

MAX-DOAS 仪器观测大气 Ring 效应及对气溶胶参数的敏感性研究

牟福生^{1,3}, 谢品华^{1,2}, 李昂¹, 王杨¹, 吴丰成¹, 徐晋¹, 张杰¹, 陈浩¹, 孙友文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, 安徽 合肥 230031
2. 中国科学技术大学环境科学与光电技术学院, 安徽 合肥 230031
3. 淮北师范大学物理与电子信息学院, 安徽 淮北 235000

摘要 Ring 效应是指大气中 O₂ 和 N₂ 分子对太阳光的转动拉曼散射致使太阳夫琅禾费结构变浅(被填充)的现象。大气气溶胶能够改变光子在大气中的光程和大气散射性质, 进而影响到光子发生转动拉曼散射的几率(RSP), 最终影响填充效应。通过观测 RSP 在不同气溶胶状态下的变化, 可以反演得到气溶胶参量信息。采用地基多轴差分吸收光谱(multi-axis differential optical absorption spectroscopy, MAX-DOAS)方法在晴朗无云天气下对 Ring 效应进行了观测, 并把测量值和模型值进行了对比, 两者一致性较好; 选取大气辐射传输模型 McArtim 研究了在不同大气条件下 Ring 效应对气溶胶参数等的灵敏度, 结果表明在大多数测量情况下, 气溶胶光学厚度和边界层高度对 RSP 影响较大, 在 90°仰角时, AOD 从 0.1 增加到 1, RSP 减少了 24.6%, 边界层高度从 1 km 增加到 3 km, RSP 增加了 4.4%。研究表明, Ring 效应对气溶胶光学厚度和边界层高度较为敏感, 这为反演气溶胶的垂直分布提供了一种新方法。

关键词 MAX-DOAS; Ring 效应; 转动拉曼散射几率; 气溶胶参量

中图分类号: X122 **文献标识码:** A **DOI:** 10.3964/j.issn.1000-0593(2016)09-2725-07

引言

十九世纪六十年代研究人员发现了地球大气系统中散射光中夫琅禾费结构相比直射太阳光中变浅的现象, 后被称为 Ring 效应^[1]。自发现以来在过去几十年间其一直是大量理论和观测研究的热点, 近年来研究者才较为一致认为大气分子对太阳光的转动拉曼散射是产生这种填充效应的主要原因^[2-4]。由于 Ring 效应通常比很多大气痕量气体吸收造成的光谱结构变化更明显, 因此在利用被动 DOAS 技术^[5]获取痕量气体浓度信息时, 精确的 Ring 效应纠正正在光谱解析过程中具有关键作用^[6]。

在 DOAS 分析中一般将 Ring 效应作为一种伪大气吸收结构^[7]参与拟合过程从而排除其干扰, 对 Ring 效应自身及应用研究较少。近些年利用 Ring 效应来测量云高和云压已经成功运用于 TOMS, GOME 和 OMI 等卫星观测仪器上^[8-10], 但利用地基仪器遥测大气 Ring 效应并根据观测结果研究大气气溶胶和云性质方面研究较少。2007 年德国马普化学所 Wagner 提出了利用 McArtim^[11]模型定量模拟 Ring

效应, 并给出了 Ring 谱有效吸收截面的计算方法^[12]。2009 年又利用 MAX-DOAS 测量 Ring 效应并和大气辐射传输模型 McArtim 模拟结果进行了定量对比, 研究了通过测量 Ring 效应获取气溶胶性质的可能性^[13]。

国内学者在 Ring 效应研究中, 通常将其作为反演痕量气体的干扰进行扣除, 少有对 Ring 效应自身应用进行研究^[14-15]。为研究基于地基 MAX-DOAS 观测的 Ring 效应反演气溶胶性质的可行性, 本文首先基于地基 MAX-DOAS 观测大气 Ring 效应并和模型结果进行了对比, 验证仪器测量 Ring 效应的能力。其次选取了大气辐射传输模型 McArtim 在不同大气条件下对 Ring 效应进行了较为全面的模拟, 并开展了 Ring 效应对气溶胶各参量的灵敏度分析。

1 原理

1.1 Ring 光谱有效吸收截面的计算

通常 Ring 光谱定义为测量光强中非弹性散射光强与弹性散射光强之比^[16]

收稿日期: 2015-03-02, 修订日期: 2015-07-18

基金项目: 国家自然科学基金项目(41275038, 61275151), 环保公益性项目(201409006), 国家高技术研究发展计划(863 计划)项目(2014AA06A511, 2014AA06A508), 安徽省自然科学基金项目(1308085QF124)资助

