段为 434.0—451.5 nm, 为保证数据质量, 只保留 RMS 小于 10^{-3} 的数据. 气体参考截面包括 H₂O, NO₂, O₃ 和 O₄, 这里各选取了两条不同温压条件下的 NO₂ 和 O₃ 截面, 其他截面还包括两条 ring 光谱 [30]. 表 2 列出了用于水汽反演的参数设置. 图 7 为 2019 年 3 月 9 日 11:44 时的 DOAS 拟合反演示例, 反演得到的水汽差分斜柱浓度 dSCD 为 1.73×10^{23} molecules/cm², RMS 为 7.01×10^{-4} .

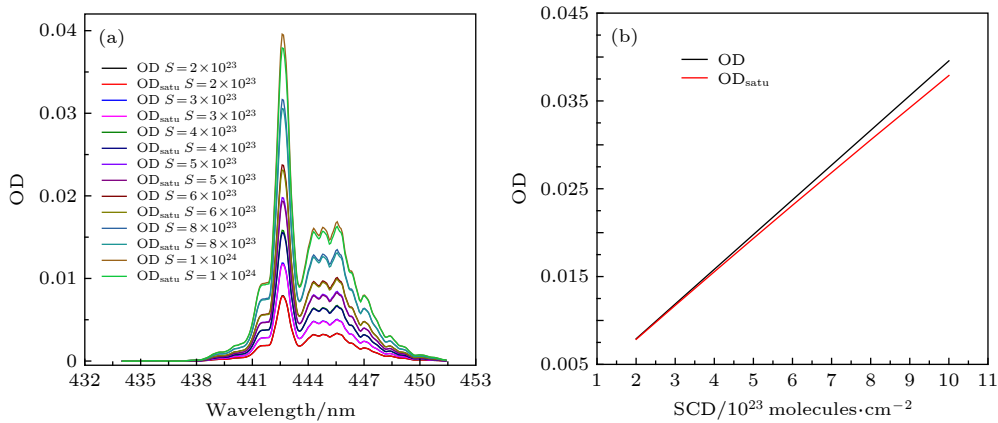


图 6 在蓝光波段水汽饱和吸收对 OD 的影响 (a) 不同 SCD 下的 OD 差别; (b) 最大吸收峰 442.6 nm 处 OD 饱和校正前后的差别
Fig. 6. The effect of water vapor saturation absorption on the OD in the blue band: (a) OD difference under different SCD; (b) the difference before and after OD saturation correction at the maximum absorption peak at 442.6 nm.

表 2 DOAS 拟合参数设置
Table 2. Parameter settings of DOAS fitting.

Parameter	Source	Fitting spectral range 434.0—451.5 nm
NO ₂	298 K, 220 K ^[31]	—
O ₃	223 K, 293 K ^[32]	—
O ₄	293 K ^[33]	—
H ₂ O	296 K ^[26]	—
Ring	Ring spectrum calculated from DOASIS ^[34] and additional ring multiplied by λ^{-4} ^[30]	—
Polynomial degree	—	5

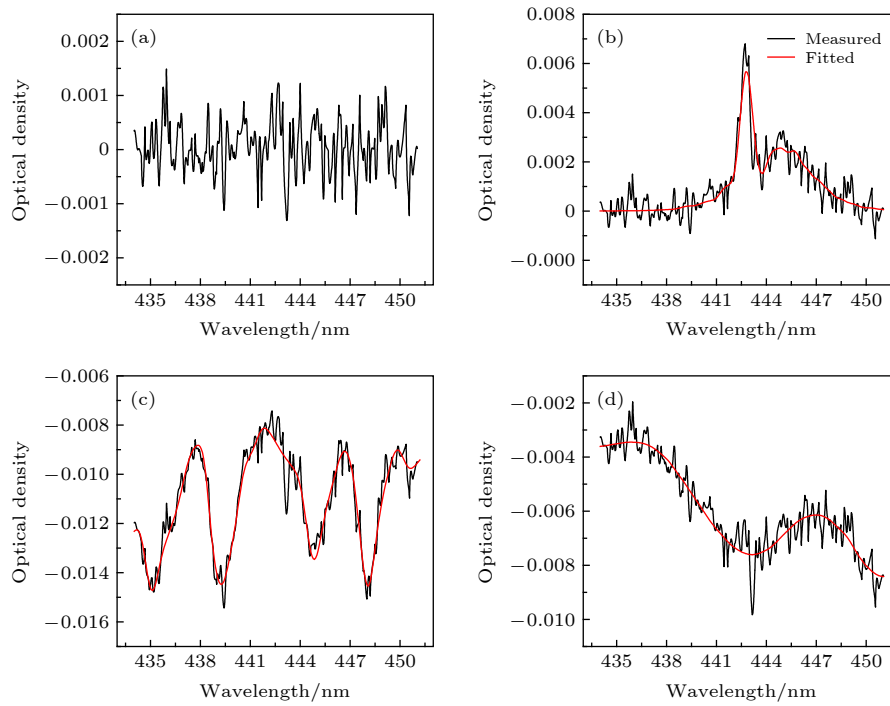


图 7 DOAS 拟合反演示例 (a) Residual; (b) H₂O; (c) NO₂; (d) O₃
 Fig. 7. DOAS fitting retrieval example: (a) Residual; (b) H₂O; (c) NO₂; (d) O₃.

