

多轴差分吸收光谱技术的云和气溶胶类型鉴别方法研究*

王杨¹⁾²⁾ Wagner Thomas²⁾ 李昂^{1)†} 谢品华¹⁾ 伍德侠¹⁾ 陈浩¹⁾
牟福生¹⁾ 张杰¹⁾ 徐晋¹⁾ 吴丰成¹⁾ 刘建国¹⁾ 刘文清¹⁾ 曾议¹⁾

1) (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)

2) (Max-Planck Institute for Chemistry, Mainz, Germany, D-55128)

(2013年12月11日收到; 2014年3月17日收到修改稿)

本文研究了多轴差分吸收光谱技术 (MAX-DOAS) 的云和气溶胶类型鉴别方法. 首先研究了晴朗低气溶胶、晴朗高气溶胶、分散云、连续薄云和连续厚云下, 色彩因子、光通量和 O_4 的大气质量因子的变化特征. 分析发现随着云和气溶胶光学厚度的增加, 色彩因子会逐渐减小. 分散云会使色彩因子发生快速变化, 连续云会使各高度角的色彩因子趋于一致. 另外, 厚云会使天顶方向光强剧烈下降, 同时 O_4 大气质量因子大幅度增加. 根据分析结果, 最终形成了 MAX-DOAS 技术的云和气溶胶类型鉴别方案. 利用该鉴别方案, 统计分析了 2012 年 6 月 1 日到 10 月 30 日的 MAX-DOAS 观测结果. 分散云和连续薄云出现频率最高, 达到了 66% 和 14.3%. 两种类型下, NO_2 对流层垂直柱浓度 (V_{CD}) 的平均值相对晴朗低气溶胶下高出 35% 和 66%. 而表征 NO_2 V_{CD} 测量值稳定度的标准偏差大约增大了 2 倍. 连续厚云下 NO_2 V_{CD} 常出现突然的极大值和极小值. 因此实时判别云和气溶胶的种类, 将对 MAX-DOAS 数据的解析和数据质量的保证起到十分重要的作用.

关键词: 多轴差分吸收光谱, 云和气溶胶鉴别, 色彩因子, O_4 大气质量因子

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

DOI: 10.7498/aps.63.110708

1 引言

人类活动使得大气中氮氧化物、硫氧化物和挥发性有机物等痕量气体的浓度大幅度增加. 这些气体在大气化学反应中起了重要的作用, 而且是 PM2.5 颗粒物的前体物^[1], 对中国大范围雾霾污染的形成起了不可忽视的作用. 研究这些痕量气体浓度的时空演化特征和区域传输是理解其在大气化学过程中所起作用 and 制定污染防治方案的基础.

利用天空散射光的多轴差分吸收光谱技术 (Multi-Axis DOAS, MAX-DOAS)^[2-5], 在测量对流层痕量气体垂直柱浓度^[6] (V_{CD}) 和垂直分布^[7] 方面具有很大的应用潜力. 该技术具有连续、实

时、多组分监测等优势, 以太阳光为光源, 系统结构简单, 成本较低, 便于实现大范围组网观测. 但是云和气溶胶使光在大气中的传输变得复杂多变. 云和气溶胶的消光作用会使仪器接收的光通量减小, 从而影响 MAX-DOAS 测量的痕量气体斜柱浓度的反演精度. 光在云和气溶胶内的多次散射将影响痕量气体对流层 V_{CD} 的解析过程^[8-10]. 晴朗无云低气溶胶的条件下, 天空散射以空气分子的瑞利散射为主, 较好的符合单次散射假设, 可以利用几何近似方法计算目标气体的大气质量因子, 快速准确的获得痕量气体对流层 V_{CD} ^[11]. 当气溶胶存在时则可基于 O_4 吸收^[12] 或者大气 ring^[13] 效应, 通过大气辐射传输模型, 采用两步反演方法^[7] 获得较准确的目标气体大气质量因子, 实现准确解

* 国家自然科学基金 (批准号: 41275038)、环保公益性项目 (批准号: 201109007)、安徽省科技攻关计划项目 (批准号: 1301022083) 和安徽省自然科学基金 (批准号: 1308085QF124) 资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: angli@aiofm.ac.cn

析痕量气体对流层 V_{CD} 的目的. 现阶段解决这一问题的主要方法有最优估算法^[14]和查表法^[15,16]. 但是当云存在时, 天空光的散射情况将变得更加复杂, 而且云的厚度相比气溶胶更大, 因此对MAX-DOAS准确解析痕量气体对流层 V_{CD} 带来了更大的困难^[17]. 随着云的分布情况、厚度和高度的不同, 其对MAX-DOAS目标气体吸收路径的影响也就不同. 因此实时判别云的存在及其种类, 将对MAX-DOAS数据的解析和数据质量的保证起到十分重要的作用. 虽然现阶段有激光云高仪^[18]、天空成像仪^[19], MODIS等卫星^[20]可以提供云产品, 但是由于MAX-DOAS组网观测的需求以及卫星数据时空分辨率的限制, 解决如何利用MAX-DOAS本身的观测数据解析云和气溶胶的类型将推进该技术的广泛应用.

Wagner等在1998年针对天顶光DOAS, 提出利用 O_4 的测量获得光在云中的路径, 对天顶光DOAS的测量结果进行修正^[17]. 此外2010年Wagner等提出通过ring效应的观测可以获得云特性^[13]. 2013年谢品华等也模拟研究了ring效应对于气溶胶、云的光学特性的敏感度^[21]. 2013年Van Roozendaal等研究发现400 nm和670 nm的色彩因子(C_{index})将随着气溶胶和云的光学厚度的增加而下降; 同时分散云的存在将使 C_{index} 出现快速的变化^[9]. 同年Wagner等针对2009年夏天在荷兰的Cabauw地区开展的CINDI国际联合实验研究了 C_{index} 、光通量(R)和 O_4 的大气质量因子(M_{O_4})对于云的敏感度^[22].

本文基于无锡市物联网中心的MAX-DOAS实时观测数据, 首先根据云对于MAX-DOAS观测的不同影响, 将云和气溶胶类型分为晴朗低气溶胶、晴朗高气溶胶、分散云、连续薄云和连续厚云等5种类型; 然后分析了不同云和气溶胶类型下, C_{index} , R 和 M_{O_4} 的变化特征, 总结各种类型的判断依据, 建立甄别方案, 针对几种典型天气分析了各参数的阈值. 最后利用该鉴别方案分析了实验期间的云和气溶胶类型分布特征以及对 NO_2 对流层 V_{CD} 观测结果的影响.

2 实验装置以及色彩因子、光通量、 O_4 大气质量因子的计算

2.1 实验装置

实验采用小型自动MAX-DOAS仪器^[3]. 装置的望远镜视场角约为 0.4° , 可以循环获得 5° , 10° ,

20° , 30° , 90° 等高度角的光谱. 仪器采用海洋光学公司的HR2000+光谱仪, 光谱范围从290 nm到425 nm, 仪器分辨率约为0.35 nm. 仪器根据光通量自动调整积分时间, 使整个波段中的最大值达到CCD饱和值的70%, 保证仪器的信噪比. 仪器安装于无锡市物联网大厦(东经 $120^\circ 18' 40''$, 北纬 $31^\circ 33' 53''$)的楼顶平台.

2.2 色彩因子、光通量、 O_4 大气质量因子的计算

由于瑞利散射概率强烈的依赖于波长, 与波长的四次方成反比. 而米散射对于波长不敏感, 与波长的一次方成反比^[23]. 晴朗天气时, 天空散射光中, 瑞利散射起主要作用. 当高气溶胶和有云的天气下, 气溶胶颗粒物和云内颗粒物的米散射成为主要部分. 因此分别选取位于紫外和可见光波段的两个波长附近的光通量, 利用

$$C_{index} = R_{340}/R_{420} \quad (1)$$

计算 C_{index} . 本文选用340 nm光通量(R_{340})和420 nm光通量(R_{420}).

光谱仪的CCD会将光信息转化成电子信号, 转化后的光信号强度单位是count. 在相同的曝光时间下, 获得的光谱信号的强度与入射光通量成线性正比关系. 同时在入射光通量固定时, 光信号的强度也与曝光时间成正比. 因此为了反应不同天气情况下入射光通量的变化, 本文采用380 nm附近, 单位曝光时间下的光信号强度开展分析.