作者简介: 牟福生, 1987 年生, 中国科学院安徽光学精密机械研究所博士研究生 e-mail: fsmou@aiofm.ac.cn

$$f(\lambda) = \frac{R_{\text{inel. in}}(\lambda) - R_{\text{inel. out}}(\lambda)}{R_{\text{el}}(\lambda)} \quad (1)$$

其中 $R_{\text{el}}(\lambda)$ 表示假设弹性散射的辐射强度, $R_{\text{inel. in}}(\lambda)$ 表示入射太阳光中从其他波长发生非弹性散射至波长 λ 的辐射强度, $R_{\text{inel. out}}(\lambda)$ 表示波长 λ 处散射到其他波长的辐射强度。进一步推导后公式可简化为

$$f(\lambda) = P_{\text{Raman}}(\lambda_0) f_{\text{norm}}(\lambda) \quad (2)$$

右式第一项是转动拉曼散射几率 ($P_{\text{Raman}}(\lambda)$, RSP), 第二项是 Ring 谱的有效吸收截面 $f_{\text{norm}}(\lambda)$ 。由于模型输出结果为拉曼散射几率(RSP), 因此将 Ring 光谱有效吸收截面 $f_{\text{norm}}(\lambda)$ 代入到拟合过程中, 拟合结果即为 RSP 并可以直接和模型结果进行对比。

1.2 Ring 效应的模拟

选用全球形大气辐射传输模型 McArtim^[17], 该模型基于统计分析可直接给出所有光子中发生转动拉曼散射光子所占的比率(RSP)且与其他辐射传输模型相比具有较好的一致性, 因此极为适合进行 Ring 效应的模拟。McArtim 计算需要很多输入参数, 其中温度、压力以及痕量气体廓线均采用美国标准大气, 其他设置如表 1。

表 1 McArtim 模型参数设置(标准情况)

Table 1 Parameter settings in McArtim (standard situation)

parameter	unit	value
SZA	deg	88.89, 83.53, 78.22, 73.17, 68.48, 64.24, 60.55, 57.51, 55.25, 53.85, 53.38, 53.88, 55.31, 57.6, 60.66, 64.37, 68.63, 73.33, 78.39, 83.71, 89.05
		116.02, 120.18, 124.69, 129.64, 135.1, 141.14, 147.82, 155.14, 163.07, 171.46, 180.11, 188.75, 197.13, 205.03, 212.34, 218.99, 225.01, 230.45, 235.38, 239.87, 244.01
		117.16°E, 31.91°N
		Phase Function
SSA		0.9
g		0.68
Albedo		0.05
AOD		0.1, 0.3, 0.6, 1
bh	km	1.5, 3
bw		0.8
β	km	5
Elevation angle	deg	3, 6, 8, 10, 90
Wavelength (λ)	nm	350
Photon Number		1 million

注: SSA: 单次散射反照率; g: 非对称因子; bh: 气溶胶边界层高度; bw: 边界层内气溶胶权重; β : 自由对流层高度

2 实验部分

图 1 为搭建的二维 MAX-DOAS 系统, 望远镜将天空散射光汇聚到光纤束中, 经光纤束传导到光谱仪, 经光谱仪分光和 CCD 的采集, 获得光谱信息。它能够在 $0^\circ \sim 90^\circ$ 的仰

角和 $0^\circ \sim 360^\circ$ 范围的方位角内任意扫描。系统参加了外场实验并和其他仪器进行了对比验证, 一致性较好^[18-19]。实验地点位于合肥, 选择了无云天气下观测, 时间为 2013 年 11 月 29 日和 12 月 2 日。望远镜指向正北方向, 高度角分别为 $3^\circ, 6^\circ, 8^\circ, 10^\circ$ 和 90° (天顶), 测量波段为 295.7~385.1 nm, 光谱分辨率约为 0.34 nm(FWHM)。为了获取准确 AOD, 测量地点还安装了太阳光度计 CE318。