4.1.4 水汽垂直柱浓度对比验证

欧洲中期天气预报中心 (European centre for medium-range weather forecasts, ECMWF) 是包括概率预报在内的数值天气预报研究的前沿机构. CAMS(Copernicus atmosphere monitoring service) 全球预报服务是利用欧洲中期天气预报中心的综合预报系统 (integrated forecasting system, IFS), 把卫星和地面系统获得的观测数据与以往的预报结合起来, 做出新的分析和预报. CAMS 模型每天为全球地区生成实时的大气成分分析和预测. 它的网格分辨率有 $0.125^\circ \times 0.125^\circ$, $0.25^\circ \times 0.25^\circ$ 和最

小分辨率 $3^\circ \times 3^\circ$ 等 11 种. 本文取网格最大分辨率 $0.125^\circ \times 0.125^\circ$, 步长为 3 h, 分别为 08:00 LT (00.00 UTC), 11:00 LT(03.00 UTC), 14:00 LT (06.00 UTC) 和 17:00 LT(09.00 UTC) 4 个时间点水汽总 VCD 数据. MAX-DOAS 数据从 2019 年 3 月 4 日—31 日共有 28 d 数据, 根据站点监控摄像头每天图像判断天气情况, 其中阴雨天气为 5 d, 由于 DOAS 反演受阴雨天气光强的限制, 扣除阴雨天气共获取有效数据 23 d.

将 MAX-DOAS 测量的水汽 VCD 和 ECMWF CAMS(<https://apps.ecmwf.int/datasets/data/cams-nrealtime/levtype=sfc/>) 日均值数据进行对比

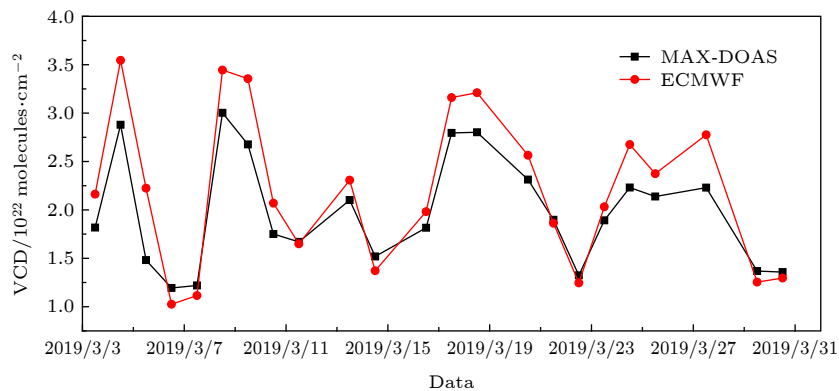


图 8 MAX-DOAS 测量数据和 ECMWF 数据日均值对比
 Fig. 8. Comparison of MAX-DOAS measurement data and ECMWF data daily average.

分析,发现两者具有相同的变化趋势,如图8所示.然后,把MAX-DOAS数据与ECMWF数据进行相关性分析, $R^2 = 0.93$,如图9所示,表明MAX-DOAS技术在可见蓝光波段(434.0—451.5 nm)对水汽垂直柱浓度反演结果的准确性.研究表明ECMWF再分析数据会高估水汽的柱浓度^[35],从图8来看,发现ECMWF再分析数据大于MAX-DOAS测量的水汽柱浓度,这也与前人研究相符合.

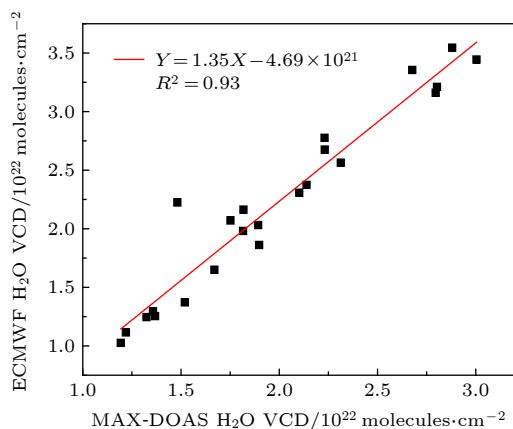


图9 MAX-DOAS数据与ECMWF数据相关性分析

Fig. 9. Correlation analysis of MAX-DOAS data and ECMWF data.

4.2 水汽垂直廓线的反演

PriAM算法已经可以对气溶胶, NO_2 , SO_2 , HCHO等痕量气体进行准确反演^[11–14,21,22],但对于在边界层浓度高、变化大的水汽,此算法是否还能正常准确反演,需进一步验证.为此,本文开展PriAM算法反演大气水汽的适用性研究.