MAX-DOAS技术基于Lambert-Beer定律, 利用DOAS算法^[24], 在336到370 nm波段反演 O_4 的差分斜柱浓度 S_{O_4} 和 NO_2 的斜柱浓度. 本文采用的 O_4 柱浓度的单位是 10^{40} molecules²/cm⁵, 以 U_{O_4} 代表这一单位. O_4 是氧的二聚体, 由于大气中 O_4 的浓度与氧气浓度的平方成正比^[25], 大气中 O_4 浓度的垂直分布主要取决于温度和压强, 其垂直柱浓度 V_{O_4} 可以作为已知量^[26]. 根据无锡市的地理位置, 选取 V_{O_4} 的值为 $1347 U_{O_4}$. O_4 的垂直分布稳定, 因此决定 S_{O_4} 的是 O_4 的大气质量因子(M_{O_4}), 可通过下式计算得到:

$$M_{O_4} = S_{O_4}/V_{O_4}. \quad (2)$$

M_{O_4} 由光在大气中的传输路径决定, 相同太阳天顶角、相对方位角情况下, 气溶胶和云内颗粒物的米散射将强烈的影响光的传输路径, 从而改变 M_{O_4} .

观测实验从2012年6月1日到2012年10月30日. 反演 S_{O_4} 和 NO_2 斜柱浓度时, 为了去除太阳夫

琅禾费结构, 选用2012年9月15号中午12点的天顶光谱作为参考光谱. 采用WINDOAS软件^[27]反演测量光谱. 拟合多项式设置为五阶, 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^[28]. ring的吸收结构采用DOSIS软件^[29]计算得到. 在表1中列举出了DOAS反演中所采用的吸收截面.

图1是2012年9月15日11点58分5°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 1.10×10^{-3} , 与其对应的 O_4 的拟合误差为 $51.4 U_{O_4}$. S_{O_4} 为 $1820 U_{O_4}$, 根据(2)式, M_{O_4} 为1.35. NO_2 的斜柱浓度为 4.29×10^{16} molecules/cm².

表1 反演中所使用的气体吸收截面

气体	截面
O_4	Greenblatt 等, 1990 (296 K) ^[30]
NO_2	Vandaele 等, 1997 (294 K) ^[31]
O_3	Bogumil, 2000 (223 K) ^[32]

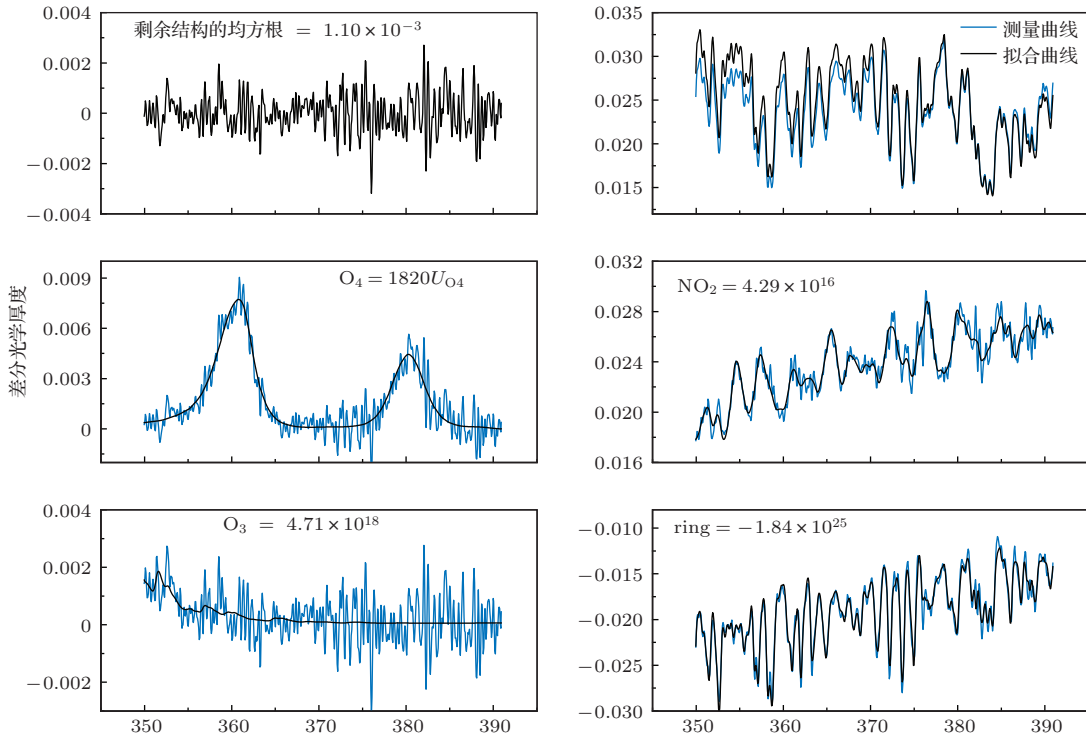


图1 2012年9月15日11点58分5°高度角的测量光谱DOAS拟合的例子, 以2012年9月15号中午12点的天顶光谱作为参考光谱(左上第一幅图的黑曲线反应了拟合的剩余结构. 其他图中灰线是测量曲线, 黑线是拟合曲线)

3 不同云和气溶胶类型对色彩因子、光通量、 O_4 大气质量因子的作用的分析

3.1 不同云类型对色彩因子的影响

根据对MAX-DOAS的不同影响, 将云和气溶胶种类分成五类: 第一, 当完全晴朗无云而且气溶胶光学厚度很小时, 天空散射基本以空气分子瑞利散射为主, 是MAX-DOAS观测的黄金天气, 太阳光的大气传输基本遵循单次散射假设, 可以简单利用几何近似方法获得痕量气体对流层柱浓度; 第二, 当基本无云而且气溶胶光学厚度较大时, 光受颗粒物的米散射和多次散射现象增多, 此时需要利

用基于最优估算法或查表法的两步反演方法, 首先获得气溶胶垂直廓线, 然后利用大气辐射传输模型获得痕量气体的大气质量因子, 才能较好的获得痕量气体对流层柱浓度; 第三, 当云成分散分布(分散云)时, MAX-DOAS视场内一会会有云, 一会无云, 当有云时, 云内光的多次散射会影响痕量气体斜柱浓度, 如果不加以修正, MAX-DOAS将错误的捕捉到峰值; 第四, 当云成连续分布时, MAX-DOAS视场内将时刻充斥的云, 但是如果云的厚度比较薄, 云内的多次散射可能增加痕量气体的吸收路径, 影响垂直柱浓度的解析; 第五当云成连续分布且云的厚度较大时, 光穿透云的能力将大大降低, 因此仪器的信噪比将大幅度降低.

图2中给出5天MODIS的terra(左图)和

aqua(右图)卫星的观测图像^[33], 其中 terra 卫星每天于北京时间 8:00 或 10:30 通过无锡市上空, aqua 卫星每天于北京时间 10:30 或 13:00 通过其上空^[34]. 图 2 中 7 月 22 日左图中的灰色三角标出了无锡市所在位置. 从图中可以看出, 7 月 22 日无锡市上空晴朗无云, 图 3 中展示了无锡市附近 Aeronet 站点的 340 nm 气溶胶光学厚度 (AOD) 日变化^[35], 从中可以看出, 7 月 22 日全天 AOD 基本

小于 0.4, 属于晴朗低气溶胶天气. 9 月 24 日无锡区域也基本晴朗, 但是 AOD 全天大于 1, 属于晴朗高气溶胶天气. 7 月 20 日该区域存在分散分布的云, 属于分散云类型. 6 月 4 日云连续的覆盖整个区域, 但是同时 MODIS 云厚度产品^[20] 均值约为 800, 属于连续薄云类型. 9 月 9 日该区域也被连续云覆盖, 但 MODIS 云厚度产品均值约为 5000, 属于连续厚云类型.