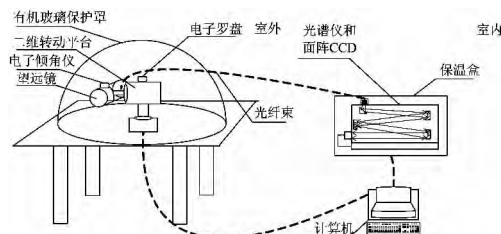


图 1 MAX-DOAS 实验装置结构图

Fig 1 MAX-DOAS experimental structure chart

3 结果与讨论

3.1 Ring 效应获取

利用 MAX-DOAS 反演 Ring 效应的过程中, 拟合波段为 335~367 nm, 选取 90° 方向测量谱为参考谱。除了 Ring 结构外, 拟合过程中包含气体种类有 O_4 (296 K, Hermans), NO_2 (298 K, vanDaele), O_3 (223 K, Bogumil)。为将测量结果和模型结果进行对比, 将模型获取的参考谱 RSP 与拟合结果相加, 获取 Ring 效应的测量绝对值并和模型值相比。由太阳光度计的结果知(图 3 所示), 11 月 29 日和 12 月 2 日的 AOD 分别为 0.2~0.3 和 0.5~0.9, 取 0.3 和 0.6 分别作为这两天的 AOD 值并带入模型中, 获得了 11 月 29 日和 12 月 2 日的 Ring 模拟结果。其中两天参考光谱的 RSP 分别为 5.9×10^{-2} 和 5.4×10^{-2} 。2013 年 11 月 29 日 11:11 合肥站 10° 仰角光谱的拟合结果如图 2 所示。

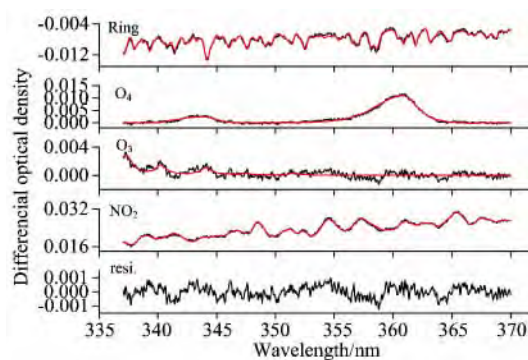


图 2 测量光谱反演示例

Fig 2 Fitting example of a measurement spectra

从图 2 的反演过程中得到 Ring 效应的 dRSP 为 8.24×10^{-3} , 11 月 29 日参考谱的 RSP 为 5.9×10^{-2} , 该测量光谱的绝对 RSP 为 5.98×10^{-2} 。按以上方法处理两天测量数据, 获得 Ring 效应的 RSP 结果如图 4。

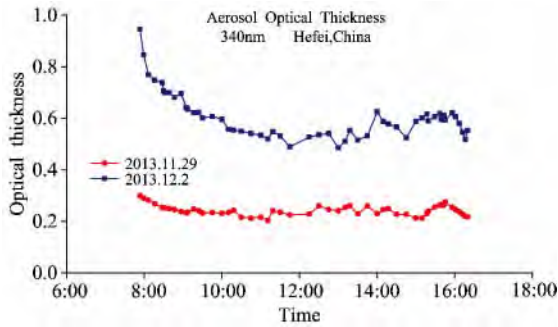


图 3 太阳光度计(CE318)测量的 340 nm 的气溶胶光学厚度日变化

Fig 3 Diurnal variation of aerosol extinction at 340 nm measured by sunphotometer(CE318)

3.2 测量结果和模型对比

图 5 给出了正北指向望远镜在两天内测量 RSP 和模型 RSP 对比, 结果一致性较好。由图可知各仰角 RSP 一般随着 AOD 的增加而减少, 这主要是 AOD 增加后沿望远镜视线方向吸收路径长度减少所致。早晚测量值要高于模拟值, 这主要是由于云和气溶胶的时空变化所引起的。此外模型中假设的单次散射反照率 SSA(0.9)和非对称因子 $g(0.68)$ 可能与实际情况有差异, 也会对结果产生影响。

3.3 气溶胶参数的敏感性分析

3.3.1 AOD 对 RSP 影响

图 6 中给出了其他气溶胶参量不变时不同气溶胶光学厚度 RSP 和 AOD=0.1 时 RSP 的差异。结果表明各仰角 RSP 强烈依赖 AOD, RSP 随 AOD 的增加而降低, 以 12:00 天顶

