

# 多轴差分吸收光谱技术反演气溶胶消光系数垂直廓线\*

王杨 李昂<sup>†</sup> 谢品华 陈浩 徐晋 吴丰成 刘建国 刘文清

(中国科学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)

(2013年4月4日收到; 2013年5月9日收到修改稿)

研究了多轴差分吸收光谱技术 (MAX-DOAS) 的气溶胶消光系数垂直廓线反演算法. 该算法应用非线性最优估算法, 通过 MAX-DOAS 测量的氧的二聚体 ( $O_4$ ), 反演气溶胶消光系数垂直廓线和光学厚度 (AOD). 首先研究了非线性最优估算法中权重函数、先验廓线协方差矩阵、测量不确定度协方差矩阵的计算方法, 针对中国气溶胶浓度较高且变化剧烈的特征, 设计了非线性迭代方案. 然后在低气溶胶、高气溶胶和抬高型气溶胶三种状态下, 通过计算机仿真模拟验证了 MAX-DOAS 气溶胶消光系数垂直分布反演算法, 讨论了误差来源. 之后在合肥地区开展了连续观测实验, 并将反演的 AOD 与 CE318 太阳光度计对比, 两者的相关性系数达到了 0.94. AOD 反演的相对误差约为 20%. 又将反演的最低层 (0—0.3 km) 气溶胶消光系数与能见度仪对比, 两者的相关性系数为 0.65. 近地面气溶胶消光系数反演的总相对误差约为 10%. 模拟验证和对比实验均说明本文研究的气溶胶消光系数垂直廓线反演算法可以较好地获取对流层的气溶胶状态.

**关键词:** 多轴差分吸收光谱, 气溶胶消光系数垂直廓线, 气溶胶光学厚度, 最优估算法

**PACS:** 07.88.+y, 42.68.Jg, 42.68.Ca, 42.72.B

**DOI:** 10.7498/aps.62.180705

## 1 引言

随着中国的工业化和城市化的快速发展, 各种污染源直接排放的颗粒物和二次颗粒物大量增加, 使得对流层大气气溶胶的垂直分布存在更加快速和剧烈的变化. 而且大气气溶胶的浓度和组成强烈地影响了气候系统的能量平衡<sup>[1]</sup>. 对于气溶胶光学特性参数 (如光学厚度、消光系数垂直分布) 变化规律的认识是准确估算其辐射强迫的前提条件<sup>[2]</sup>. 通过地基仪器, 长期测量对流层气溶胶光学厚度和垂直分布, 对于认识大气污染演化过程、校准空气质量模型和卫星观测数据都是十分必要的.

将点式监测仪器放置于高塔平台在线观测是一种获取气溶胶垂直梯度的常用方法, 但是该方法测量高度往往低于 300 m<sup>[3]</sup>. 另外采用机载和球载平台<sup>[4,5]</sup>是精确获得垂直分布的重要手段, 虽然这

种技术可探测的高度范围较大, 但是其不能满足连续监测的需求, 而且成本较高. 光学遥感方法具有非接触、探测范围大和便于实现连续实时在线监测等优点. 目前基于光学遥感方法的气溶胶监测技术主要是太阳光度计<sup>[6]</sup>、激光雷达<sup>[7]</sup>等. 但太阳光度计只获取气溶胶光学厚度, 无法提供消光系数垂直分布廓线, 且需要高精度的辐射定标. 激光雷达可以获取气溶胶消光系数垂直分布, 但在气溶胶分布变化最活跃的边界层通常存在测量盲区, 而且激光雷达建造和维护的成本较高.

使用太阳光作为光源的被动差分吸收光谱 (differential optical absorption spectroscopy, DOAS) 遥测技术, 通过测量紫外/可见吸收光谱来遥测大气中痕量气体的垂直柱浓度和空间分布情况<sup>[8-10]</sup>, 目前已经成功应用在地基、机载以及星载等平台. 其中近年来出现的多轴 DOAS (multi-axis DOAS, 即 MAX-DOAS) 技术<sup>[11]</sup>, 极大提升了对流层大气

\* 国家自然科学基金 (批准号: 41275038) 和环保公益性项目 (批准号: 201109007) 资助的课题.

<sup>†</sup> 通讯作者. E-mail: angli@aiofm.ac.cn

的观测灵敏度,同时结合大气辐射传输模型,可用于对流层痕量气体柱浓度<sup>[12]</sup>和垂直分布<sup>[13]</sup>的研究.自2004年德国马普化学所Wagner教授提出MAX-DOAS观测氧的二聚体(O<sub>4</sub>)可以用来反演气溶胶特性以来<sup>[14]</sup>,国际上多个研究组广泛开展了反演算法和观测实验研究.2006年德国海德堡大学的Frieß<sup>[15]</sup>通过数值模拟,研究了利用MAX-DOAS反演气溶胶垂直分布和整层光学厚度(AOD)的反演算法,并首次提出可将2000年Rodgers<sup>[16]</sup>提出的最优估算方法应用于气溶胶垂直分布反演中.2008年日本海洋陆地科学与技术研究所Irie等<sup>[17]</sup>将大气分成了0—1 km, 1—2 km, 2—3 km三层,利用最优估算方法反演气溶胶垂直分布.但是该方法的空间分辨率较低,对于MAX-DOAS更为灵敏的0—1 km范围内的大气没有做更细的区分.2010年比利时空间大气物理研究所Clemer等<sup>[18]</sup>研究了利用紫外可见四个波段的O<sub>4</sub>吸收分别反演气溶胶消光系数廓线.此外除了利用最优化方法,2011年德国马普化学所的Wagner<sup>[19]</sup>和德国大陆化学与力学研究中心的Li等<sup>[20]</sup>分别提出了将反演目标锁定在几个分布参数上的查表方法,该方法虽然无法重建垂直分布的完整信息,但是对于气溶胶AOD和边界层高度能给出较好的反演结果.MAX-DOAS相比太阳光度计和激光雷达而言,可以同时测量气溶胶以及痕量气体柱浓度和垂直分布廓线,而且由于采用差分的方法,不需要绝对定标,特别是系统的退化等不会明显影响差分吸收量.因此在大气探测,特别是对流层的探测方面MAX-DOAS技术有其优势.

在国内,徐晋等<sup>[21]</sup>、Ma等<sup>[12]</sup>也开展了MAX-DOAS观测大气痕量气体成分方面的研究.但是利用MAX-DOAS技术获得气溶胶消光系数垂直廓线和AOD方面还少有研究.

本文首先分析最优估算方法应用于MAX-DOAS获取气溶胶消光系数廓线的参数计算方法,提出适合于中国地区的非线性迭代方案,然后利用计算机仿真模拟验证算法,分析误差来源.在合肥地区开展连续观测实验,通过与CE318太阳光度计和能见度仪数据的对比,验证反演算法,分析其在实际观测中的应用效果.

## 2 多轴差分吸收光谱技术反演气溶胶垂直廓线算法

大气中O<sub>4</sub>的浓度与氧气浓度的平方成正

比<sup>[22]</sup>,本文采用的O<sub>4</sub>柱浓度的单位是10<sup>40</sup> molecules<sup>2</sup>/cm<sup>5</sup>,以U<sub>O<sub>4</sub></sub>代表这一单位.大气中O<sub>4</sub>浓度的垂直分布主要取决于温度和压强,可以作为已知量<sup>[23]</sup>.因此决定MAX-DOAS测量的O<sub>4</sub>差分斜柱浓度(S<sub>O<sub>4</sub></sub>)(以同一测量循环中天顶方向的光谱作为参考光谱)大小的主要是光的传输路径.而且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(σ)廓线的变化是影响传输路径的主要因素<sup>[14]</sup>.而且MAX-DOAS多个高度角的测量对于不同高度的大气有不同的灵敏度,所以可以通过多高度角的S<sub>O<sub>4</sub></sub>反演σ的垂直分布.但是一个测量循环中多高度角的S<sub>O<sub>4</sub></sub>(测量量y)所包含的信息无法获得σ廓线(状态量x)的单一解,也就是反演问题是病态的,所以需要借助于解决这类问题的最优估算(optimal estimation)<sup>[16]</sup>方法和大气辐射传输模型.本文采用的大气辐射传输模型是德国布萊梅大学研发的SCIATRAN 2.2模型软件包<sup>[24]</sup>.