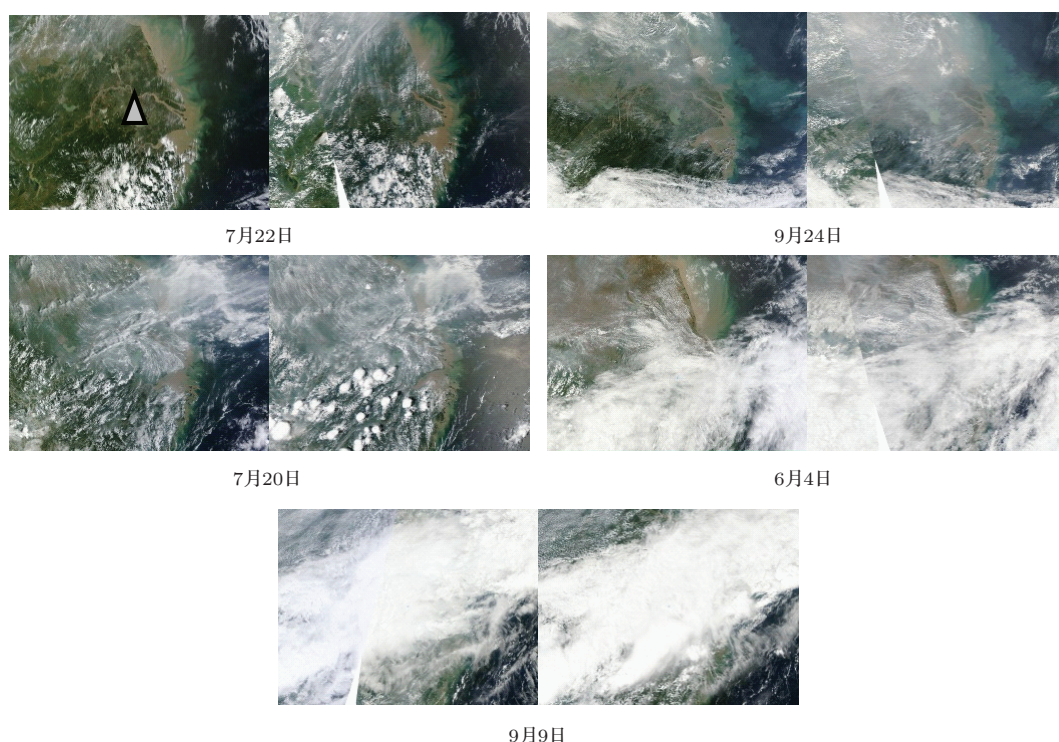


图 2 (网刊彩色) 5 天无锡市上空 MODIS 的观测图像 (其中每一天左侧的图为 terra 卫星观测结果, 右侧图为 aqua 卫星观测结果. 在 7 月 22 日图中灰色三角符合标出了测量点所在位置)

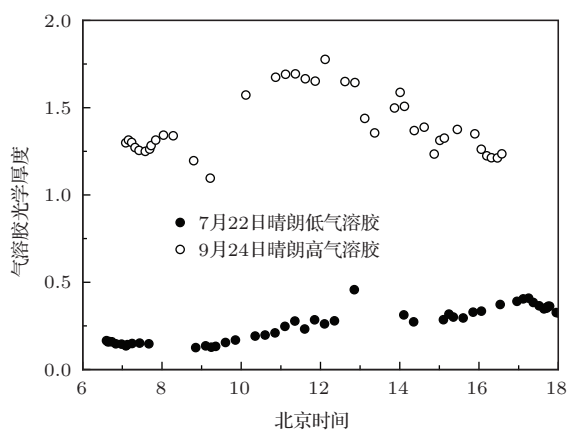


图 3 7 月 22 日和 9 月 24 日无锡市附近太湖 Aeronet 观测站测量的 340 nm AOD

确定 5 天的天气类别后, 以 (1) 式计算的 5 天色

彩因子显示在图 4 中, 图中灰度表示测量高度角. 云和高气溶胶的出现都使得色彩因子明显下降, 因此大的色彩因子是区分出晴朗低气溶胶的可靠标志. 分散云和其他几种天气相比, 色彩因子快速变化是其主要特征. 连续云下, 色彩因子虽然与晴朗天气一样比较平滑, 但是各高度角测量的色彩因子基本相同. 但是在连续云下, 厚云和薄云的色彩因子变化特征基本相同, 难以通过色彩因子判断云的厚度. 此外, 除了连续云的判断需要借助于多个高度角的测量结果, 其他几种天气下, 天顶方向的测量就可以很好的反映出其特征, 因此为了方便处理 (不考虑测量方位角的影响和减少处理工作量), 在云鉴别方案中将主要依赖天顶方向的测量结果进行判断.

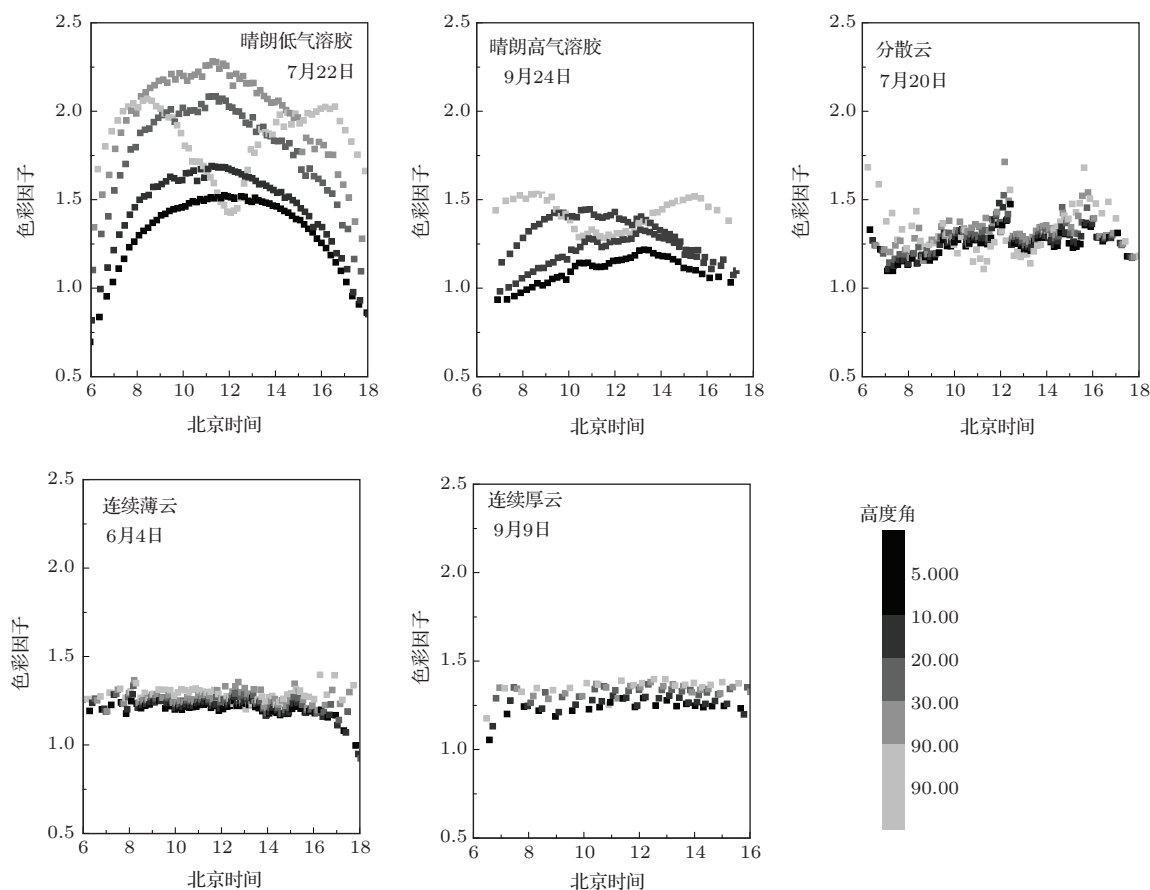


图4 5天各高度角色彩因子的日变化(灰度表示测量高度角)

3.2 云对于光强和 O_4 大气质量因子的影响

如图5所示,相比晴朗低气溶胶,高气溶胶时低高度角光强明显下降,天顶方向在中午时分明显下降,但是在早晚却相对升高.而分散云存在时,各高度角光强明显增加,这是由于对太阳光的散射作用增强所致.当连续薄云存在时,光强与晴朗天气相比变化不明显,而对于连续厚云,由于云的遮蔽作用增大,光强急剧下降.此外,当云存在时,光强的变化频率明显增大,而晴朗天气下,光强的日变化较为平滑.相比色彩因子,气溶胶和云的存在引起的光强的变化并不是单向的,因此不方便于判断天气状况.但是厚云和薄云之间的区别尤为明显,因此光强的急剧下降,尤其是天顶方向变化最为明显,可以作为判断厚云的可靠依据.

图6显示了5种天气情况下 O_4 大气质量因子的变化,相比晴朗低气溶胶,高气溶胶下,低高度角

的值下降而天顶方向的值增加.这是因为对于低高度角观测而言,气溶胶的作用主要导致能见度距离降低,而对于天顶方向而言,气溶胶的作用主要导致多次散射增加, O_4 的吸收路径增长.当分散云存在时天顶方向变化不明显,低高度角 M_{O_4} 下降较多.连续薄云和分散云下的 M_{O_4} 较为相似,而连续厚云相比其他所有的天气情况, M_{O_4} 出现了极为强烈的增加.由于各高度角的 M_{O_4} 变化不一致,而且分散云和连续云下 M_{O_4} 较为相似,因此,通过 M_{O_4} 不能方便的区分高气溶胶、分散云和连续云,但是可以可靠地指示出厚云的出现.