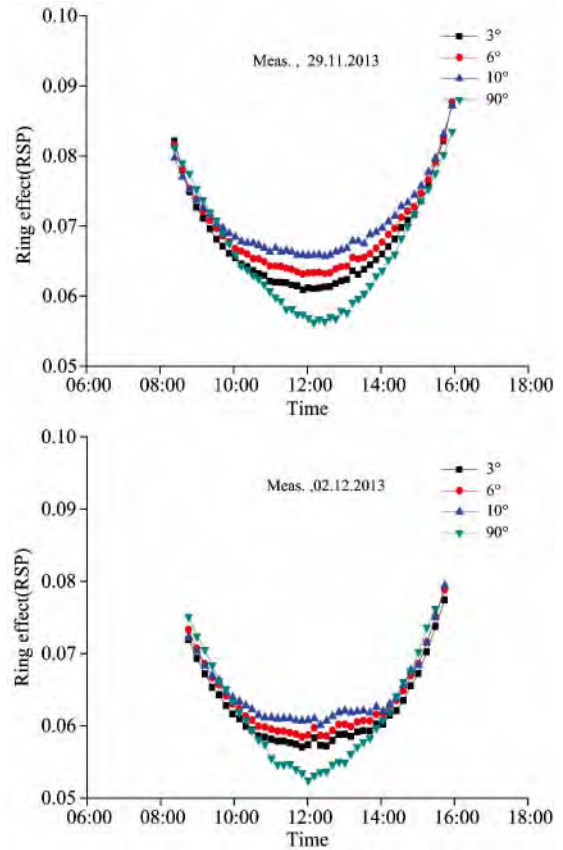


图 4 2013 年 11 月 29 和 12 月 2 日 Ring 效应测量结果
Fig 4 Measurement results of Ring effect on two selected days (29 November and 2 December 2013)