在PriAM算法中,气溶胶和痕量气体的先验廓线采用固定的线型,一般采用指数型和玻耳兹曼型(代表本地积累)先验廓线.本文气溶胶单次散射反照率和非对称因子根据当地数据设置为0.92和0.68,非线性最优估算法中最大迭代次数设置为20,(8)式中迭代阈值 M 的大小为仰角个数,设置为11.

4.2.1 气溶胶状态及线型对水汽廓线反演结果影响分析

由于气溶胶影响光的传输路径,在PriAM两步反演算法中气溶胶状态会对水汽反演结果造成影响,不同气溶胶先验廓线的形状和大小也会对反演结果造成影响.为了量化这些影响,我们从即墨区环境监测站(120.47° E, 36.38° N, 海拔高度

22 m)近地面数据库中选取监测期间污染最为严重一天(3月6日, $\text{PM}_{2.5} = 109 \mu\text{g}/\text{m}^3$)和污染最轻一天(3月22日, $\text{PM}_{2.5} = 16 \mu\text{g}/\text{m}^3$)的数据,分别定义为高气溶胶状态和低气溶胶状态,进行对比研究.在标准指数型气溶胶先验廓线BP(baseline priori, 本文反演水汽所用的气溶胶先验廓线)的基础上改变先验廓线的大小和形状(指数型和玻耳兹曼型),增加4条气溶胶先验廓线TP1, TP2, TP3, TP4(test priori 1, test prior 2, test prior 3, test prior 4)进行测试,研究了其对水汽廓线反演结果的影响,整个过程水汽先验廓线均用标准指数型. H_m 为灵敏度高度上限,0— H_m 即为多轴DOAS反演气体的灵敏度范围^[11–13].平均核是一个矩阵,用来表征反演对于不同高度大气状态的敏感度,将每层平均核的最大值连接起来便形成平均核的包络线,代表了敏感度随高度的变化. d_s 为自由度,它的值由平均核对角线上的值相加,用来表征反演的高度分辨率.两种气溶胶状态下反演的垂直廓线结果、廓线反演总误差 S_t , H_m , d_s 和平均核的包络线如图10所示.图10表明,两种气溶胶状态下4种TP与BP反演水汽结果的最大差异都在最低层50 m,3月22日低气溶胶状态下BP在50 m廓线反演总误差 S_t 为0.45 g/kg,4种TP与BP反演结果差异值分别为0.011, 0.017, -0.007和0.011 g/kg;3月6日高气溶胶状态下BP在50 m廓线反演总误差 S_t 为0.53 g/kg,4种TP与BP反演结果差异值分别为-0.28, 0.11, -0.50和-0.44 g/kg,受高气溶胶状态影响,反演结果差异比低气溶胶状态大,但均在BP的反演总误差 S_t 范围内,表明不同气溶胶状态下反演算法都能很好地重建水汽廓线.从 H_m , d_s 以及平均核的包络线来看,几种不同气溶胶先验廓线反演结果都比较接近,可见气溶胶廓线类型对水汽垂直廓线反演结果影响较小.通过图10还可以发现,气溶胶状态影响水汽廓线的 H_m 和 d_s ,3月6日高气溶胶状态下的 H_m 和 d_s 均小于3月22日低气溶胶状态下的 H_m 和 d_s ,表明水汽廓线的 H_m 和 d_s 将随着气溶胶消光的增加而降低,这是因为在高气溶胶条件下光子在空中多次散射影响光的传输路径,从而会降低廓线的灵敏度高度和自由度.