图1为气溶胶消光系数的垂直分布廓线反演算法的主要流程.该算法中关键部分是如何设定最优估算方法中的参数和迭代方案.本文首先简单描述所使用的最优估算方法,讨论适合于中国地区的参数设定方法,并通过计算机仿真模拟,验证了反演算法.

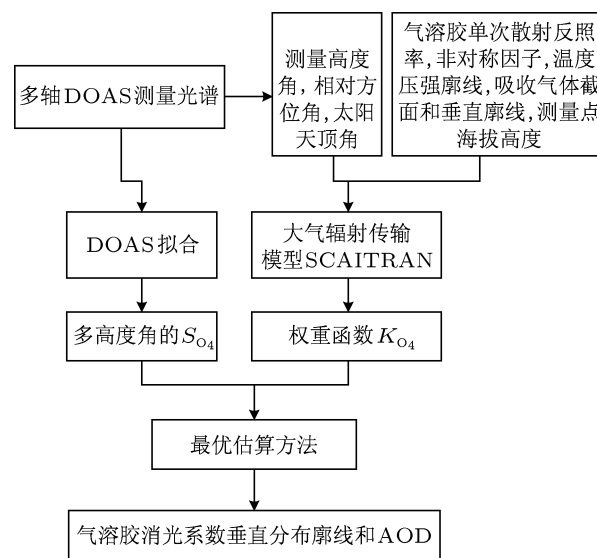


图1 气溶胶消光系数的垂直分布廓线反演算法的主要流程

### 2.1 反演算法原理

通过较少的测量量y反演出状态量x的问题,是一个病态问题.为了解决这一问题,最优估算方法中引入先验状态量x<sub>a</sub>.通过最小化价值函数

$\chi^2(x)$ (如 (1) 式) 获得测量信息和先验信息之间的最优估计状态量  $x$ , 从而反演最接近真实大气的状态量.

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

式中  $S_\varepsilon$  是测量不确定度的协方差矩阵,  $S_a$  是先验廓线的协方差矩阵.  $S_\varepsilon$  由测量误差的大小决定,  $S_\varepsilon$  越小代表反演结果越依赖于测量信息;  $S_a$  越小, 代表反演结果越依赖于先验状态量, 决定了允许最优化的状态量偏离先验状态量的程度.  $F(x)$  代表系统物理性质的前向模型, 也就是大气辐射传输模型.

当前向模型  $F(x)$  代表的测量量与状态量的关系不满足线性关系时, 这类反演问题称为非线性问题, 通过  $S_{O_4}$  反演  $\sigma$  垂直廓线的问题属于这类非线性问题. 非线性问题可以通过迭代过程最小化价值函数得到最优化的状态量. 迭代计算过程如图 2 所示.

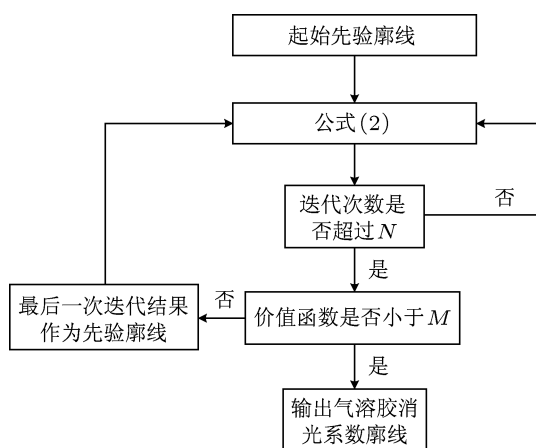


图 2 非线性最优估算法反演气溶胶廓线的迭代方案

由于 MAX-DOAS 技术的灵敏性在 1—2 km 高度范围内急剧下降<sup>[8]</sup>, 因此只针对 0—4 km 的对流层大气进行反演, 高度格子的间隔设置为 0.2 km. 首先输入起始先验廓线, 设置为 AOD 等于 0.15 的线性下降的廓线. 每步迭代采用 (2) 式计算:

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

式中  $K_i$  代表权重函数. 如 (3) 式计算, 它表征  $S_{O_4}$  与气溶胶消光系数廓线的依赖关系, 即  $S_{O_4}$  随廓线的变化关系:

$$K_{O_4} = \frac{\partial S_{O_4}}{\partial \sigma}. \quad (3)$$

SCIATRAN 模型只能计算辐射传输强度  $I$  对于  $\sigma$  的权重函数  $K_I$ , 通过 (4) 式转化为  $S_{O_4}$  与  $\sigma$  的权重函数  $K_{O_4}$ . 式中  $K_I$  和  $K_{I_0}$  是前向模型中考虑和不考虑  $O_4$  吸收的强度的权重函数,  $\varepsilon_{O_4}$  是  $O_4$  的吸收截面:

$$K_{O_4} = (K_{I_0}/I_0 - K_I/I)/\varepsilon_{O_4}, \quad (4)$$

(2) 式中  $S_\varepsilon$  和  $S_a$  的设定决定了经迭代计算向真实状态量靠近的速率和迭代过程的稳定性. 考虑到 DOAS 拟合误差和测量时大气的扰动, 我们将  $S_\varepsilon$  对角线上的值设定为两倍 DOAS 拟合误差的平方, 非对角线上的值设为零;  $S_a$  对角线上的值设定为 100% 先验廓线的平方, 100% 是根据实际情况选择的; 为了获得平滑的垂直分布, 非对角线的值设定为平滑系数为 0.5 km 的高斯分布<sup>[15]</sup>.

由于中国地区气溶胶浓度变化较为剧烈而且常出现高气溶胶状态, 为了使反演结果更多地依赖于测量值, 更好地反演变化剧烈的气溶胶状态, 我们采用如图 2 所示的迭代过程, 每经过  $N$  次迭代后, 将最后一次迭代的结果作为先验廓线, 再进行迭代计算, 直到满足价值函数小于  $M$ , 迭代计算停止, 达到了理想的反演结果. 实验中  $N$  值设定为 5,  $M$  值设定为 8.

由于 (2) 式并没有对状态量进行限制, 所以在迭代过程中可能会出现状态量为负值的情况, 但是实际大气中不会出现气溶胶消光系数为负值的状态, 如果将这种奇异状态输入前向模型, 就会使反演过程出错. 因此, 需要对状态量增加限制, 保证在多次迭代过程中不会出现奇异值, 使反演过程更加稳定. 为此, 我们将状态量  $x$  转化为  $x'$  (如 (5) 式), 再进行迭代计算, 输出时再将  $x'$  转化为  $x$ , 保证  $x$  非负:

$$x' = \ln(x). \quad (5)$$

## 2.2 反演算法的模拟验证

利用辐射传输模型模拟验证算法的过程中, 太阳天顶角设定为  $60^\circ$ , 相对方位角设定为  $30^\circ$ . 一个测量循环的观测高度角设置为  $1^\circ, 2^\circ, 3^\circ, 6^\circ, 8^\circ, 10^\circ, 15^\circ, 20^\circ$  和  $90^\circ$ ,  $O_4$  的差分斜柱浓度拟合误差都设置为  $5U_{O_4}$ .

首先针对气溶胶消光系数随高度逐渐降低的玻尔兹曼分布进行算法的验证. 分别假设 AOD 等于 0.21 和 0.56 两种气溶胶状态. 图 3(a) 显示出当

气溶胶 AOD 较小且与先验廓线的 AOD (0.15) 相近时, 采用固定的先验廓线和采用图 2 所示的变化的先验廓线获得的结果都较好地还原了真实廓线. 图 3(b) 显示出当气溶胶 AOD 较大, 与先验廓线 AOD 差距较大时, 采用变化的先验廓线, 得到的  $AOD_c$  为 0.52, 比采用固定的先验廓线得到的  $AOD_n$  为 0.46, 更加接近真实的气溶胶 AOD (0.56), 反演精度提高 10%. 但是图 3(b) 显示出反演的气溶胶消光系数廓线在 0.3 km 处出现了错误的抬高, 这是因为在大 AOD 的气溶胶条件下, 反演的  $H_m$  较低 (如图 4(b) 所示), 无法还原高层的气溶胶状态, 高层气溶胶状态多由先验廓线决定, 消光系数相比真实的偏低, 但是迭代过程为了减小价值函数 (如 (1) 式), 就会错误地抬高敏感高度附近的消光系数.