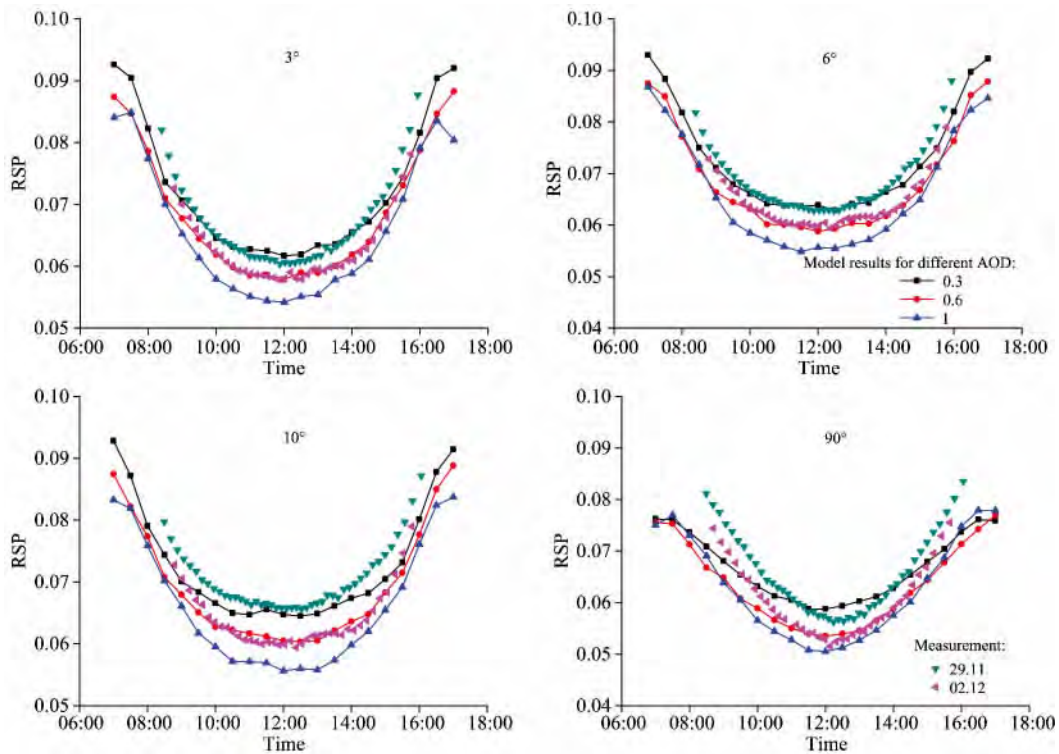


图 5 不同 AOD 下测量值和模拟值对比

Fig 5 Comparison between measurement values and model values for different AOD

方向为例, 由图可知 AOD 从 0.1 到 1, RSP 减少了 24.1%, 结果表明 RSP 对 AOD 十分敏感且随 AOD 的增加而减少,

这主要是因为气溶胶光学厚度增加后有效光程减少, 非弹性散射概率随之降低。

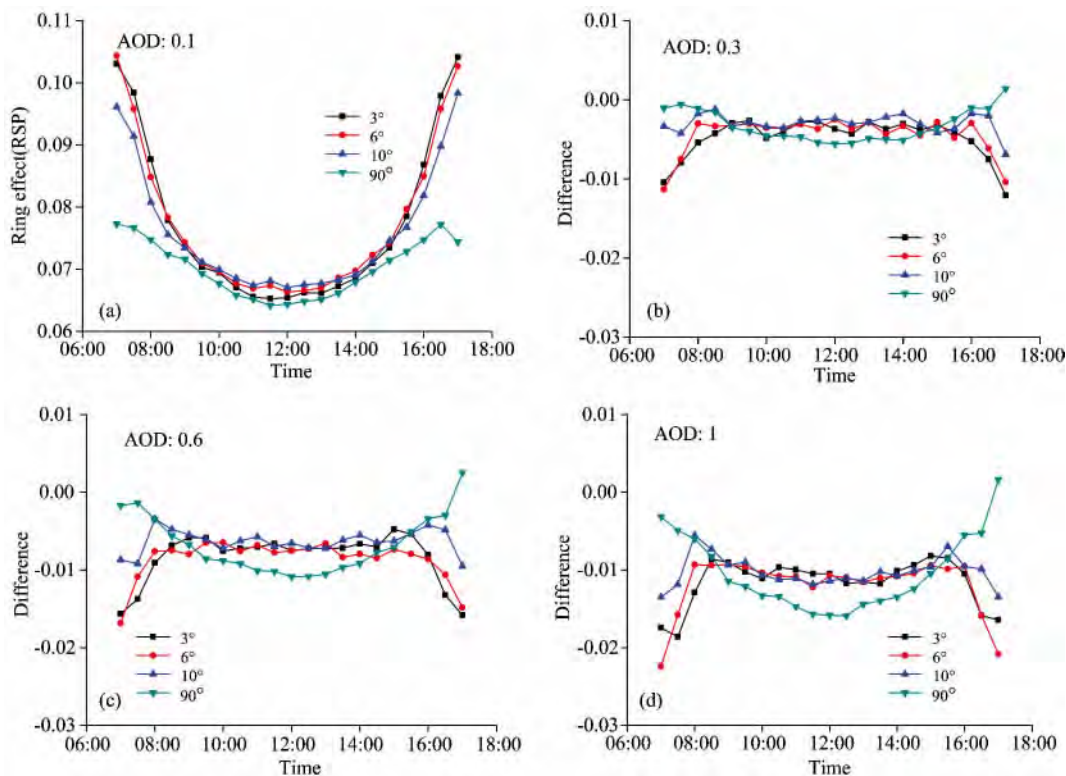


图 6 模拟一天内 OD 对 RSP 日变化

(a): 给出了 AOD=0.1, 其他参量为标准情况(bh=1.5 km, bw=0.8, SSA=0.9, g=0.68)下的模拟值; (b)–(d): 给出了不同 AOD(0.3, 0.6, 1)RSP 和 AOD=0.1RSP 的差值

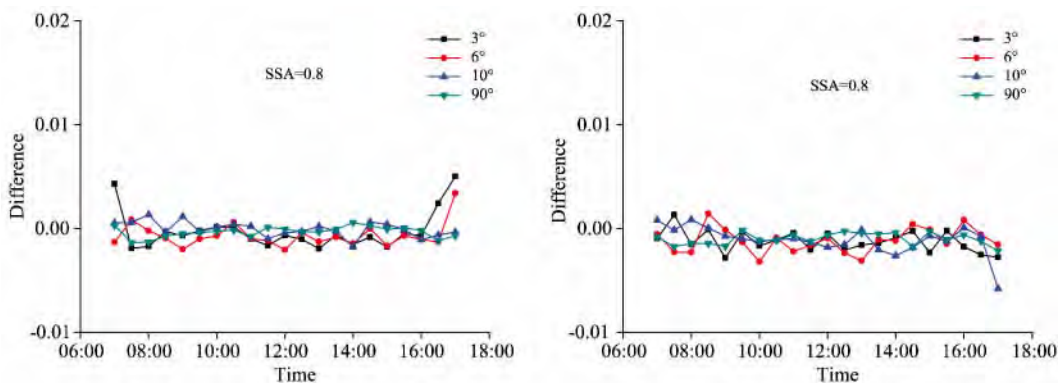
Fig 6 Modelled dependencies of diurnal variations of RSP on AOD

(a): diagram the simulation for AOD=0.1 and standard situation (bh: 1.5 km, bw: 0.8, SSA: 0.9, g: 0.68, albedo: 5%) for other parameters is shown; (b)–(d): diagrams the differences between different AOD(0.3, 0.6, 1) and AOD=0.1 are shown