综上所述,气溶胶先验廓线的形状和大小对水汽廓线反演结果的影响较小,可忽略;由于高气溶胶状态明显影响光在大气中的传输路径,因此更易

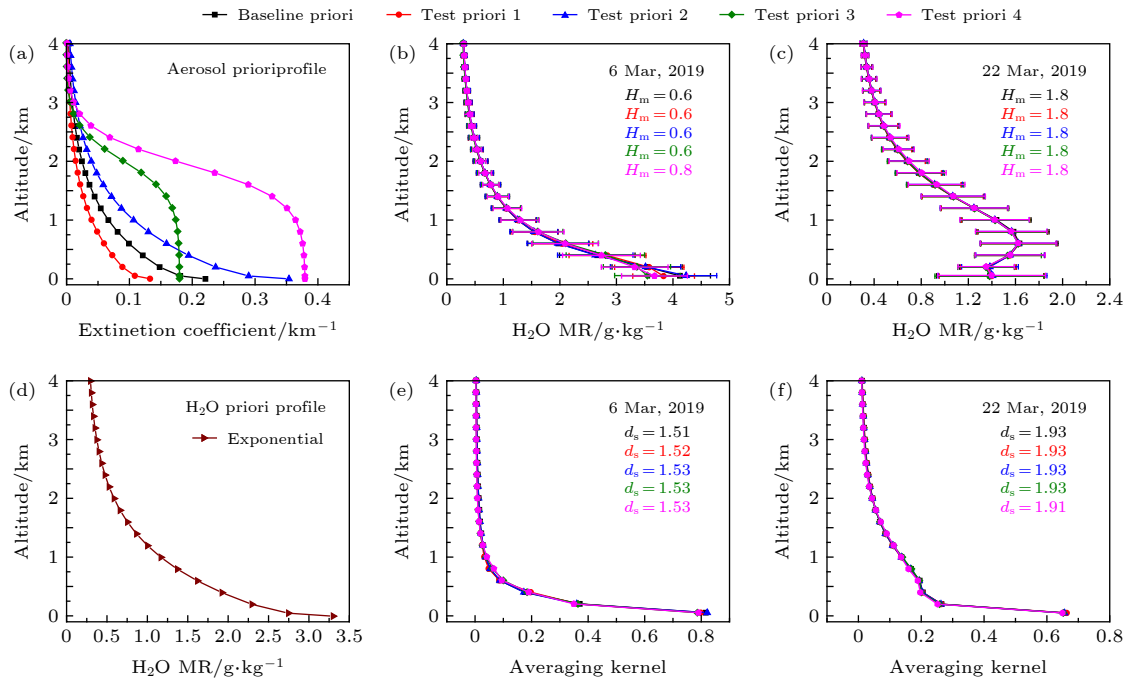


图 10 气溶胶状态及线型对水汽廓线反演结果的影响 (a) 5 种气溶胶先验廓线; (b) 3 月 6 日 5 种气溶胶先验廓线下反演水汽结果及误差; (c) 3 月 22 日 5 种气溶胶先验廓线下反演水汽结果及误差; (d) 指数型水汽先验廓线; (e) 3 月 6 日平均核的包络线; (f) 3 月 22 日平均核的包络线

Fig. 10. Effects of aerosol state and line type on the retrieval results of water vapor profile: (a) Five aerosol prior profiles; (b) the results and errors of water vapor retrieval under the five aerosol prior profiles on March 6; (c) the results and errors of water vapor retrieval under the five aerosol prior profiles on March 22; (d) the exponential water vapor prior profile; (e) the envelope of the average kernel on March 6; (f) the envelope of the average kernel on March 22.

影响水汽廓线反演结果, 主要表现为不同线型反演水汽结果差异增大以及 H_m 和 d_s 的减小. 这些结果均与 NO_2 等痕量气体类似^[11–13], 表明了 PriAM 算法对水汽的适用性.

4.2.2 水汽垂直分布廓线对比验证

将 MAX-DOAS 反演的水汽垂直分布廓线与 ECMWF 再分析数据 ERA-Interim(<https://apps.ecmwf.int/datasets/data/interim-full-daily/levtype=sfc/>) 和怀俄明大学全球探空站共享数据(<http://weather.uwyo.edu/upperair/sounding.html>) 进行对比, 图 11 是三种数据廓线的对比示例. ERA-Interim 是一个气候再分析数据集, 是将观测结果与先前的预报进行混合或同化, 以获得两者的最佳拟合, 最大分辨率为 $0.125^\circ \times 0.125^\circ$, 步长为 6 h. 探空站 (120.33° E , 36.06° N , 海拔高度 14 m) 在青岛市市南区, 距离 MAX-DOAS 鳌山站点 44 km, 每天两条数据分别为 08:00 LT (00.00 UTC) 和 20:00 LT (12.00 UTC). 由于光强要求, ECMWF 和探空廓线均选取 08:00 LT 作为与 MAX-DOAS 对比廓线, 取 MAX-DOAS 反

演的 07:30—08:30 的水汽混合比 (mixing ratio, MR) 廓线数据的均值代表 MAX-DOAS 08:00 时刻垂直分布廓线. 将 2019 年 3 月 4 日—31 日青岛鳌山 MAX-DOAS 的近地面 50, 200, 400, 600 m 廓线数据与 ECMWF 和探空的近地面廓线数据对比, 由于 ECMWF、探空数据与 MAX-DOAS 廓线数据的高度格子不同, 取高度接近的数据做比较, 结果如图 12 所示. 图 12 表明, MAX-DOAS 在 50, 200, 400 和 600 m 与 ECMWF 在 35, 196, 405 和 570 m 的水汽 MR 相关性分析结果 R^2 分别为 0.70, 0.83, 0.88, 0.88; MAX-DOAS 在 50 和 600 m 与探空数据在 77 和 610 m 的水汽 MR 相关性分析结果 R^2 分别为 0.66 和 0.81. 结果表明, MAX-DOAS 的 50 m 与探空数据的 77 m 差异最大, R^2 为 0.66. 这可能由于近地面水汽混合比变化较大, 由于高度相差 27 m 使得两者数据有较大差异, 也有可能是探空站点与 MAX-DOAS 站点的距离差异导致, 还需进一步对比分析. 综上分析, 可以发现基于 MAX-DOAS 技术反演水汽垂直分布具有良好的可行性及较高的准确性.