综上所述,将采用天顶方向色彩因子把晴朗低气溶胶天气从其他几种天气中区分出来,然后根据色彩因子变化的平滑程度判断是否是分散云,用各高度角色彩因子的近似程度判断是否是连续云,最后用天顶方向光强的剧烈下降和 O_4 大气质量的大幅度提升判断是否是厚云.

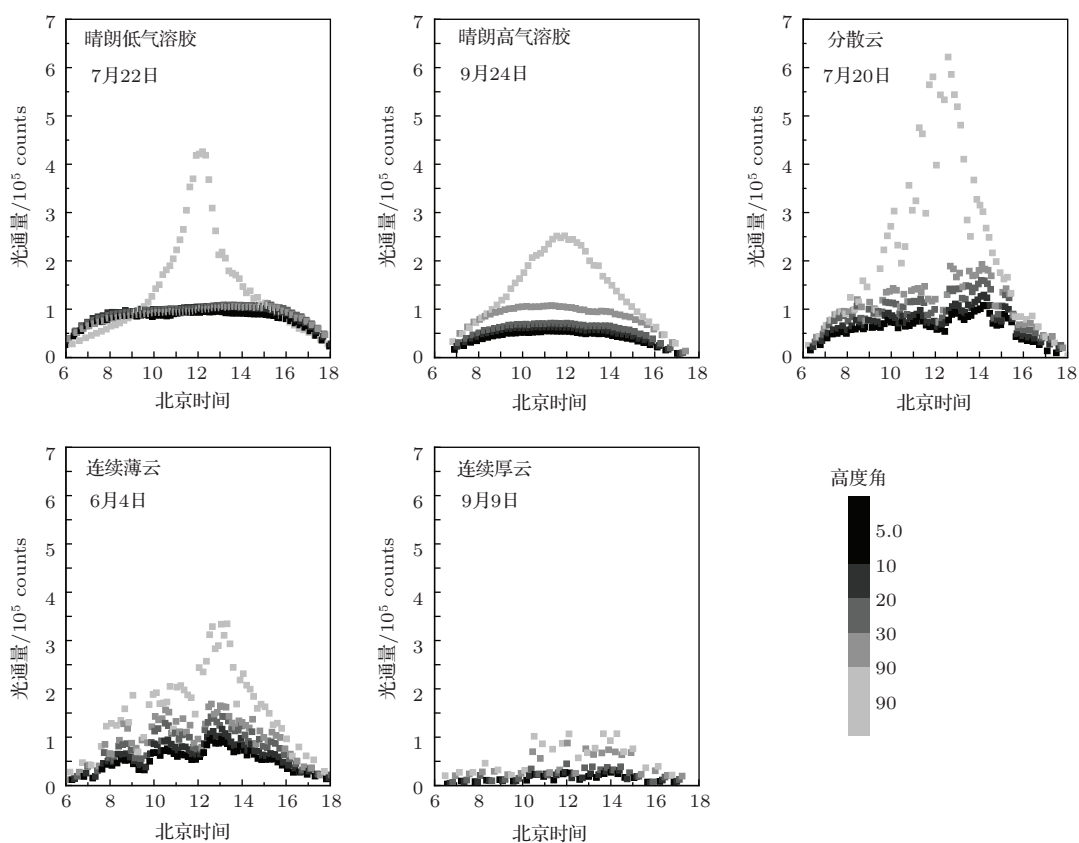


图5 5天各高度角光通量的日变化 (灰度表示测量高度角)

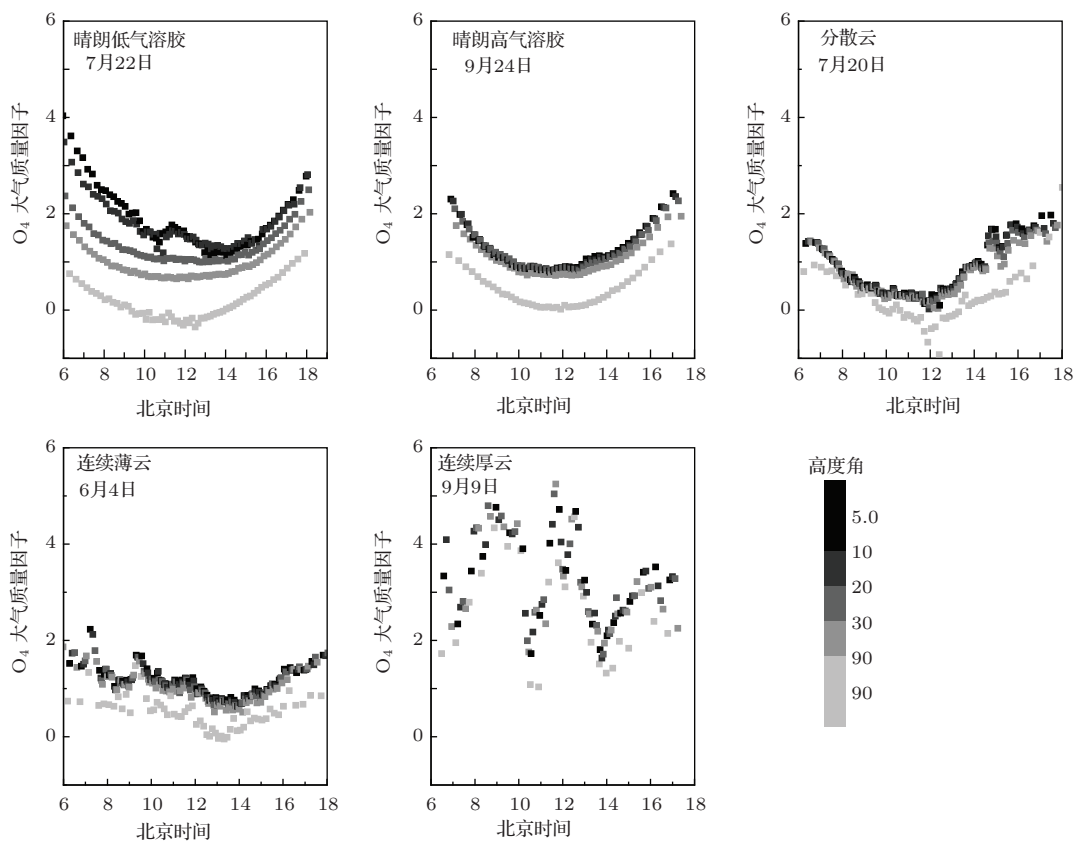


图6 5天各高度角 O₄ 大气质量因子的日变化 (灰度表示测量高度角)

4 云鉴别方案设计

4.1 色彩因子、光通量和 O_4 大气质量因子的归一化

由于一天内色彩因子、光通量和 O_4 大气质量因子都将随着太阳天顶角 (S_{ZA}) 的变化而变化(如图4, 5, 6所示), 为了减少其对太阳天顶角的依赖, 只体现云和气溶胶对于各参数的影响, 方便鉴别方案的设计, 我们将测量值 V_m 与参考值 V_r 相除, 获得归一化的色彩因子和光强 (V_n) 为

$$V_n = V_m/V_r. \quad (3)$$

参考值是指晴朗无云并且气溶胶 AOD 较低且不变时 (AOD 为 0.3), 与太阳天顶角对应的一系列色彩因子和光强. 而对于 M_{O_4} , 归一化的 M_{O_4} ($M_n^{O_4}$) 定义为 M_{O_4} 的测量值 ($M_m^{O_4}$) 和参考值 ($M_r^{O_4}$) 的差为

$$M_n^{O_4} = M_m^{O_4} - M_r^{O_4}. \quad (4)$$

但是参考值的获得难以从实测数据中得到, 因为一天中气溶胶 AOD 不可能持续不变, 大气的扰动也会使实测数据发生抖动. 因此采用 McArtim 大气辐射传输模型 [36] 模拟得到依赖于 S_{ZA} 的一系列参考值. 但是由于仪器的响应等原因, 模拟值和测量值之间存在着不同. 因此需要分别得到色彩因子、光通量和 O_4 大气质量因子的模拟值转化为测量值的转化因子. 对于色彩因子, 由于仪器内滤光片的作用以及光谱仪响应的影响, 转化因子 α_c 与模拟值 S_c 、测量值 M_c 的关系为

$$M_c = S_c/\alpha_c. \quad (5)$$

对于光通量, 由于光谱仪将光信号转化为了以 count 为单位的数字信号, 而大气辐射模型输出的是归一化后的单位为 1 的相对光通量, 因此两者之间也是如 (5) 式的比例关系. 而对于 M_{O_4} , 引起模拟值和测量值不同的原因是, 测量值是基于太阳夫琅禾费参考光谱反演得到的, 参考光谱中存在 O_4 的吸收, 因此测量值 M_n 与模拟值 M_m 之间存在一个常数的差异 M_r , 如下式所示:

$$M_n = M_m - M_r. \quad (6)$$

为了获得转化因子, 我们需要找到晴朗无云且气溶胶 AOD 较低、变化不大的天气下的测量结果. 然后找到与该测量结果变化规律相近的模拟值. 这时模拟值与测量值之间不依赖于太阳天顶角

的差异就是转化因子. 为了获得色彩因子的转化因子 α_c , 我们选择了 3 个 AOD 浓度低于 0.3 且变化幅度较小的上午. 图 7 给出了这三天 Aeronet 获得的 340 nm AOD 的变化情况.