3.3.2 其他气溶胶参量(SSA, g, bh)和地表反照率(Albedo)影响

从图 7 可知, 其他气溶胶各参量中气溶胶边界层高度对 Ring 效应的影响较大。在这两种气溶胶状态下, 低仰角 RSP 随着层高增加而增加, 这主要是因为层高增加后, 气溶胶分布在更大高度间隔内, 沿望远镜视线方向的有效光程变长, 入射光子发生非弹性散射几率增加。同时注意到天顶方向测量 RSP 随边界层高度增加而减少, 主要原因随边界层升高,

天顶方向散射中米散射增多, 而米散射对于转动拉曼散射没有贡献。以 12:00 天顶方向为例, 边界层高度从 1.5 km 增加到 3 km, AOD=0.3 和 AOD=0.6 RSP 分别变化 2.5% 和 4.4%, 因此在望远镜指向正北方向时 RSP 对边界层高度较为敏感, 且敏感性随 AOD 增加进一步增大。其他条件不变时, SSA, g 和 Albedo 中任意变量改变引起的 RSP 改变一般都低于 2%, 该模拟条件下 RSP 对三者较不敏感。



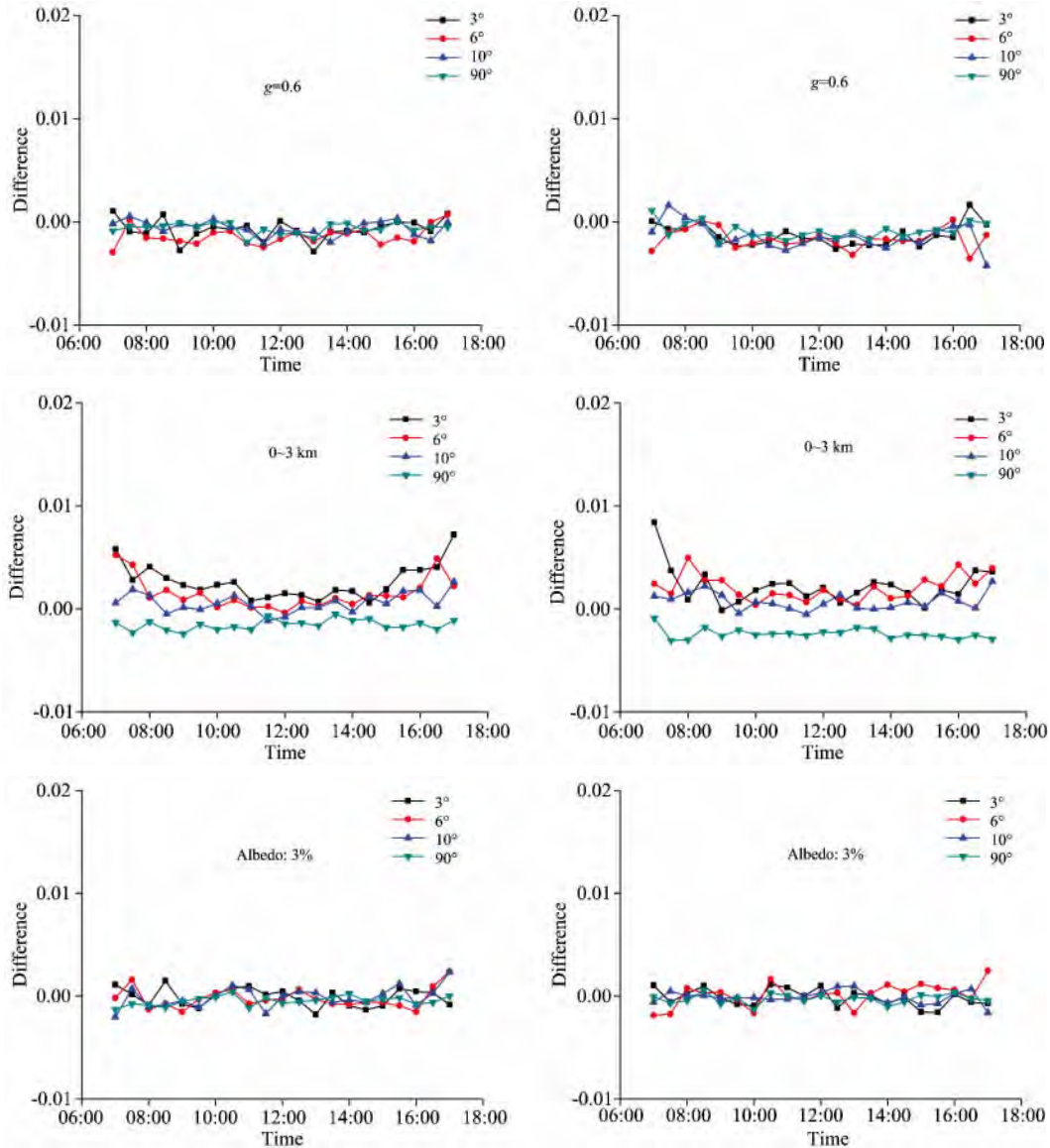


图 7 不同气溶胶参量和地表反照率对 RSP 的影响

结果表示为和标准情况(边界层高度为 1.5km 盒子型权重 0.8, 单次散射反照率 0.9, 非对称因子 0.68, 地表反照率 0.05)之差; 只有一个参量改变(如图)

Fig 7 Influence of various aerosol properties and the surface albedo

The results are expressed as differences compared to standard situation(bh: 1.5km, bw: 0.8, SSA: 0.9, g: 0.68, Albedo: 5%); Only one parameter is changed (as indicated in the figures)