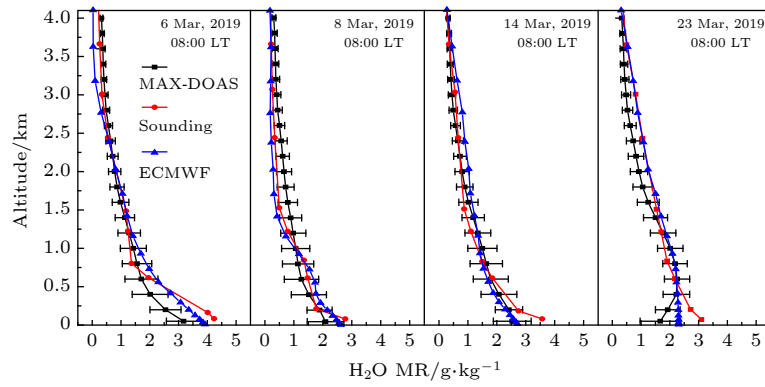


图 11 MAX-DOAS 数据与 ECMWF 及探空数据对比

Fig. 11. MAX-DOAS data compared with ECMWF and sounding data.

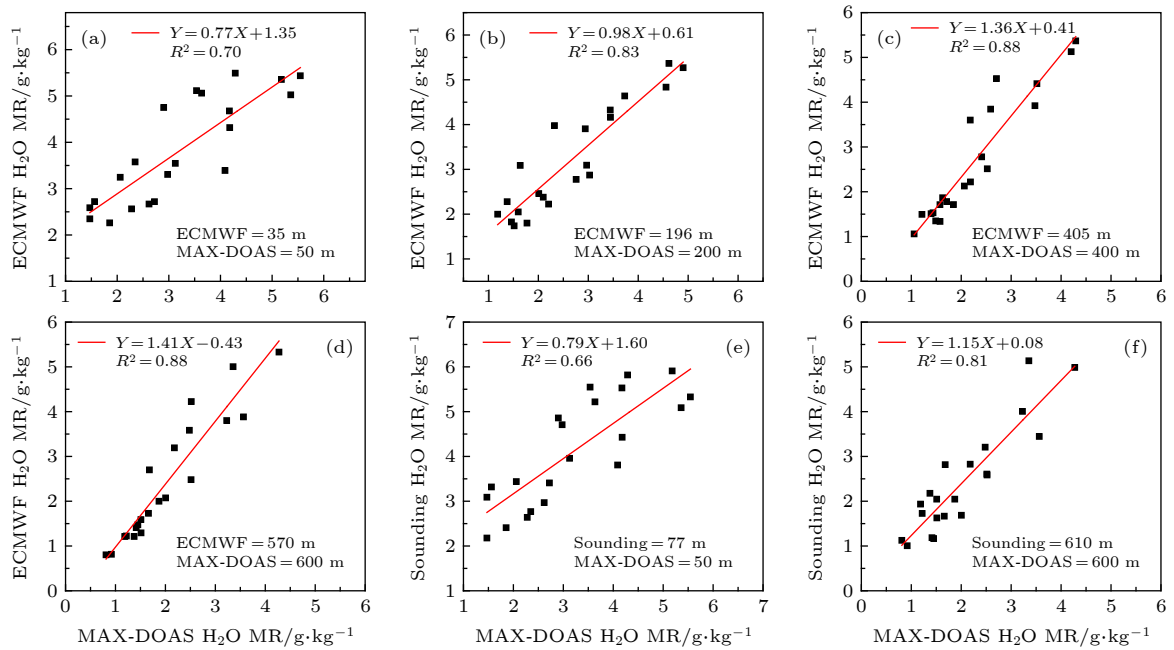


图 12 MAX-DOAS 不同高度廓线数据与 ECMWF 和探空数据的相关性分析

Fig. 12. Correlation analysis of MAX-DOAS profile data at different heights with ECMWF and sounding data.