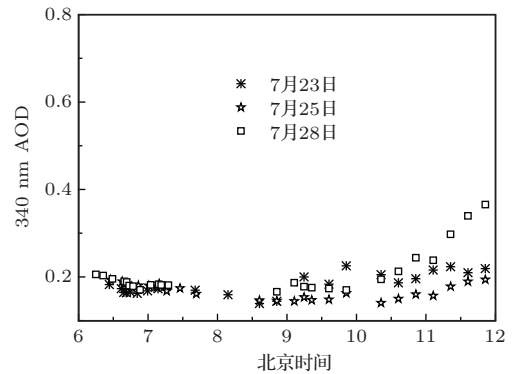


图 7 Aeronet 站点测量的 7 月 22 日, 25 日和 28 日 340 nm 的 AOD

针对三个半天的色彩因子, 拟合得到色彩因子与太阳天顶角 (S_{ZA}) 的关系, 如图 8 所示, 获得一条拟合曲线方程

$$C_{index} = 1.083 + 3.192 \times 10^{-2} \times S_{ZA} - 1.714 \times 10^{-4} \times S_{ZA}^2 - 1.906 \times 10^{-6} \times S_{ZA}^3. \quad (7)$$

拟合曲线相关性系数的平方是 0.9341.

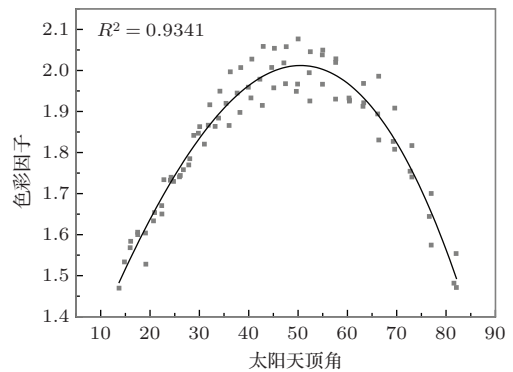


图 8 三天中色彩因子和太阳天顶角的拟合曲线 (拟合的相关性系数平方为 0.9341)

采用 McArtim 模拟得到 AOD 为 0.1, 0.13, 0.15, 0.2 和 0.3 等的不同 S_{ZA} 的色彩因子. 模拟设置如表 2 所示. 然后利用

$$\gamma_c(S_{za}) = S_c(S_{za})/M_c(S_{za}) \quad (8)$$

计算出每个 S_{ZA} 对应的模拟值 $S_c(S_{za})$ 和测量值 $M_c(S_{za})$ 的比例 $\gamma_c(S_{za})$, 如图 9 所示.

如果模拟值对应的气溶胶 AOD 与测量时大气的 AOD 相近, 这时两者的比例 $\gamma_c(S_{za})$ 应不依赖

于 S_{ZA} , 也就是图 9 中的拟合直线的斜率最接近 0. 表 3 给出了图 9 中每条拟合直线的斜率和截距. 可以看到 AOD 为 0.13 的拟合直线的斜率最接近 0, 此时对应的拟合直线截距就是色彩因子的转化因子 α_c , 该值为 0.89. 采用相同的三天, 计算得到光通量模拟值与测量值之间的转化因子为 4.97×10^{-7} . 对于 M_{O_4} , 转化因子由三天中模拟值减去测量值的差的平均值计算得到, 该值为 1.68 (M_T).

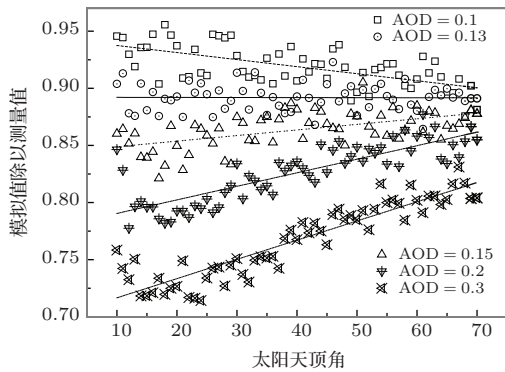


图 9 不同 AOD 的模拟值和测量值之间的比例与太阳天顶角的变化

获得色彩因子、光通量和 O_4 大气质量因子的模拟值和测量值之间的转化因子后, 就

可以模拟得到的 AOD 为 0.3 的不同 S_{ZA} 的参考值. 从而利用 (3) 式和 (4) 式获得归一化的色彩因子 ($C_{n-index}$)、光通量 (R_n) 和 O_4 大气质量因子 (M_{n-O_4}), 如图 10 所示.

表 2 大气辐射传输模型中的参数设置

参数名称	设置
太阳天顶角/(°)	1—80, 间隔为 1
测量高度角/(°)	90
气溶胶光学厚度	0.1, 0.13, 0.15, 0.2, 0.3
气溶胶单次散射反	0.9
气溶胶非对称因子	0.68
气溶胶 Angström 指数	1
盒子型气溶胶层高/km	1
地面反照率/%	5
波长/nm	340, 380, 420

表 3 不同 AOD 下 $\gamma_c(S_{za})$ 与 S_{za} 拟合直线的斜率和截距

输入模型的 AOD	斜率	截距
0.1	-6.17×10^{-4}	0.94
0.13	-6.85×10^{-6}	0.89
0.15	4.90×10^{-4}	0.84
0.2	1.19×10^{-3}	0.78
0.3	1.68×10^{-3}	0.70

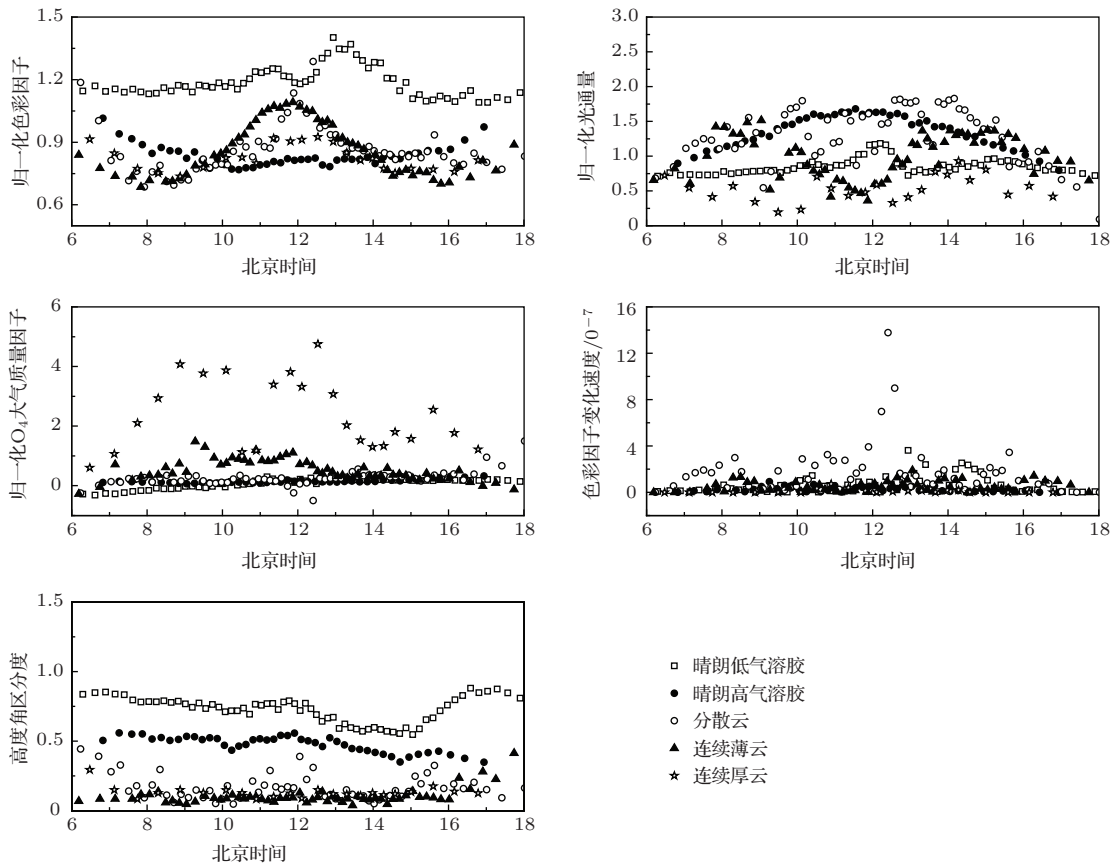


图 10 5 个特征天气类型的归一化的色彩因子 ($C_{n-index}$)、光通量 (R_n) 和 O_4 大气质量因子 (M_{n-O_4}) 以及色彩因子变化速度 (P_{n-c}) 和高度角区分度 (D_c) 的日变化