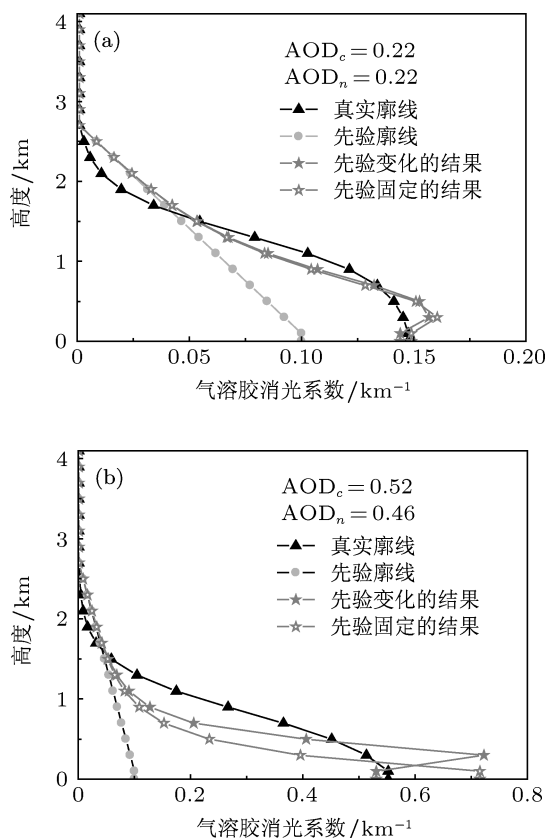


图 3 算法的模拟验证 (a) AOD 为 0.21 的低气溶胶状态; (b) AOD 为 0.56 的高气溶胶状态

为了表示反演对于不同高度大气状态的敏感度, 最优化方法通过平均核  $A$  [16] (如图 4 中灰色的点线), 描述了这一重要的反演性质. 最理想的反演中, 平均核是单位矩阵, 每一层的平均核在该层出现峰值, 代表反演对各层的敏感度都相同. 但实际反演中, 各层的敏感度存在差异. 而每一层平均核的最大值可以代表反演对于该层的敏感度, 将各层

的最大值连接起来所形成的包络线 (如图 4 中黑线), 代表了敏感度随高度的变化. 为了方便地表示出反演的灵敏范围, 本文将包络线的值随高度减小到最大值的 10% 时所对应的高度, 称作灵敏高度上限 ( $H_m$ ),  $0-H_m$  就是 MAX-DOAS 反演气溶胶状态的灵敏范围.  $H_m$  以上的反演结果主要来自于先验状态. 此外为了反映反演的高度分辨率, 也就是各层信息的独立性, 将平均核对角线上的值相加作为自由度 ( $ds$ ), 来表征这一反演性质.  $ds$  越大代表反演的高度分辨率越好. 在理想反演中,  $ds$  的值是反演中廓线分层的数量.

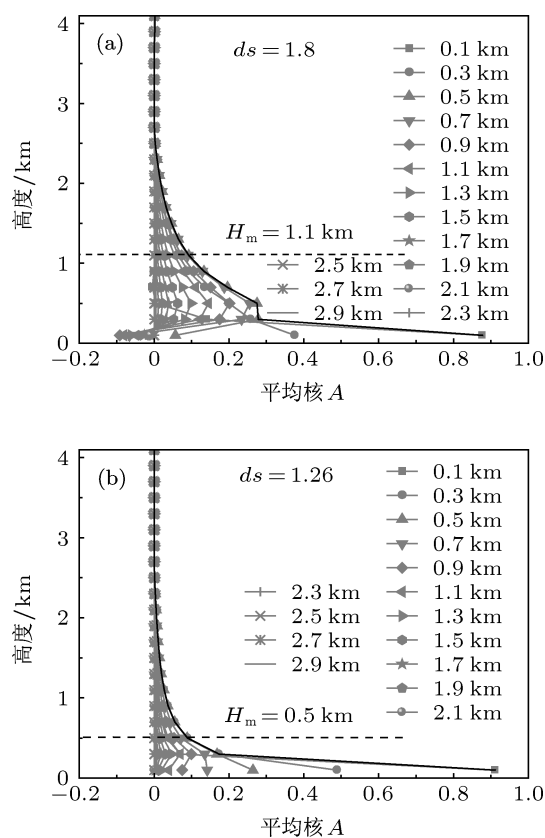


图 4 反演的平均核,  $H_m$  和  $ds$  (a) 低气溶胶状态; (b) 高气溶胶状态

图 4(a) 和 (b) 分别显示了图 3(a) 和 (b) 中所示的低气溶胶和高气溶胶下反演的平均核,  $H_m$  和  $ds$ . 对比发现, 高气溶胶时, 反演的  $H_m$  只有 0.5 km, 远小于低气溶胶时的 1.1 km. 较低的  $H_m$  说明反演灵敏范围的降低使得图 3(b) 中 0.5 km 以上的反演结果远低于真实廓线. 而  $ds$  的对比也说明反演的高度分辨率将随着气溶胶的增加而降低.

在实际大气中, 当有污染传输时, 可能出现气溶胶在高空出现高值的状态 (抬高型气溶胶状态). 如图 5, 针对 AOD 为 0.11 时的抬高型气溶胶状态

进行了模拟验证. 从图 5(a) 的反演结果与真实廓线的对比可以看出, 采用本文的改变先验廓线的迭代方法, 可以很好地重建真实气溶胶廓线. 在 1 km 左右的抬高层位置, 改变先验廓线的方法可以获得与真实值接近的反演结果, 但是固定先验廓线的方法就明显地低估了真实值, 主要是因为先验廓线的限制作用较大. 图 5(b) 显示出反演的平均核, 反演的灵敏范围达到了 1.9 km, 抬高的气溶胶状态使反演对于高层的灵敏度提高.

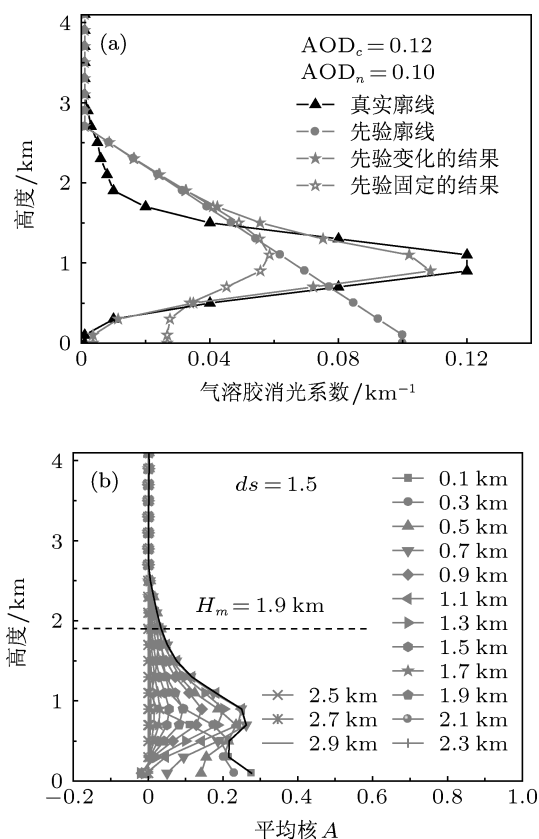


图 5 抬高层气溶胶状态模拟验证 (a) 反演结果; (b) 反演的平均核,  $H_m$  和  $ds$

### 2.3 反演算法的误差分析

反演的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 ( $S_r$ ). 反演的总误差 ( $S_t$ ) 是三种误差的均方根. 实际上反演算法重建的并不是真实大气状态量, 而是被算法的平均核平滑后的状态量, 因此这一平滑过程会引入误差, 该误差称为平滑误差, 是算法本身的误差. 可通过 (6) 式计算:

$$S_s = (K^T S_\varepsilon^{-1} K + S_a^{-1})^{-1} S_a \times (K^T S_\varepsilon^{-1} K + S_a^{-1})^{-1}. \quad (6)$$

测量误差 ( $S_m$ ) 是  $S_{O_4}$  测量误差传递到反演的垂直廓线中的误差, 可通过 (7) 式计算:

$$S_m = (K^T S_\varepsilon^{-1} K + S_a^{-1})^{-1} K^T S_\varepsilon^{-1} K \times (K^T S_\varepsilon^{-1} K + S_a^{-1})^{-1}. \quad (7)$$

剩余误差 ( $S_r$ ) 是反演所得的价值函数传递到反演的垂直廓线中的误差, 代表了算法最小化价值函数的能力, 该误差可通过 (8) 式计算:

$$S_r = (K^T S_c^{-1} K + S_a^{-1})^{-1} K^T S_c^{-1} K \times (K^T S_c^{-1} K + S_a^{-1})^{-1}. \quad (8)$$

式中  $S_c$  是模拟值和测量值差异的协方差矩阵.