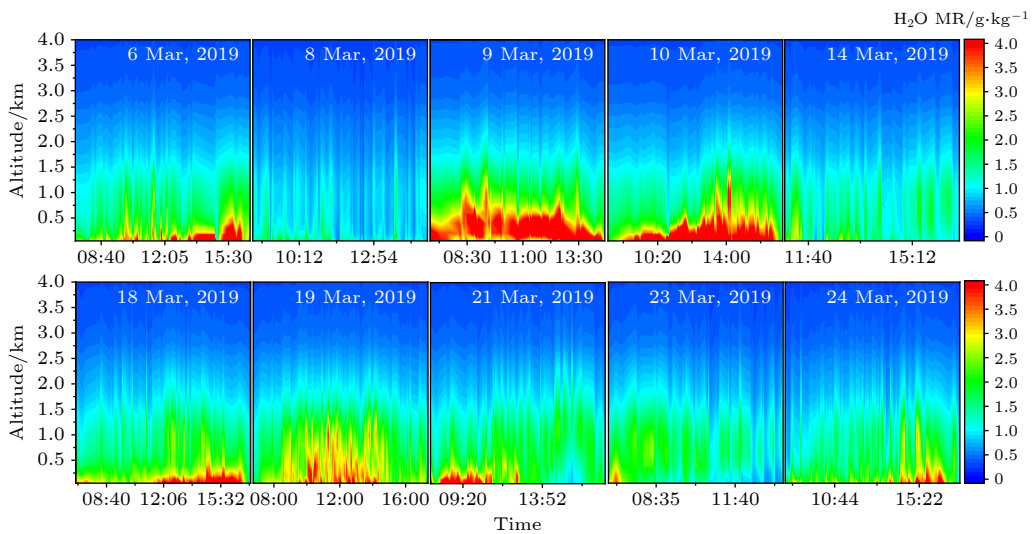


图 13 基于 MAX-DOAS 反演的水汽 0—4 km 垂直分布廓线

Fig. 13. Vertical distribution profile of water vapor 0–4 km based on MAX-DOAS retrieval.

图 13 是采用上述方法反演的 MAX-DOAS 鳌山区域站监测期间其中 10 d 的水汽廓线图 (0—4 km) 示例. 近地面最低是 50 m, 然后是 200 m, 200 m 以上垂直分辨率为 200 m, 仪器每完成一次仰角扫描循环将会获得一条垂直廓线. 从图 13 可知, 在探测时段内, 青岛市鳌山区域站水汽主要集中在 1.5 km 以下, 且底层浓度较大, 随着高度的升高浓度逐渐降低. 受边界层影响, 2 km 以下水汽日间变化比较显著, 2 km 以上则变化均匀.

5 结 论

本文研究了基于多轴差分吸收光谱技术在可见蓝光波段 (434.0—451.5 nm) 对大气水汽垂直柱浓度及垂直廓线进行准确反演的方法, 并将该方法应用于青岛市 MAX-DOAS 鳌山区域站 2019 年 3 月 4 日—31 日期间观测的数据.

通过本文的研究, 得出如下结论:

1) 基于 MAX-DOAS 技术反演水汽 VCD, 通过与仪器函数卷积获得水汽有效吸收参考截面, 并通过修正系数法进行饱和吸收校正, 将 VCD 反演结果日均值与 ECMWF CAMS 模型数据进行对比分析, 二者相关性较好 ($R^2 = 0.93$);

2) 采用基于最优估算法的 PriAM 算法分析了气溶胶状态及线型对水汽廓线反演结果的影响, 结果表明, 不同气溶胶先验廓线反演的 H_m 、 d_s 以及平均核包络线的结果都比较接近, 气溶胶廓线类型对水汽垂直廓线的反演结果影响较小, 可忽略;

3) 高气溶胶状态更易影响水汽廓线反演结果, 主要表现为两点: 第一点是高气溶胶状态下 4 种 TP 与 BP 反演水汽结果的差异值比低气溶胶状态下大; 第二点为高气溶胶状态下 H_m 和 d_s 的减小, 这些结果和 NO_2 等痕量气体类似, 均是由于高气溶胶状态明显影响光在大气中的传输路径导致, 表明了 PriAM 廓线反演算法对水汽的适用性;

4) 采用 PriAM 算法反演了水汽垂直分布廓线, 将其与 ECMWF 和怀俄明大学探空数据对比, 其 50, 200, 400, 600 m 水汽混合比和 ECMWF 的 35, 196, 405, 570 m 数据的对比结果 R^2 分别为 0.70, 0.83, 0.88, 0.88, 其 50 和 600 m 水汽混合比及探空的 77 和 610 m 数据的对比结果 R^2 分别为 0.66 和 0.83, 结果表明基于 PriAM 算法的水汽廓线反演方法的可行性与准确性;

5) 对观测期间水汽廓线图 (0—4 km) 分析, 可知青岛市鳌山区域站水汽主要集中在 1.5 km 以下, 且底层浓度较大, 随着高度的升高浓度逐渐降低, 这反映了边界层底层土壤和植物水分蒸发的情况.

基于 MAX-DOAS 在可见蓝光波段对大气水汽垂直柱浓度及垂直分布的准确测量, 不但可以应用于卫星校验, 而且还可以同时测量气溶胶和水汽廓线, 为进一步分析雾霾的形成机制提供可能. 受技术原理的限制, MAX-DOAS 无法在夜间观测, 只能在太阳光比较好的白天观测. 2019 年安徽光学精密机械研究所杨雷等^[19]采用基于 LED 技术的 DOAS 系统在夜晚观测蓝光波段 NO_2 的吸收, 也为在夜间采用 DOAS 技术在蓝光波段反演水汽提供了可能.