3.3.3 高的卷云和平流层气溶胶影响

除受近地面气溶胶影响外, 由于云对入射太阳光有遮蔽作用且云内多次散射能够强烈增加大气弹性散射光强, 因此 RSP 也受云的强烈影响。图 8 给出了 9~10 km 处分布有水平均匀的薄的卷云(光学厚度为 0.3 或者 0.6)时, 相比近地面 AOD=0.3 时的差异。结果表明随云光学厚度增加 RSP 会减少, 仰角越大 RSP 减少越明显, 以卷云光学厚度为 0.6 为例, 12:00 天顶方向 RSP 相比无云时减少 18.2%, 这主要是因为卷云存在时云层上部弹性反射增加, 更多光子被散射回上层大气, 此外高海拔卷云使最后一次散射高度增加, 减少了大气散射光程, 两者都会使总散射光强中非弹性散射光

强比例降低。因此通过将 RSP 观测结果和无云时相比来鉴别云存在是可能的。

除此之外, RSP 也受平流层气溶胶影响。特别是在曙暮附近, 最后一次散射高度可能会受平流层气溶胶影响, 从而改变大气散射性质。由于合肥地区不存在能够向平流层进行气溶胶输入的排放源(如火山等), 因此平流层气溶胶含量较低, 在这里我们假设 15~25 km 处存在光学厚度为 0.01 和 0.02(如图 9)的平流层气溶胶, 并将结果和近地面 AOD=0.3 时相比, 结果表明其他气溶胶参量不变时, 平流层气溶胶改变引起的 RSP 变化一般低于 3%, 相比近地面气溶胶对 RSP 影响较不明显。

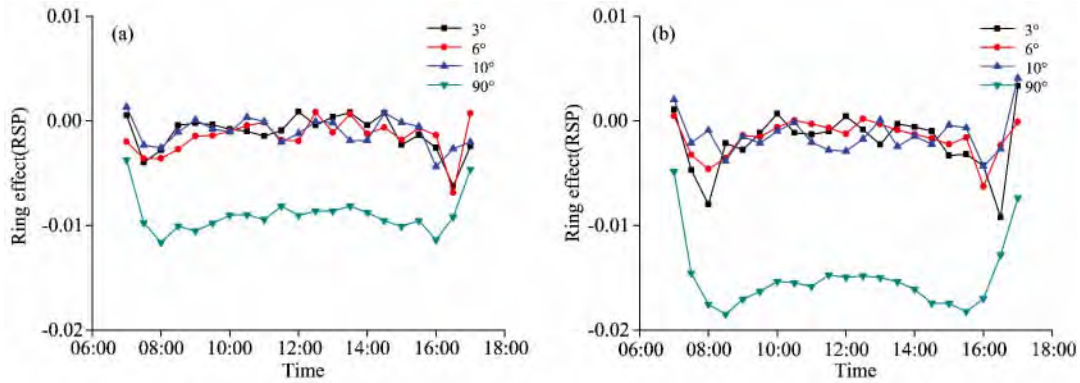


图 8 高的卷云对 RSP 的影响

近地面气溶胶光学特性如下: $AOD=0.3$, $bh=1.5$ km, $bw=0.8$, $SSA=0.9$, $g=0.68$; 卷云位于 9~10 km, 光学厚度为 0.3(a)和 0.6(b), 结果表示为和无卷云标准情况之差