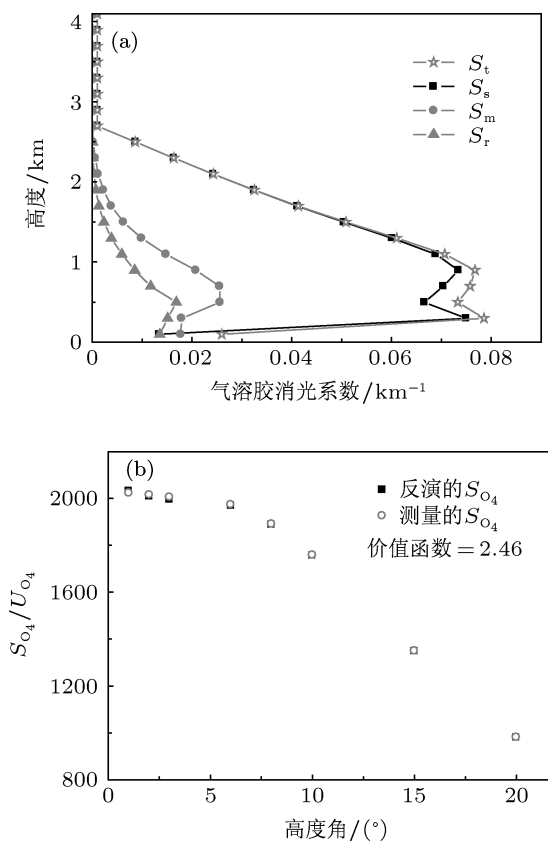


图 6 低气溶胶状态下的反演误差分析 (a) 三种误差和总误差高度分布; (b) 反演和测量的  $S_{O_4}$  对比

图 6 显示了图 3(a) 的气溶胶状态下反演的三种误差的高度分布. 由于模拟计算时设定的  $S_{O_4}$  拟合误差是非常小的, 所以测量误差在各层的分布都小于 0.03. 很小的剩余误差说明非线性迭代算法能够较好地最小化价值函数. 图 6(b) 中显示出在反演得到的气溶胶消光系数廓线下, 反演的  $S_{O_4}$  与测量的  $S_{O_4}$  (在假设的真实廓线下, 利用大气辐射传输模型得到的  $S_{O_4}$ ) 的对比, 两者的相近程度说明了反演的剩余误差大小和价值函数的最小化程度. 图中

两者极为接近, 而且价值函数只有 2.46, 这一结果呼应了小的剩余误差. 平滑误差是三种误差中的最大误差, 说明算法的平均核对真实大气状态的平滑作用对反演结果的准确性影响很大, 但是该误差既与算法参数有关, 又强烈地依赖于真实气溶胶状态, 因此该误差较难以有效减少. 而测量误差可以通过提高系统的性能减少  $O_4$  的拟合误差来降低, 剩余误差可以通过设计迭代方案和优化  $S_\varepsilon$ ,  $S_a$  来降低.

图 7 显示了图 3(b) 中的气溶胶状态下的误差分布. 较高的气溶胶对灵敏范围和高度分辨率的影响, 导致了剩余误差相比图 6 中的情况有了较大的增加. 图 7(b) 中价值函数的增大以及反演和测量的  $S_{O_4}$  之间差异的增大, 呼应了剩余误差的增大.

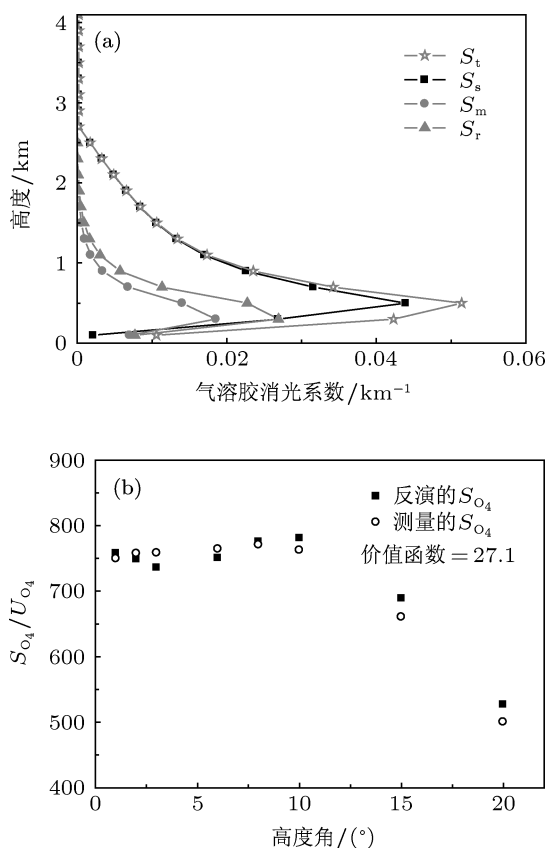


图 7 高气溶胶状态下的反演误差分析 (a) 三种误差和总误差高度分布; (b) 反演和测量的  $S_{O_4}$  对比

图 8 显示了图 5 中的抬高型气溶胶状态下的误差分布. 三种误差在气溶胶消光系数增加的高度也有一定增加. 图 5(b) 中反演和测量的  $S_{O_4}$  之间很小的偏差以及较小的价值函数都证明本文的反演算法在抬高型气溶胶状态下依然可以较好地重建气溶胶消光系数廓线.

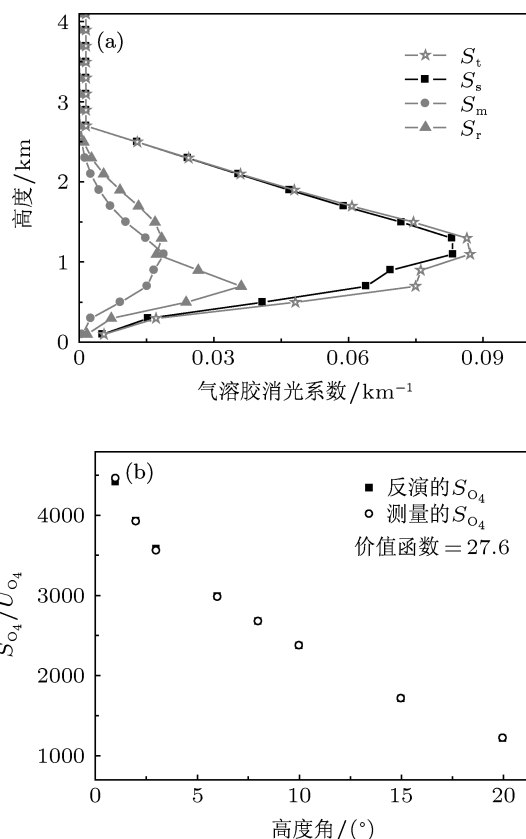


图 8 抬高型气溶胶状态下的反演误差分析 (a) 三种误差和总误差高度分布; (b) 反演和测量的  $S_{O_4}$  对比

### 3 实验装置

实验搭建了二维 MAX-DOAS 装置, 如图 9 所示. 装置的望远镜 (视场约为  $0.2^\circ$ ) 将天空散射光聚焦在光纤束中, 经光纤束传导到光谱仪, 经光谱仪分光 and CCD 的采集, 获得光谱信息. 望远镜架设在一台二维转动平台上, 可以在  $0^\circ$  到  $90^\circ$  范围的高度角和  $0^\circ$  到  $360^\circ$  范围的方位角内任意扫描, 通过电子倾角仪反馈控制二维转动平台, 使其高度角指向精度达到  $0.05^\circ$ , 通过电子罗盘使其方位角指向精度达到  $0.5^\circ$ . 二维转动平台搭载望远镜等设备放置于室外, 利用有机玻璃罩保护室外设备. 光谱仪和 CCD、计算机放置于室内, 并利用温控装置使光谱仪温度恒定在  $0.2^\circ\text{C}$  范围内, 减少热形变引入的光谱漂移等作用. 光谱仪采用  $600 \text{ 刻线 mm}^{-1}$ , 闪耀波长  $300 \text{ nm}$  的光栅, 光谱范围  $89 \text{ nm}$ , 狭缝宽度  $200 \mu\text{m}$ , 系统的光谱分辨率是  $0.35 \text{ nm}$ . 通过 CCD 的热电制冷和面阵多通道平均 (binning), 减少随机噪声, 提高信噪比. 实验中通过扣除背景光谱, 修正测量光谱中的暗电流和偏置电流, 进一步提高信噪比.