参考文献

- [1] Wagner T, Andreae M O, Beirle S, Doerner S, Mies K, Shaiganfar R 2013 *Atmos. Meas. Tech.* **6** 131
- [2] Liu J, Si F Q, Zhou H J, Zhao M J, Dou K, Liu W Q 2013 *Acta Opt. Sin.* **33** 0801002 (in Chinese) [刘进, 司福祺, 周海金, 赵敏杰, 窦科, 刘文清 2013 *光学学报* **33** 0801002]
- [3] Kiemle C, Brewer W A, Ehret G, Hardesty R M, Fix A, Senff C, Wirth M, Poberaj G, LeMone M A 2007 *J. Atmos. Oceanic. Technol.* **24** 627
- [4] Noel S, Mieruch S, Bovensmann H, Burrows J P 2008 *Atmos. Chem. Phys.* **8** 1519
- [5] Noel S, Buchwitz M, Bovensmann H, Burrows J P 2005 *Atmos. Chem. Phys.* **5** 1835
- [6] Chan K L, Valks P, Slijkhuis S, Köhler C, Loyola D 2020 *Atmos. Meas. Tech.* **13** 4169
- [7] Vey S, Dietrich R, Johnsen K P, Miao J, Heygster G 2004 *J. Meteorol. Soc. Jpn.* **82** 259
- [8] Borger C, Beirle S, Dörner S, Sihler H, Wagner T 2020 *Atmos. Meas. Tech.* **13** 2751
- [9] Filges A, Gerbig C, Chen H L, Franke H, Klaus C, Jordan A 2015 *Tellus B* **67** 27989
- [10] Platt U, Stutz J 2008 *Differential Optical Absorption Spectroscopy* (Berlin: Springer-Verlag Heidelberg) pp449–453
- [11] Wang Y, Li A, Xie P H, Chen H, Mou F S, Xu J, Wu F C, Zeng Y, Liu J G, Liu W Q 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 200705 (in Chinese) [王杨, 李昂, 谢品华, 陈浩, 牟福生, 徐晋, 吴丰成, 曾议, 刘建国, 刘文清 2013 *物理学报* **62** 200705]
- [12] Wang Y, Li A, Xie P H, Chen H, Xu J, Wu F C, Liu J G, Liu W Q 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 180705 (in Chinese) [王杨, 李昂, 谢品华, 陈浩, 徐晋, 吴丰成, 刘建国, 刘文清 2013 *物理学报* **62** 180705]
- [13] Tian X, Xu J, Xie P H, Li A, Hu Z H, Li X M, Ren B, Wu Z Y 2019 *Spectrosc. Spect. Anal.* **39** 2325 (in Chinese) [田鑫, 徐晋, 谢品华, 李昂, 胡肇焜, 李晓梅, 任博, 吴子扬 2019 *光谱学与光谱分析* **39** 2325]
- [14] Wang Y, Dorner S, Donner S, Bohnke S, De Smedt I, Dickerson R R, Dong Z P, He H, Li Z Q, Li Z Q, Li D H, Liu D, Ren X R, Theys N, Wang Y Y, Wang Y, Wang Z Z, Xu

- H, Xu J W, Wagner T 2019 *Atmos. Chem. Phys.* **19** 5417
- [15] Irie H, Takashima H, Kanaya Y, Boersma K F, Gast L, Wittrock F, Brunner D, Zhou Y, Van Roozendaal M 2011 *Atmos. Meas. Tech.* **4** 1027
- [16] Lampel J, Pohler D, Tschirter J, Friess U, Platt U 2015 *Atmos. Meas. Tech.* **8** 4329
- [17] Lampel J, Pohler D, Polyansky O L, Kyuberis A A, Zobov N F, Tennyson J, Lodi L, Friess U, Wang Y, Beirle S, Platt U, Wagner T 2017 *Atmos. Chem. Phys.* **17** 1271
- [18] Zhou H J, Liu W Q, Si F Q, Dou K 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 044216 (in Chinese) [周海金, 刘文清, 司福祺, 窦科 2013 物理学报 **62** 044216]
- [19] Yang L, Li A, Xie P H, Hu Z K, Liang S X, Zhan Y H, Huang Y Y 2019 *Spectrosc. Spect. Anal.* **5** 1398 (in Chinese) [杨雷, 李昂, 谢品华, 胡肇焜, 梁帅西, 张英华, 黄业园 2019 光谱学与光谱分析 **5** 1398]
- [20] Li A, Xie P H, Liu C, Liu J G, Liu W Q 2007 *Chin. Phys. Lett.* **24** 2859
- [21] Wang Y, Beirle S, Lampel J, Koukouli M, De Smedt I, Theys N, Li A, Wu D X, Xie P H, Liu C, Van Roozendaal M, Stavrou T, Muller J F, Wagner T 2017 *Atmos. Chem. Phys.* **17** 5007
- [22] Tian X, Xie P H, Xu J, Wang Y, Li A, Wu F C, Hu Z K, Liu C, Zhang Q 2018 *Atmos. Chem. Phys.* **19** 3375
- [23] Wang Y, Wagner T, Li A, Xie P H, Wu D X, Chen H, Mou F S, Zhan J, Xu J, Wu F C, Liu J G, Liu W Q, Zeng Y 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 110708 (in Chinese) [王杨, Wagner T, 李昂, 谢品华, 伍德侠, 陈浩, 牟福生, 张杰, 徐晋, 吴丰成, 刘建国, 刘文清, 曾议 2014 物理学报 **63** 110708]
- [24] Rothman L S, Gordon I E, Barbe A, et al. 2009 *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **110** 533
- [25] Rothman L S, Gordon I E, Babikov Y, et al. 2013 *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **130** 4
- [26] Rothman L S, Gordon I E, Barber R J, Dothe H, Gamache R R, Goldman A, Perevalov V I, Tashkun S A, Tennyson J 2010 *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **111** 2139
- [27] Polyansky O L, Kyuberis A A, Lodi L, Tennyson J, Ovsyannikov R I, Zobov N 2016 *Mon. Not. R. Astron. Soc.* **466** 1363
- [28] Wagner T, Heland J, Zoger M, Platt U 2003 *Atmos. Chem. Phys.* **3** 651
- [29] Wenig M, Jahne B, Platt U 2005 *Appl. Opt.* **44** 3246
- [30] Wagner T, Beirle S, Deutschmann T 2009 *Atmos. Meas. Tech.* **2** 113
- [31] Vandaele A C, Hermans C, Simon P C, Carleer M, Colin R, Fally S, Mérienne M F, Jenouvrier A, Coquart B 1998 *J. Quant. Spectrosc. Ra.* **59** 171
- [32] Serdyuchenko A, Gorshchev V, Weber M, Chehade W, Burrows J P 2014 *Atmos. Meas. Tech.* **7** 625
- [33] Thalman R M, Volkamer R 2013 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **15** 15371
- [34] Kraus S 2006 *Ph. D. Dissertation* (Mannheim: University of Mannheim)
- [35] Zhang J H 2017 *M. S. Thesis* (Wuhan: Wuhan University) (in Chinese) [张佳华 2017 硕士学位论文 (武汉: 武汉大学)]