表4 五种特征天气类型下色彩因子 ($C_{n-index}$)、光通量 (R_n) 和 O_4 大气质量因子 (M_{n-O_4}) 以及色彩因子变化速度 (P_{n-c}) 和高度角区分度 (D_c) 的日均值、标准偏差和样本数量

天气类型		$C_{n-index}$ 的平均 值和标准偏差	R_n 的平均值 和标准偏差	M_{n-O_4} 的平均 值和标准偏差	P_{n-c} 的平均值 值和标准偏差	D_c 的平均值 和标准偏差	样本数量
晴朗低气溶胶	平均值	1.2	0.85	0.076	6.4×10^{-8}	0.73	65
	标准偏差	0.070	0.11	0.16	7.6×10^{-8}	0.09	
晴朗高气溶胶	平均值	0.83	1.4	0.14	2.6×10^{-8}	0.48	45
	标准偏差	0.052	0.24	0.06	2.3×10^{-8}	0.059	
分散云	平均值	0.87	1.3	0.25	1.7×10^{-7}	0.16	61
	标准偏差	0.12	0.39	0.26	2.2×10^{-7}	0.090	
连续薄云	平均值	0.86	0.99	0.51	5.2×10^{-8}	0.10	59
	标准偏差	0.12	0.32	0.37	4.7×10^{-8}	0.060	
连续厚云	平均值	0.82	0.54	2.4	1.0×10^{-8}	0.13	23
	标准偏差	0.062	0.19	1.2	1.8×10^{-8}	0.042	

4.2 色彩因子变化速度和高度角区分度的表征

天顶方向色彩因子变化速度是鉴别分散云的判断标志, 为了将其定量化, 可采用

$$P_c = \frac{\frac{C_{n+1} - C_n}{Vt_2} - \frac{C_n - C_{n-1}}{Vt_1}}{\frac{Vt_1 + Vt_2}{2}} \quad (9)$$

计算色彩因子变化速度 P_c , 其中 C_{n+1} , C_n 和 C_{n-1} 分别是第 $n+1$, n 和 $n-1$ 次测量的天顶方向色彩因子, Vt_2 和 Vt_1 分别是第 $n+1$ 次和第 n 测量之间的时间差以及第 n 次和第 $n-1$ 次之间的时间差. 计算得到 P_c 以后, 将使用 AOD 为 0.3 时的色彩因子参考值对其进行归一化获得 P_{n-c} [22].

色彩因子高度角之间的区分度 (D_c) 是判断连续云的依据. 本文采用一个 MAX-DOAS 测量循环中, 最大值和最小值之间的差作为 D_c .

4.3 云和气溶胶类型鉴别方案和阈值选择

图 10 给出了五种特征天气下五个参数的日变化特征, 表 4 统计得到了各天气下各参数的样本数

量、日均值和标准偏差. 本文第三部分的结论指出, 天顶方向的色彩因子可以把晴朗低气溶胶天气从其他几种天气中区分出来, 表 4 中该天气下的归一化色彩因子 (1.19) 远大于其他几种天气下的值; 可根据色彩因子变化的平滑程度判断分散云, 表 4 中分散云下 P_{n-c} 为 1.67×10^{-7} , 远大于其他几种天气; 用各高度角色彩因子的近似程度判断连续云, 表 4 中连续薄云和连续厚云的 D_c 分别为 0.104 和 0.132, 都明显小于其他天气下的值; 用天顶方向光强的剧烈下降和 O_4 大气质量的大幅度提升判断是否是厚云, 表 4 中连续厚云时 R_n 为 0.537, 远小于其他天气下的值, M_{n-O_4} 为 2.356, 远大于其他天气下的值. 根据以上分析形成了如表 5 所示的云和气溶胶类型鉴别方案. 每一个判断参数的阈值条件是通过实际观测总结得到的. $C_{n-index}$ 是区分晴朗低气溶胶和高气溶胶的重要条件. 根据图 10, 高气溶胶时 (AOD 约为 1) 的 $C_{n-index}$ 全天基本处于 0.9 附近, 而低气溶胶 (AOD 约为 0.2—0.3) 时全天都大于 0.9, 因此选择该值为判断阈值. P_{n-c} 是区分出分散云的标志, 图 10 所示分散云时 P_{n-c} 全天大部分时刻都大于 1×10^{-7} , 而其他几种天气情况均小于该值, 因此 P_{n-c} 的阈值为 1×10^{-7} . D_c 是判断连续云

表5 MAX-DOAS 云和气溶胶类型鉴别方案

云和气溶胶类型	判断依据
晴朗低气溶胶	$P_{n-c} < 1 \times 10^{-7}, D_c > 0.2, C_{n-index} > 0.9$
晴朗高气溶胶	$P_{n-c} < 1 \times 10^{-7}, D_c > 0.2, C_{n-index} < 0.9$
分散云	$P_{n-c} > 1 \times 10^{-7}$
连续薄云	$P_{n-c} < 1 \times 10^{-7}, D_c < 0.2, M_{n-O_4} < 1, R_n > 0.9$
连续厚云	$P_{n-c} < 1 \times 10^{-7}, D_c < 0.2, M_{n-O_4} > 1, R_n < 0.9$

的重要条件, 同样由图 10 可以看到, 连续云时, D_c 均小于 0.2, 晴朗天气下的 D_c 远大于该值, 分散云虽然有部分点小于 0.2, 但是 P_{n-c} 才是其重要的判断依据. 为了较为谨慎的判断厚云, 我们采用 R_n 和 M_{n-O_4} 两个条件同时满足作为判断依据, 由图 10 可以看出, 厚云时, 全天大部分点的 M_{n-O_4} 均大于 1, 而 R_n 均小于 0.9. 虽然晴朗低气溶胶时的 R_n 也小于 0.9, 但是其 M_{n-O_4} 则远小于 1, 因此不会引起对厚云的误判.

5 云和气溶胶鉴别结果及对 NO_2 对流层垂直柱浓度测量结果的影响

采用表 5 中所示的鉴别方案, 分析得到了 MAX-DOAS 每个测量循环的云和气溶胶类型. 表 6 中列举出了从 6 月 1 日到 10 月 30 日实验期间各种天气类型的出现次数, 以及在总测量数中所占比例. 在各种类型中, 分散云所占比例最高, 达到

了 66.5%, 其次是连续薄云 (14.3%), 连续厚云出现的比例只有 3.5%. 因此在分散云和连续薄云下, 解决如何修正 MAX-DOAS 测量的痕量气体结果尤为重要. 适合 MAX-DOAS 测量的黄金时段, 也就是晴朗低气溶胶天气所出现的比例只有 9.1%. 高气溶胶出现的比例为 6.6%. 此外针对 5 个特征天气, 图 11 中给出了每一天云和气溶胶类型鉴别结果的日变化. 图中灰色米字代表云种类, 0 代表薄云, 1 代表晴朗低气溶胶, 2 代表晴朗高气溶胶, 3 代表分散云, 4 代表连续薄云, 5 代表连续厚云. 在特征天气下, 各种云类型也会在一天内发生快速变化. 7 月 22 日, 晴朗低气溶胶和分散云会交替出现, 这说明即使在基本晴朗的天气里, 也会不时有少量云出现. 7 月 20 日和 6 月 4 日显示出分散云和连续薄云可能会相互交替, 因为在这种天气下, 云的多少可能会快速变化, 云量较多时就会鉴别为连续薄云而较少时又会鉴别为分散云. 9 月 9 日连续厚云的鉴别比较稳定, 这种天气下, 往往云层很厚, 短时间内云的种类不会有太大变化.