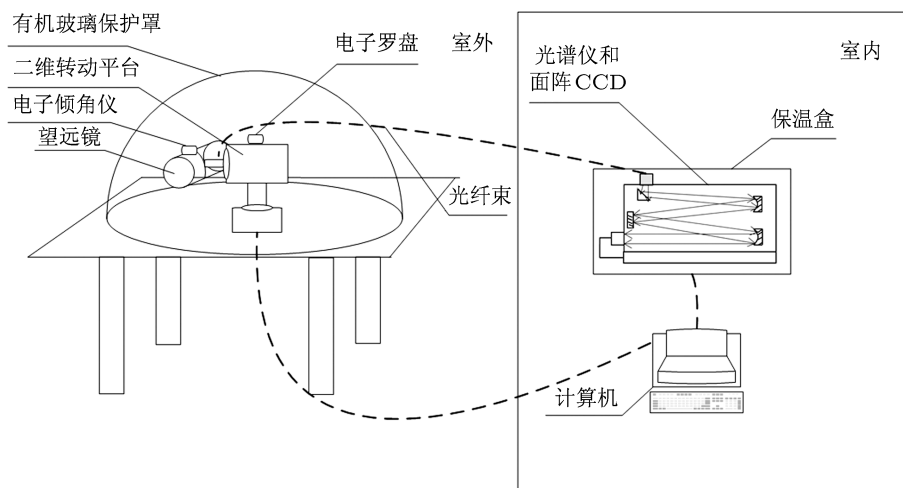


图9 MAX-DOAS 实验装置结构图

MAX-DOAS 一个测量循环中的高度角设置为与模拟验证时相同的 9 个高度角. 为了与 MAX-DOAS 反演的 AOD 进行对比, 在实验点同时运行一台 CIMEL 公司的 CE318 太阳光度计 (sunphotometer), 该仪器可同时获得 9 个波段的 AOD.

## 4 实验数据处理与分析

### 4.1 O<sub>4</sub> 差分斜柱浓度反演

基于 Lambert-Beer 定律, 利用 DOAS 算法, 在 336 到 370 nm 波段反演 S<sub>O<sub>4</sub></sub>. 利用一个测量循环开始的天顶光谱作为夫琅禾费参考光谱, 去除太阳夫琅禾费结构. 我们采用了 WINDOAS 软件 [25] 分析了测量光谱. 拟合多项式设置为三阶, 非线性参数选择常数 offset. 将空气分子的拉曼散射效应作为一种吸收结构带入反演中, 对其影响进行修正 [26]. Ring 的吸收结构采用 DOSIS 软件 [27] 计算得到. 表 1 列出了 DOAS 反演中采用的所有吸收截面.

表 1 反演中所使用的气体吸收截面

气体	截面
O <sub>4</sub>	Greenblatt 等, 1990 (296 K) <sup>[28]</sup>
NO <sub>2</sub>	Vandaele 等, 1998 (294 K) <sup>[29]</sup>
O <sub>3</sub>	Bogumil, 2003 (223 K) <sup>[30]</sup>
HCHO	Meller 等, 2000 (298 K) <sup>[31]</sup>

图 10 是 2012 年 11 月 5 日 11:27 时 10° 高度角的测量光谱 DOAS 拟合的例子. 拟合的剩余结构的均方根 (residual RMS) 为  $5.24 \times 10^{-4}$ , 与其对应的 O<sub>4</sub> 的拟合误差为  $31.3U_{O_4}$ .

### 4.2 气溶胶光学厚度及对比研究

实验从 2012 年 11 月 4 日到 11 月 18 日, 选取实验期间无云晴朗的时段反演气溶胶消光系数垂直廓线和 AOD. RTM 中采用的大气温度和压强廓线是 MPI 气象数据库中北纬 35° 的 11 月份数据 [28]. 气溶胶非对称因子和单次散射反照率表征了重要的气溶胶光学特性, 在一个地区比较稳定. 本文通过 AERONET 数据得到了合肥地区特征的气溶胶非对称因子为 0.72, 单次散射反照率为 0.9, 将其输入到 RTM 中. 图 11(a) 显示了 10 天中 MAX-DOAS 反演的 AOD 与 sunphotometer 结果的对比. 由于 MAX-DOAS 是通过 360 nm 的 O<sub>4</sub> 吸收反演的气溶胶状态, 因此需要利用 sunphotometer 输出的 Angstrom 因子, 将其测量的 380 nm 波段 AOD 转化到 360 nm<sup>[18]</sup>, 再与 MAX-DOAS 结果对比. 图 11(b) 显示了两者的线性相关性, 只取两者时间重合的数据做相关性分析. 数据个数为 236 个, 相关性系数 (R) 为 0.94. 接近 1 的相关性系数说明两种技术得到的 AOD 变化趋势是相符的. 图 11(b) 中的拟合直线斜率小于 1, 而截距为 0.1, 说明 MAX-DOAS 反演结果在 AOD 较大时略大于 sunphotometer 结果, 在 AOD 较小时略小于 sunphotometer 结果. 图 12 显示了反演和测量的 S<sub>O<sub>4</sub></sub> 的线性相关性, 数据量为 2864 个, 相关性系数 (R) 为 0.993, 拟合直线斜率为 0.999, 截距为 11.3. 相关性分析说明反演和测量的 S<sub>O<sub>4</sub></sub> 极为接近, 反演算法使价值函数充分的最小化, 反演的剩余误差很小.

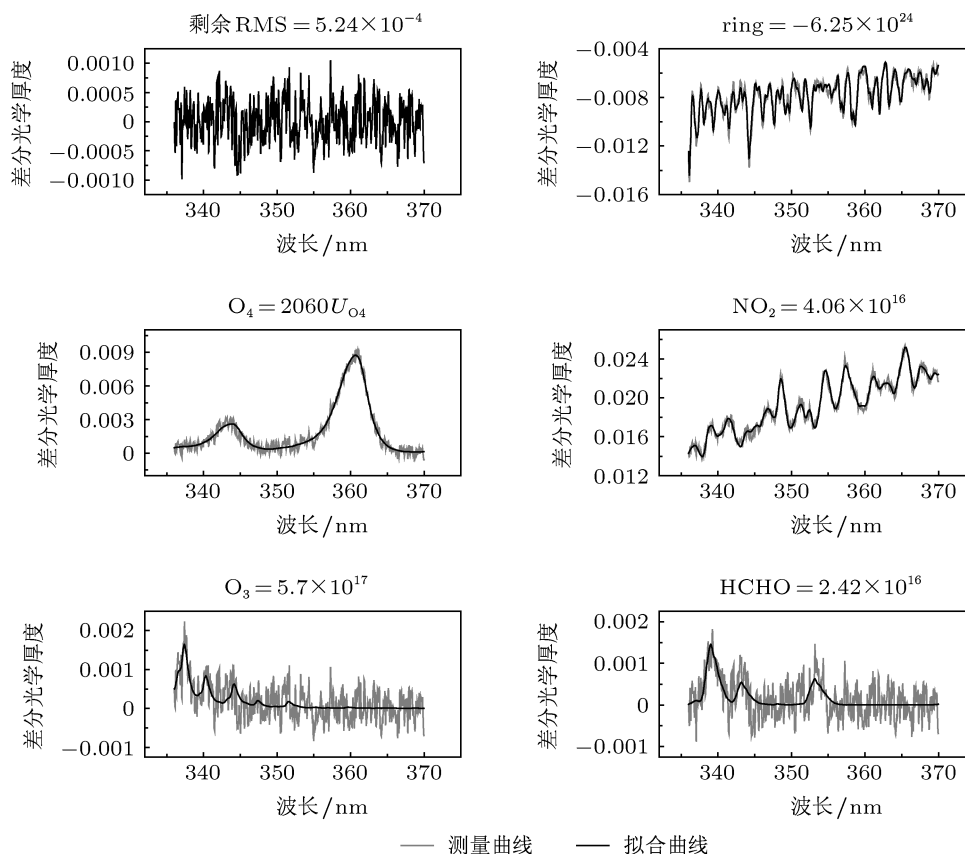


图 10 2012 年 11 月 5 日 11:27 时  $10^\circ$  高度角的测量光谱 DOAS 拟合的例子, 以同一循环中的天顶光谱作为参考光谱 (图中灰线是测量曲线, 黑线是拟合曲线)