Measurement of atmospheric water vapor vertical column concentration and vertical distribution in Qingdao using multi-axis differential optical absorption spectroscopy*

Ren Hong-Mei¹⁾²⁾ Li Ang^{1)†} Hu Zhao-Kun¹⁾ Huang Ye-Yuan¹⁾²⁾
 Xu Jin¹⁾ Xie Pin-Hua¹⁾²⁾³⁾ Zhong Hong-Yan¹⁾⁴⁾ Li Xiao-Mei¹⁾²⁾

1) (*Key Laboratory of Environmental Optics and Technology, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Hefei Institutes of Physical Science, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China*)

2) (*University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China*)

3) (*CAS Center for Excellence in Urban Atmospheric Environment, Institute of Urban Environment, Chinese Academy of Sciences, Xiamen 361021, China*)

4) (*Institutes of Physical Science and Information Technology, Anhui University, Hefei 230601, China*)

(Received 22 April 2020; revised manuscript received 15 June 2020)

Abstract

The method of retrieving the vertical column density (VCD) and the atmospheric vertical profile of water vapor in visible blue band (434.0–451.5 nm) were studied by using the multi-axis differential optical absorption spectroscopy (MAX-DOAS). First, the method of retrieving the VCD of water vapor was studied. Owing the the fact that the water vapor absorption cross section is of high resolution and it cannot be effectively measured by MAX-DOAS, a convolved cross section with the instrument slit function was used. In addition, the correction factor for water vapor saturation absorption was also used to obtain the true VCD. Second, the water vapor profile retrieved by applying the nonlinear optimal estimation of the trace gas retrieval method (PriAM) was studied, including the effects of aerosol state and the priori profile on the water vapor retrieval. Influence on the water vapor retrieval from the aerosol prior profile linear changes was unapparent. High aerosol state has a significant influence on the water vapor profile retrieval and it was still within the total error tolerance. This indicates that the PriAM is applicable in the water vapor profile retrieval. Using this method, a continuous observation experiment was carried out at the MAX-DOAS Aoshan regional station in Qingdao. The retrieved water vapor VCD results were compared with the daily average data of the European Centre for Medium-Range Weather Forecasts (ECMWF), and the R^2 is 0.93. The comparison of the near-surface water vapor concentration of MAX-DOAS retrieval with the ECMWF and sounding data of the University of Wyoming shows that R^2 is larger than 0.70 and 0.66, respectively. The two comparison results demonstrate that PriAM can retrieve the atmospheric water vapor VCD and profile accurately. The vertical distribution characteristics of water vapor in Qingdao was analyzed, and the profile results show that the concentration of water vapor in Qingdao was distributed mainly under 1.5 km in height.

Keywords: multi-axis differential optical absorption spectroscopy (MAX-DOAS), atmospheric water vapor, vertical column density, vertical profile

PACS: 42.68.Ca, 92.60.Jq, 07.88.+y, 42.72.Bj

DOI: 10.7498/aps.69.20200588

* Project supported by the National Key Research and Development Program of China (Grant No. 2018YFC0213201), the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 41775029), and the Science-Technology Project of Science and Technology Commission of Shanghai Municipality, China (Grant No. 17DZ1203102).

† Corresponding author. E-mail: angli@aiofm.ac.cn