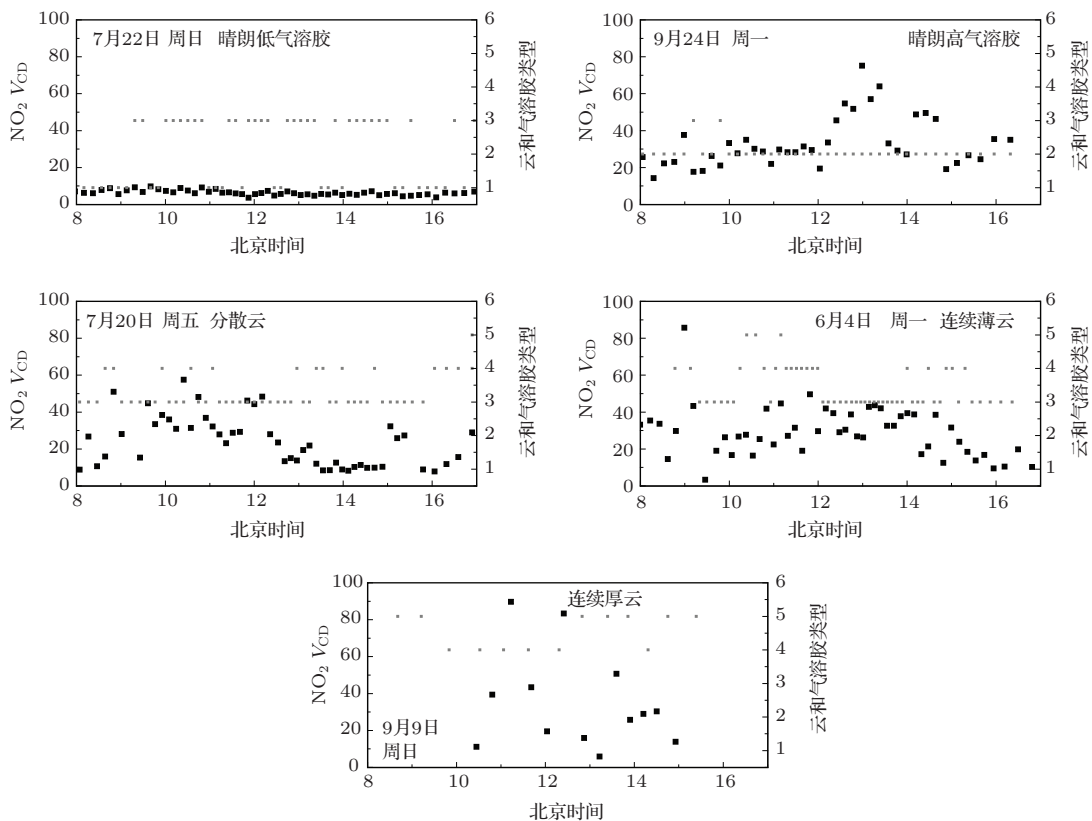


图 11 5 天中 NO_2 对流层 V_{cd} 的日变化曲线以及云和气溶胶类型的日变化

云和气溶胶类型的鉴别是为了更好的保证痕量气体测量结果的可靠性. 图 11 中对比了 5 天不同天气情况下几何近似方法计算的 MAX-DOAS

测量的 NO_2 对流层垂直柱浓度 (V_{CD}) 的日变化. 同时表 6 统计了整个测量时段, 不同天气类型下, $\text{NO}_2 V_{CD}$ 的平均值和标准偏差. 高气溶胶下, 由

于气溶胶颗粒的多次散射会增加 NO_2 的吸收路径,因此几何近似方法无法得到准确的大气质量因子,此时可能会高估 V_{cd} .表6中该天气下 V_{cd} 的测量值是低气溶胶的两倍可能与该因素有关.分散云下,MAX-DOAS视场内有时有云,有时无云,有云时,云内光的多次散射将增加 NO_2 的吸收路径,可能会使 V_{cd} 测量值偏高,而无云时 V_{cd} 又较准确,值较低.表6中该天气下, V_{cd} 标准偏差是晴朗天气下的两倍,反映了其较快的变化速度;同时 V_{cd} 仅比晴朗天气下稍高(相对增加35%)可能与云内的多

次散射有关.连续薄云下, V_{cd} 的平均值和标准偏差都与分散云类似.但是它们都比分散云下的值稍大,这可能是由于望远镜视场内存在云的概率更高所致.图11中 V_{cd} 的日变化曲线也显示出分散云和连续薄云下的 V_{cd} 日变化特征基本类似.连续厚云下, V_{cd} 平均值相比薄云没有明显的变化,但是标准偏差有所增大.从图11中9月9日的测量结果也可以看出,该天气下, V_{cd} 会出现突然的极高值和极低值,此时云对测量值的剧烈影响可能是主要原因.

表6 2012年6月1日到10月30日之间5种云和气溶胶类型的出现次数、百分比,及各类型下 NO_2 对流层 V_{cd} 的统计平均值、标准偏差

天气类型	出现次数(总 测量数 6433)	出现百分比/%	平均值/		标准偏差/	
			10^{15} molecules·cm $^{-2}$	10^{15} molecules·cm $^{-2}$	10^{15} molecules·cm $^{-2}$	10^{15} molecules·cm $^{-2}$
晴朗低气溶胶	587	9.1	15.1	9.8		
晴朗高气溶胶	426	6.6	30.2	16.2		
分散云	4277	66.5	20.4	20.3		
连续薄云	920	14.3	25.1	23.0		
连续厚云	223	3.5	26.1	27.3		

但是需要说明本文还无法确定在各种天气下MAX-DOAS NO_2 V_{cd} 不同的原因.云和气溶胶内多次散射使吸收路径的增加、 NO_2 光解速率的变化以及 NO_2 的排放源的变化均可以影响 V_{cd} 的测量值.未来将使用长期观测数据和与其他观测数据的对比,研究不同天气下,引起 NO_2 V_{cd} 测量值差异的原因.

6 结 论

本文研究了MAX-DOAS技术的云和气溶胶类型鉴别方法.首先利用MODIS卫星成像产品选取晴朗低气溶胶、晴朗高气溶胶、分散云、连续薄云和连续厚云等不同天气类型的5天,分析各种类型下340 nm和420 nm的色彩因子、380 nm光通量和 O_4 大气质量因子的变化特征.研究发现大的气溶胶和云光学厚度会使色彩因子减小,而且分散云会使其出现快速的大幅度变化,而连续云又会使各高度角的色彩因子无法区分.光通量和 O_4 大气质量因子对于云的厚度十分敏感,但是其他云和气溶胶的类型对于两者的影响比较复杂模糊.最终形成了通过天顶方向观测的色彩因子数值、变化速度和高度角区分度等参数判断云和气溶胶种类,并利用 O_4 大气质量因子和光通量判断云的厚度.

由于一天内色彩因子、光通量和 O_4 大气质量因子都将随着太阳天顶角的变化而变化.为了减少各参数对太阳天顶角的依赖,只体现云和气溶胶的影响,方便鉴别方案的设计,通过辐射传输模型获得了晴朗且气溶胶AOD不变的天气条件下,与天顶角对应的一系列参考值,并用其将测量值归一化.然后量化了色彩因子变化速度和高度角区分度,使其方便判断.经过分析选择了归一化的色彩因子、光通量、 O_4 大气质量因子以及色彩因子变化速度和高度角区分度的阈值.最终形成了五种云和气溶胶类型的鉴别方案.

通过分析五个月的鉴别结果,我们发现分散云的出现频率最高,达到了66%,其次是连续薄云,占到14.3%,而适于MAX-DOAS观测的晴朗低气溶胶天气只占了9.1%.因此分析和修正分散云和连续薄云条件下MAX-DOAS痕量气体的测量结果尤为重要.通过与晴朗低气溶胶条件下的MAX-DOAS测量的 NO_2 对流层垂直柱浓度比较发现,分散云和连续云下垂直柱浓度的平均值相对高出35%到66%.而表征 NO_2 测量值稳定度的标准偏差大约增大了2倍.此外,连续厚云下,垂直柱浓度常出现突然的极高值和极低值.未来将进一步研究各种云和气溶胶类型下,MAX-DOAS测量的 NO_2 对流层垂直柱浓度变化的原因.

未来我们将把本文研究获得的云鉴别方案应

用到长期监测中, 并将鉴别结果与其他地基、卫星的云产品对比, 验证该方法的准确性. 进一步研究不同气溶胶和云类型下痕量气体测量结果的修正方法和变化特征, 并应用于改进 MAX-DOAS 的卫星数据校验工作.

感谢德国马普化学所卫星组 Thomas Wagner 教授在数据分析中给予的帮助; 感谢无锡中科光电技术有限公司提供观测数据.