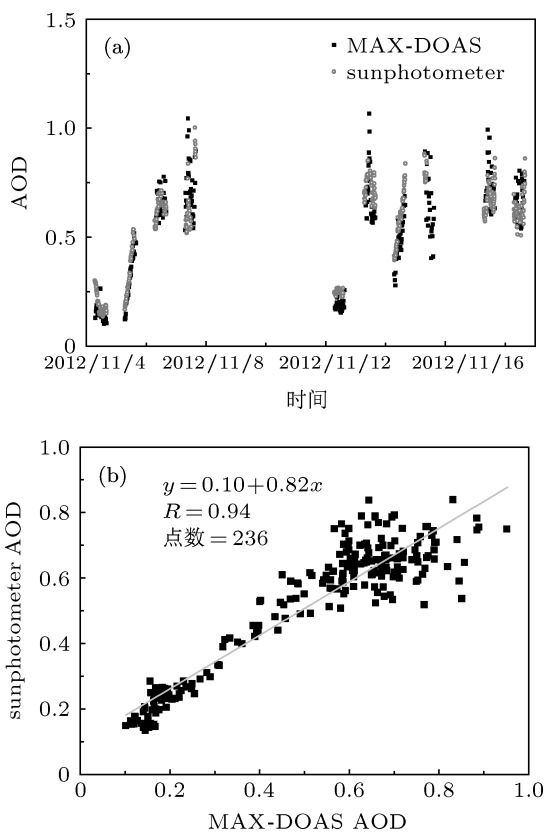


图 11 实验期间 MAX-DOAS 和 sunphotometer 测量的 AOD 对比 (a) 两者随时间变化; (b) 线性相关性分析

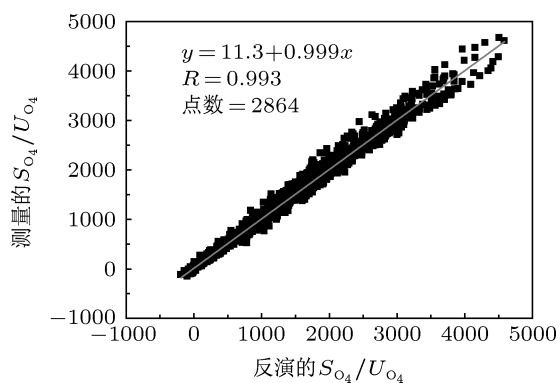


图 12 实验期间反演和测量的  $S_{O_4}$  的线性相关性分析

图 13 显示了 11 月 5 日全天的 AOD 及其反演误差, 这一天 AOD 的变化比较剧烈, 最大值约为 0.5, 最小值约为 0.2. MAX-DOAS 的测量值比太阳光度计结果略小, 此偏差的绝对值随着 AOD 的增大而增大. 图 13(a) 显示的误差棒是考虑了三种误差后的总的绝对误差, 平均值为 0.064, 随着 AOD 的增加, 总绝对误差逐渐增加, 由 0.04 上升到 0.07, 但是相对误差由 28% 下降到了 15%, 平均值为 20%. 图 13(b) 中显示出剩余误差的变化, 与总误差相比, 剩余误差非常小, 绝对剩余误差的平均值为 0.018,



占总绝对误差的 28%, 这说明气溶胶反演算法通过迭代过程已经很好地最小化了价值函数. 因此 AOD 的误差主要来自于测量误差和平滑误差.

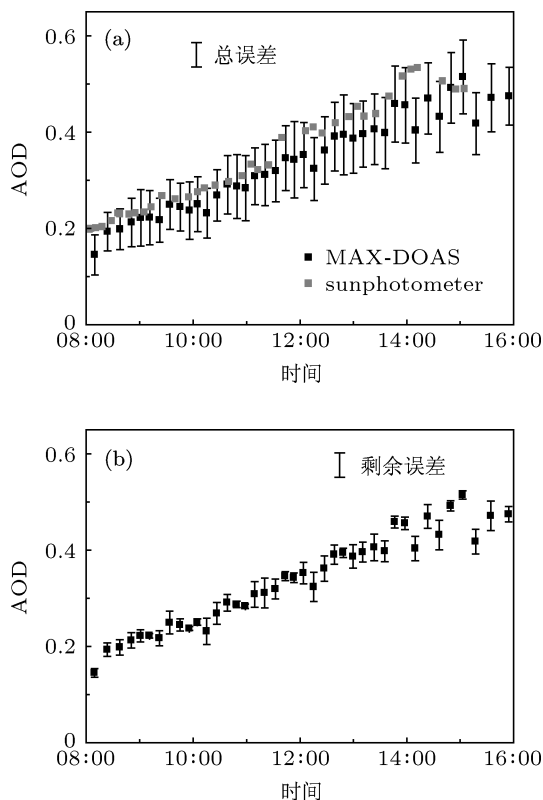


图 13 11月5日的 (a) MAX-DOAS 和 sunphotometer 测量的 AOD 以及 MAX-DOAS 总误差, (b) MAX-DOAS 的 AOD 以及剩余误差

### 4.3 气溶胶垂直分布及误差分析

图 14 显示了实验期间 11 月 4—7 日的气溶胶消光系数垂直分布廓线. 图中的黑线表示了反演的  $H_m$ . 随着气溶胶消光系数的增加,  $H_m$  逐渐降低, 由约为 1.3 km 下降到 0.5 km. 气溶胶消光系数的垂直分布反映出高气溶胶的区域集中于 0.5 km 以下, 因此气溶胶主要来自于本地源. 图 15 显示出 MAX-DOAS 反演的最底层 (0—0.3 km) 气溶胶消光系数与能见度仪的数据进行对比. 能见度数据来自于合肥市机场气象能见度 [32], 首先利用气象能见度公式将水平能见度 ( $L_v$ ) 转化为气溶胶消光系数 ( $\sigma$ ), 如 (14) 式:

$$\sigma = \frac{2.996}{L_v}, \quad (9)$$

然后利用 sunphotometer 测量的 Angstrom 因子将 550 nm 处气溶胶消光系数转化到 360 nm 处 [18]. 图 15(b) 显示出小时均值的线性相关性, 两者的相关性系数为 0.65, 说明两种方法测量的近地面气溶胶消光系数变化趋势符合较好, 但是 0.58 的斜率和 0.24 的截距说明在消光系数较高时 MAX-DOAS 会高估近地面消光系数, 在较低时 MAX-DOAS 会低估消光系数.

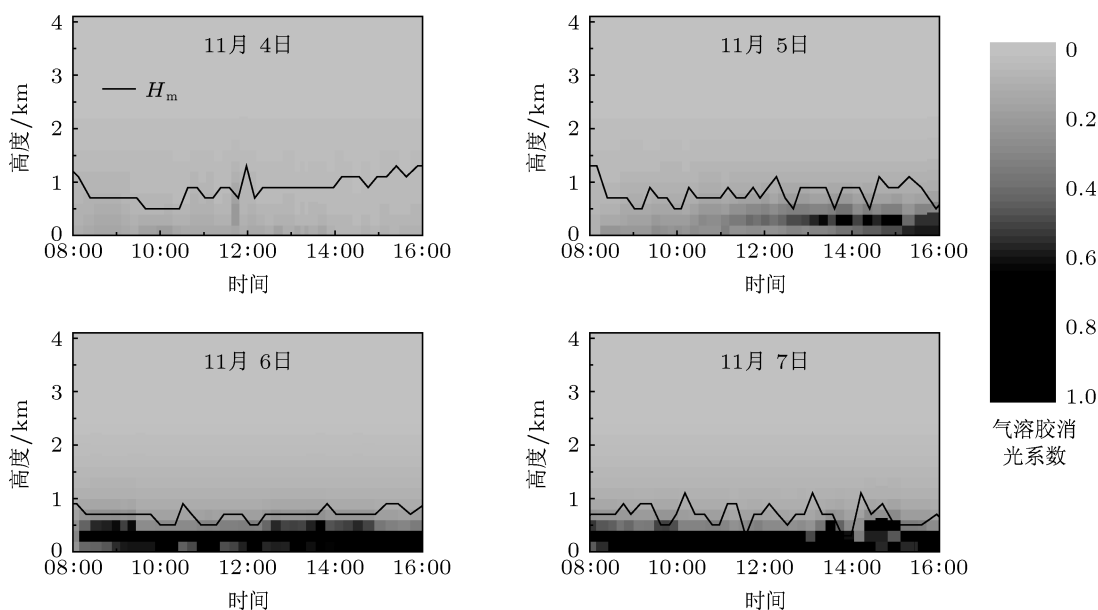


图 14 四天反演的气溶胶消光系数垂直廓线随时间的变化以及灵敏高度上限 ( $H_m$ ) 的变化

图 16 显示出 11 月 5 日中午 12:03 分的气溶胶消光系数反演实例. 图 16(a) 显示出反演的结果廓线和总误差, 图中的误差棒代表总绝对误差. 结果廓线与先验廓线差别较大, 说明在  $H_m$  以下, 反演对于先验廓线的依赖较小, 更多的信息来自于测量值. 在近地面, 反演的总绝对误差约为 0.067, 总相对误差约为 10%. 在消光系数较高的 0.3 km 处总绝对误差增加到 0.158, 相对误差达到了 22%. 图 16(b) 显示了反演的平均核、 $H_m$  和  $ds$ . 平均核和  $H_m$  显示出反演的灵敏范围约为 0 到 0.9 km.  $ds = 1.8$  与

图 4(a) 的模拟结果相似, 说明在实际反演中反演算法的高度分辨率依然较好. 图 16(c) 显示了三种误差的绝对值, 它们的对比显示出误差主要来自平滑误差, 而测量误差和剩余误差则被较好地减小. 图 16(d) 显示了测量和反演的  $S_{O_4}$  的对比, 随着高度角的增加, 两者的偏差逐渐增大, 因为较高的高度角对于高层的气溶胶敏感, 所以反演算法获取高层气溶胶的效果不理想, 但可以较好地反演接近地面的气溶胶.

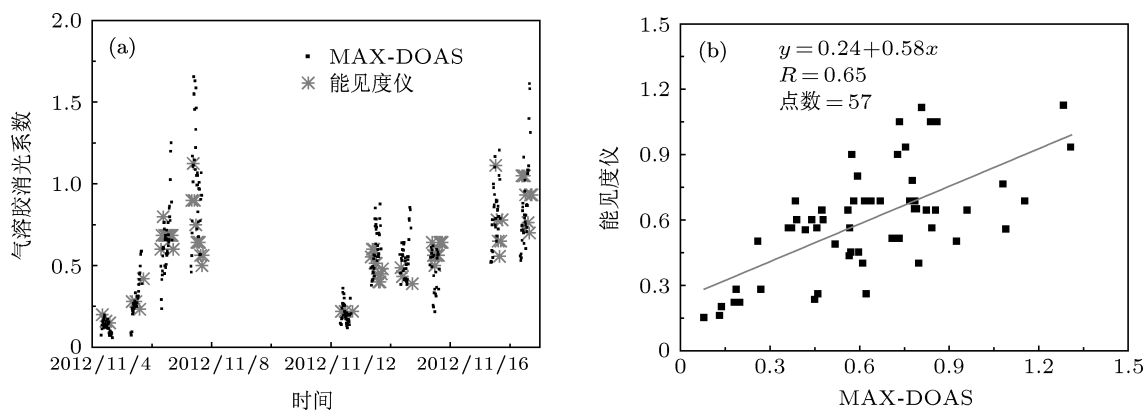


图 15 实验期间 MAX-DOAS 和能见度仪测量的近地面气溶胶消光系数对比 (a) 两者随时间的变化; (b) 线性相关性分析

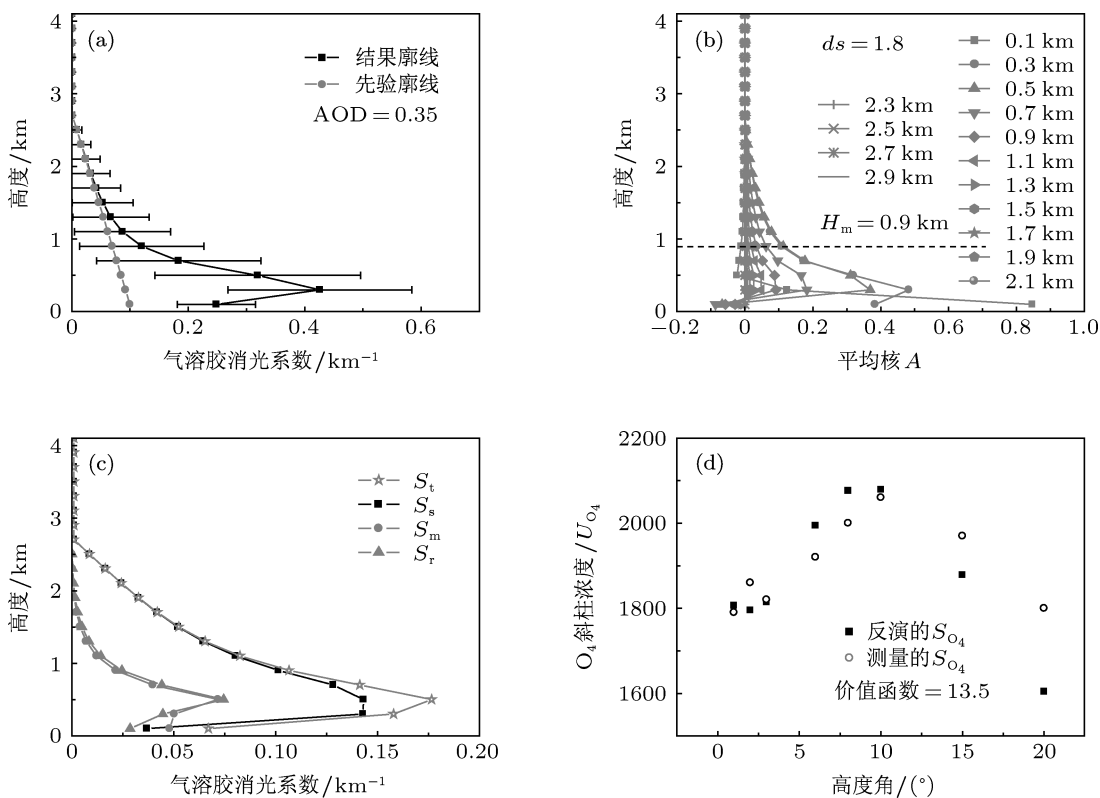


图 16 11 月 5 日中午 12:03 分的气溶胶消光系数反演实例 (a) 结果廓线以及总误差; (b) 反演的平均核,  $H_m$  和  $ds$ ; (c) 反演的三种误差和总误差的高度分布; (d) 反演和测量的  $S_{O_4}$  的对比

## 5 结论

本文研究了利用 MAX-DOAS 测量的多高度角  $O_4$  差分斜柱浓度反演气溶胶消光系数垂直分布廓线和气溶胶光学厚度的反演算法. 该算法采用了非线性最优估算法, 通过循环迭代, 最小化价值函数, 获得最优化的气溶胶消光系数廓线. 通过三种气溶胶状态下的模拟验证, 说明采用变化的先验廓线可以更好地获得气溶胶消光系数廓线和 AOD. 这种改进效果, 在气溶胶 AOD 较大和抬高型气溶胶条件下尤为明显, 适合于中国地区气溶胶状态变化较为剧烈而且常出现高值的特征. 模拟中通过平均核和灵敏范围的对比说明, 气溶胶 AOD 较大时, 反演的灵敏范围会减小. 之后讨论了反演算法的误差分析方法, 反演的误差可分为测量误差、剩余误差和平滑误差. 测量误差可以通过降低系统噪声等方法来减小; 剩余误差可以通过设置较好的迭代方案, 最大程度地最小化价值函数来减少; 但平滑误差既与反演参数设置有关, 又与实际气溶胶状况有关, 因此较难以控制.