参考文献

- [1] Zhu X L, Zhang Y H, Zeng L M, Wang W 2005 *Research of Environmental Sciences* **18** 1 (in Chinese) [朱先磊, 张远航, 曾立民, 王玮 2005 环境科学研究 **18** 1]
- [2] Hönninger G, von Friedeburg C, Platt U 2004 *Atmos. Chem. Phys.* **4** 231
- [3] Li A, Xie P H, Liu C, Liu J G, Liu W Q 2007 *Chin. Phys. Lett.* **24** 2859
- [4] Wang Y, Xie P H, Li A, Zeng Y, Xu J, Si F Q 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 114209 (in Chinese)[王杨, 谢品华, 李昂, 曾议, 徐晋, 司福祺 2012 物理学报 **61** 114209]
- [5] Wang Y, Li A, Xie P H, Zeng Y, Wang R B, Chen H, Pei X, Liu J G, Liu W Q 2012 *Chin. Phys. B* **21** 114211
- [6] Xu J, Xie P H, Si F Q, Dou K, Li A, Liu Y, Liu W Q 2010 *Spectroscopy and Spectral Analysis* **30** 2464 (in Chinese) [徐晋, 谢品华, 司福祺, 窦科, 李昂, 刘宇, 刘文清 2010 光谱学与光谱分析 **30** 2464]
- [7] 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]
- [8] Wang Y, Xie P H, Li A, Si F Q, Zeng Y, Wu F C 2012 *Acta Opt. Sin.* **32** 0901002 (in Chinese) [王杨, 谢品华, 李昂, 司福祺, 曾议, 吴丰成 2011 光学学报 **32** 0901002]
- [9] Gielen C, Van Roozendaal M, Hendrik F, Fayt C, Hermans C, Pinardi G, Vlemmix T 2013 *Geophysical Research Abstracts* **15** EGU 2013-7153-1
- [10] Wu F C, Xie P H, Li A, Si F Q, Wang Y, Liu W Q 2011 *Acta Opt. Sin.* **31** 1101003 (in Chinese) [吴丰成, 谢品华, 李昂, 司福祺, 王杨, 刘文清 2011 光学学报 **31** 1101003]
- [11] Ma J Z, Beirle S, Jin J L 2012 *Atmos. Chem. Phys. Discuss.* **12** 26719
- [12] Wagner T, Dix B, Friedeburg C v 2004 *J. Geophys. Res.* **109** 22205
- [13] Wagner T, Deutschmann T, Platt U 2009 *Atmos. Meas. Tech.* **2** 495
- [14] 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]
- [15] Wagner T, Beirle S, Brauers T 2011 *Atmos. Meas. Tech. Discuss.* **4** 3891
- [16] Wu F C, Xie P H, Li A, Si F Q, Xu J, Fan G Q, Liu W Q, Liu W Q 2013 *Acta Opt. Sin.* **33** 0601002 (in Chinese) [吴丰成, 谢品华, 李昂, 司福祺, 徐晋, 范广强, 刘建国, 刘文清 2013 光学学报 **33** 0601002]
- [17] Wagner T, Erié F, Marquard L, Otten C, Pfeilsticker K, Senne T, Stutz J, Platt U 1998 *J. Geophys. Res.* **103** 25307
- [18] Huang X Y, Xia J R, Pu L B, Zhang X F, Lei Y, Huang J S, Wang W W, Wu D, Jiang C H, Hu H F 2013 *Chinese Journal of Quantum Electronics* **30** 73 (in Chinese) [黄兴友, 夏俊荣, 卜令兵, 张雪芬, 雷勇, 黄建松, 王巍巍, 吴迪, 蒋昌华, 胡汉峰 2013 量子电子学报 **30** 73]
- [19] Heinle A, Macke A, Srivastav A 2010 *Atmos. Meas. Tech.* **3** 557
- [20] <http://ladsweb.nascom.nasa.gov/data/search.html> [2013-12-08]
- [21] Pei X, Li A, Xie P H, Wu F C, Wang Y, Xu J 2013 *Journal of Atmospheric and Environmental Optics* **8** 354 (in Chinese)[裴显, 李昂, 谢品华, 吴丰成, 王杨, 徐晋 2013 大气与环境光学学报 **8** 354]
- [22] Wagner T, Beirle S, Dörner S, Friess U, Remmers J, Shaiganfar R 2013 *Atmos. Meas. Tech. Discuss.* **6** 10297
- [23] Wagner T, Beirle S, Deutschmann T 2009 *Atmos. Meas. Tech.* **2** 113
- [24] Platt U, Stutz J 2008 *Differential Optical Absorption Spectroscopy*. Berlin: Springer-Verlag Heidelberg p133
- [25] Greenblatt G D, Orlando J J, Burkholder J B 1990 *J. Geophys. Res.* **95** 18577
- [26] Wagner T, Friedeburg C von, Wenig M 2002 *J. Geophys. Res.* **107** D 204424
- [27] Fay C, van Roozendaal M 2009 WinDOAS 2.1 Software User Manual, IASB/BIRA (<http://www.oma.be/GOME/GOMEBRO/WinDOAS-SUM-210b.pdf>)
- [28] Solomon S, Schmeltekopf A L, Sanders R W 1987 *J. Geophys. Res.* **92** 8311
- [29] Kraus S 2006 University of Mannheim http://hci.iwr.uni-heidelberg.de/publications/dip/2006/Kraus_PhD_2006.pdf
- [30] Greenblatt G D, Orlando J J, Burkholder J B, Ravishankara A R 1990 *J. Geophys. Res.* **95** 18577
- [31] Vandaele A C, Hermans C, Simon P C, Carleer M, Collins R, Fally S, M'erieenne M F, Jenouvrier A, Coquart B 1998 *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **59** 171
- [32] 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. Photobiol. A* **157** 167
- [33] http://aeronet.gsfc.nasa.gov/cgi-bin/bamgo-mas_interactive [2013-12-08]
- [34] https://nsidc.org/data/modis/terra_aqua_differences/ [2013-12-08]
- [35] <http://aeronet.gsfc.nasa.gov/>[2013-12-08]
- [36] Deutschmann T, Beirle S, Frieß U, Grzegorski M, Kern C, Kritten L, Platt U, Prados-Romána C, Pukite J, Wagner T, Werner B, Pfeilsticker K 2011 *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* **112** 1119

Research of classification of cloud and aerosol using multi-axis differential optical absorption spectroscopy*

Wang Yang¹⁾²⁾ Wagner Thomas²⁾ Li Ang^{1)†} Xie Pin-Hua¹⁾ Wu De-Xia¹⁾ Chen Hao¹⁾
 Mou Fu-Sheng¹⁾ Zhang Jie¹⁾ Xu Jin¹⁾ Wu Feng-Cheng¹⁾ Liu Jian-Guo¹⁾
 Liu Wen-Qing¹⁾ Zeng Yi¹⁾

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

2) (Max-Planck Institute for Chemistry, Mainz, Germany, D-55128)

(Received 11 December 2013; revised manuscript received 17 March 2014)

Abstract

The classification of cloud and aerosol by means of multi-axis differential optical absorption spectroscopy (MAX-DOAS) is studied in this paper. Firstly, the characters of variation of color index (CI), radiance, and O_4 air mass factor (AMF) are analyzed in the following kinds of weather cases, i.e. “clear and low aerosol load”, “clear and high aerosol load”, “broken cloud”, “continuous and thin cloud” as well as “continuous and thick clouds”. We found that the CI consecutively decreases with the growing up of optical depth of cloud and aerosol. And the speedy temporal variation of CI is always going along with the occurrence of broken cloud. For the case of continuous cloud, the CIs of observations for all the elevation angles are similar to each other. At the same time, the thick cloud case normally causes radiance dropping and O_4 AMF growing up strongly. Based on these characters, the scheme of cloud classification for MAX-DOAS is built. Using this scheme, the classification results for the MAX-DOAS observations in the period from 1 June 2012 to 30 October 2012 are analyzed statistically. The occurrence probabilities of the broken cloud and thin continuous cloud are the two largest weather kinds. The percentage of the broken cloud in all the observations is 66%, and that of the thin continuous cloud case is 14.3%. For these two kinds of weathers, the mean NO_2 tropospheric vertical column densities (V_{CD}) are respectively 35% and 66% larger than the value for the clear and low aerosol. Meanwhile, the standard deviation, which represents the stability of the measured NO_2 V_{CD} is two times larger than that of the clear and low aerosol cases. In the weather of thick continuous cloud, suddenly appearing of peak and valley are often observed. In conclusion, the real time classification of cloud and aerosol is very important and valuable in analyzing of MAX-DOAS data and the guarantee of data quality.

Keywords: multi-axis differential optical absorption spectroscopy, classification of cloud and aerosol, color index, O_4 air mass factor

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

DOI: 10.7498/aps.63.110708

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 41275038), the Special Project of Environmental Nonprofit Industry Research, China (Grant No. 201109007), the Science and Technology Research Projects of Anhui province, China (Grant No. 1301022083), and the Anhui Province Natural Science Foundation, China (Grant No. 1308085QF124).

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