实验中通过  $H_m$  表征了 MAX-DOAS 测量的灵敏范围 ( $0-H_m$ ),  $H_m$  随着气溶胶浓度的增加而降

低,  $H_m$  的特征值是 0.5 km 到 1.3 km. 反演的 AOD 与 CE318 太阳光度计对比说明两者的结果符合得很好, 相关性系数达到 0.94. AOD 反演的总绝对误差的平均值为 0.064, 总相对误差的平均值为 20%. 在实际反演中, 剩余误差只占总误差的 28%, 因此反演算法已经较好地最小化了价值函数. 反演的近地面气溶胶消光系数与能见度仪的对比说明两者基本反映了相同的变化趋势 (相关性系数为 0.65). 近地面的气溶胶消光系数反演的总相对误差约为 10%, 此外反演误差主要来自于平滑误差, 测量和反演过程较好地减少了测量误差和剩余误差.

模拟验证和对比实验均说明本文研究的气溶胶消光系数垂直廓线反演算法可以较好地重建对流层的气溶胶状态. 未来将利用该算法对气溶胶开展长期观测, 并开展与激光雷达的对比研究. 此外由于气溶胶状态对于 MAX-DOAS 反演痕量气体状态影响较大, 而以往 MAX-DOAS 技术多采用固定的特征气溶胶状态反演痕量气体垂直分布及对流层柱浓度, 这种处理方法引入了一定的误差, 因此未来将研究以 MAX-DOAS 技术同时获取的气溶胶状态为基础, 反演痕量气体状态, 并分析相比传统方法的改进效果.

- [1] IPCC 2007 Intergovernmental Panel on Climate Change, Fourth assessment report
- [2] Wang M X, Zhang R J 2001 *Climat. Environ. Res.* **6** 119 (in Chinese) [王明星, 张仁健 2001 气候与环境研究 **6** 119]
- [3] Li X, An J L, Wang Y S 2003 *China Environ. Sci.* **23** 353 (in Chinese) [李昕, 安俊琳, 王跃思 2003 中国环境科学 **23** 353]
- [4] Xu J, Xie P H, Si F Q 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 024204 (in Chinese) [徐晋, 谢品华, 司福祺 2012 物理学报 **61** 024204]
- [5] Ma L C, Yin Y 2012 *J. Meteorol. Sci.* doi: 10.3969/2012jms.0144 (in Chinese) [马梁臣, 银燕 2012 气象科学 doi: 10.3969/2012jms.0144]
- [6] Nakajima T, Tanaka M, Yamauchi T 1983 *Appl. Opt.* **22** 2951
- [7] Yi Q, He J H, Zhang H 2009 *J. Meteorol. Environ.* **25** 48 (in Chinese) [尹青, 何金海, 张华 2009 气象与环境学报 **25** 48]
- [8] Wang Y, Xie P H, Li A 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 114209 (in Chinese) [王杨, 谢品华, 李昂 2012 物理学报 **61** 114209]
- [9] Wang Y, Xie P H, Li A 2012 *Spectrosc. Spectral Anal.* **32** 893 (in Chinese) [王杨, 谢品华, 李昂 2012 光谱学与光谱分析 **32** 893]
- [10] Stella M L, Farahani E, Strong K 2004 *Adv. Space Res.* **34** 786
- [11] Hönninger G, von Friedeburg C, Platt U 2004 *Atmos. Chem. Phys.* **4** 231
- [12] Ma J Z, Beirle S, Jin J L 2012 *Atmos. Chem. Phys. Discuss.* **12** 26719
- [13] Zhou H J, Liu W Q, Si F Q, Xie P H, Xu J, Dou K 2011 *Acta Opt. Sin.* **31** 1101007 (in Chinese) [周海金, 刘文清, 司福祺, 谢品华, 许晋, 窦科 2011 光学学报 **31** 1101007]
- [14] Wagner T, Dix B, Friedeburg C V 2004 *J. Geophys. Res.* **109** 22205
- [15] Frieß U, Monks P S, Remedios J J 2006 *J. Geophys. Res.* **111** D14203
- [16] Rodgers C D 2000 *Inverse Methods for Atmospheric Sounding: Theory and Practice*, Ser. Atmos. Oceanic Planet. Phys. vol. 2
- [17] Irie H, Kanaya Y, Akimoto H 2008 *Atmos. Chem. Phys.* **8** 341
- [18] Clemer K, van Roozendaal M, Fayt C 2010 *Atmos. Meas. Tech.* **3** 863
- [19] Wagner T, Beirle S, Brauers T 2011 *Atmos. Meas. Tech. Discuss* **4** 3891
- [20] Li X, Brauers T, Hofzumahaus A 2012 *Chem. Phys. Discuss* **12** 3983
- [21] Xu J, Xie P H, Si F Q 2010 *Spectrosc. Spectral Anal.* **30** 2464 (in Chinese) [徐晋, 谢品华, 司福祺 2010 光谱学与光谱分析 **30** 2464]
- [22] Greenblatt G D, Orlando J J, Burkholder J B 1990 *J. Geophys. Res.* **95** 18577
- [23] Wagner T, von Friedeburg C, Wenig M 2002 *J. Geophys. Res.* **107** D204424
- [24] Rozanov A, Rozanov V, Buchwitz M 2005 *Adv. Space Res.* **36** 1015
- [25] Fay C, van Roozendaal M 2009 WinDOAS 2.1 Software User Manual, IASB/BIRA (<http://www.oma.be/GOME/GOMEBRO/WinDOAS-SUM-210b.pdf>)
- [26] Solomon S, Schmeltekopf A L, Sanders R W 1987 *J. Geophys. Res.* **92** 8311
- [27] Kraus S 2006 University of Mannheim <http://hci.iwr.uni-heidelberg.de/publications/dip/2006/Kraus.PhD2006.pdf>
- [28] Greenblatt G D, Orlando J J, Burkholder J B, Ravishankara A R 1990 *J. Geophys. Res.* **95** 1857
- [29] Vandaele A C, Hermans C, Simon P C, Carleer M, Colins R, Fally S, M'erieux M F, Jenouvrier A, Coquart B 1998 *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **59** 171
- [30] Bogumil K, Orphal J, Homann T, Voigt S, Spietz P, Fleischmann O C,

Vogel A, Hartmann M, Bovensmann H, Frerik J, Burrows J P 2003 *J. Photoch. Photo-bio. A.* 157

[32] Bruhl C, Crutzen P J 1993 *NASA Ref. Publ.* 1292 103

[33] <http://www.wunderground.com/>

[31] Meller R and Moortgat G K 2000 *J. Geophys. Res.* 105 7089

# Retrieving vertical profile of aerosol extinction by multi-axis differential optical absorption spectroscopy\*

Wang Yang Li Ang<sup>†</sup> Xie Pin-Hua Chen Hao Xu Jin  
Wu Feng-Cheng Liu Jian-Guo Liu Wen-Qing

(Key Laboratory of Environmental Optical and Technology, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China)

(Received 4 April 2013; revised manuscript received 9 May 2013)

## Abstract

Using the oxygen dimer ( $O_4$ ) information measured by multi-axis differential optical absorption spectroscopy (MAX-DOAS)), an inversion method of vertical profile of aerosol extinction based on nonlinear optimal estimation algorithm is developed. At first we study how to calculate some parameters (weighting function, the covariance matrices of measurement and a priori) of the algorithm and design nonlinear iteration strategy suited to Chinese region where aerosol usually shows rapid variation and high load. Then this inversion method is verified by computer simulation combined with discussion about error source in three typical cases of low, high and elevated aerosol. After that a continuous observation is reported in the city of Hefei. The aerosol optical depth (AOD) derived from MAX-DOAS is compared with that of CE318 sun photometer and the correlation coefficient is 0.94. The total relative error of AOD is about 20%. In addition the aerosol extinction in the lowest altitude (0–0.3 km) is compared with that of visibility meter and the correlation coefficient is about 0.65. The total relative error of surface-near aerosol extinction is about 25%. Both of simulation verification and comparison experiment indicate that the inversion method can well rebuild the vertical profile of aerosol extinction in the troposphere.

**Keywords:** multi-axis differential optical absorption spectroscopy, vertical profile of aerosol extinction, aerosol optical depth, optimal estimation method

**PACS:** 07.88.+y, 42.68.Jg, 42.68.Ca, 42.72.B

**DOI:** 10.7498/aps.62.180705

\* Project supported by National Natural Science Foundation of China (Grant No. 41275038) and the Special Project of Environmental Nonprofit Industry Research, China (Grant No. 201109007).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: [angli@aiofm.ac.cn](mailto:angli@aiofm.ac.cn)