Fig 8 Influence of high cirrus clouds on RSP

The surface aerosol properties are $AOD: 0.3$, $bh=1.5$ km, $bw=0.8$, $SSA: 0.9$, $g: 0.68$. The cirrus clouds have optical depths of 0.3 (a) and 0.6 (b) and are located between 9 and 10 km; The results are expressed as differences compared to standard situation with no cirrus

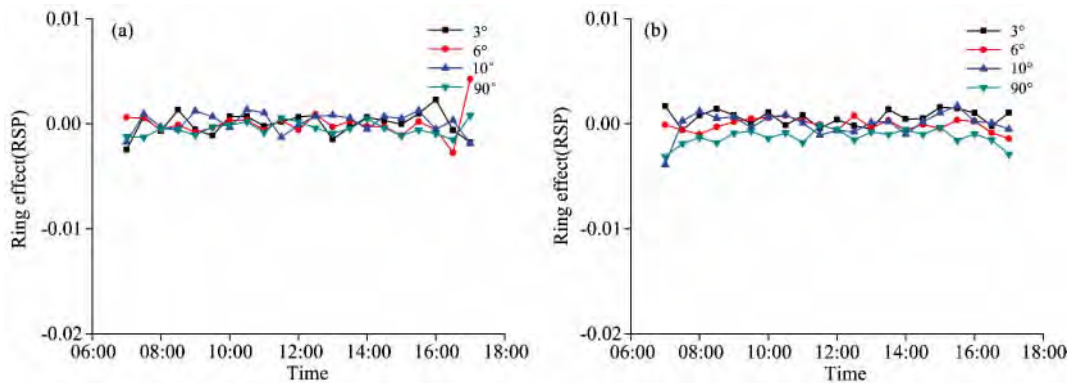


图 9 RSP 受平流层气溶胶影响

近地面气溶胶光学特性如下: $AOD=0.3$, $bh=1.5$ km, $bw=0.8$, $SSA=0.9$, $g=0.68$. 平流层 AOD 分别为 0.01(a)和 0.02(b), 均匀分布在 15~25 km, 结果表示为和无平流层气溶胶标准情况之差

Fig 9 Influence of two different stratospheric aerosols properties on RSP

The surface aerosol properties are $AOD: 0.3$, $bh=1.5$ km, $bw=0.8$, $SSA: 0.9$, $g: 0.68$. The stratospheric aerosol has optical depths of 0.01 (a) and 0.02 (b) between 15 and 25 km; The results are expressed as differences compared to standard situation with no stratospheric aerosol

4 结 论

基于 MAX-DOAS 在晴朗天气下对大气 Ring 效应进行了观测, 选取了 McArtim 大气辐射传输模型对 Ring 效应进行模拟, 并将测量结果和模拟结果进行了对比, 结果一致性较好。利用 McArtim 模型研究了不同大气条件和气溶胶状

态下 Ring 效应强度变化, 分析了 Ring 效应对不同气溶胶参量的灵敏度。研究结果表明 Ring 效应对气溶胶光学厚度和边界层高度较为敏感, 为反演气溶胶垂直分布提供了一种新方法。

致谢: 感谢德国马普化学所 Wagner T. 教授在模型使用以及论文写作中给予的帮助。

References

- [1] Brinkmann R T, et al. *Astrophys. J.*, 1968, 154: 1087.
- [2] Solomon S, Schmeltekopf A L, Sanders R W. *Journal of Geophysical Research*, 1987, 92: 8311.
- [3] Sioris C, Evans W F J. *Appl. Opt.*, 1999, 38: 2706.
- [4] Vountas M, Rozanov V V, Burrows J P. *Journal of Quantitative Spect.*, 1998, 60(6): 943.
- [5] Honninger G, von Friedeburg C, Platt U. *Atmos. Chem. Phys.*, 2004, 4: 231.

- [6] Platt U. Phys. Chem. Chem. Phys. , 1999, 1: 5409.
- [7] Solomon S, Schmeltekopf A L, et al. J. Geophys. Res. , 1987, 92: 8311.
- [8] Park H, Heath D F, et al. Meteorological Optics, 1986, 3: 70.
- [9] Joiner J, Bhartia P. K. Appl. Optics, 1995, 34: 4513.
- [10] de Beek R, Vountas M, et al. Geophys. Res. Lett. , 2001, 28: 721.
- [11] Deutschmann T. Atmospheric Radiative Transfer Modelling Using Monte Carlo Methods, Diploma Thesis, University of Heidelberg, 2008.
- [12] Wagner T, Burrows J P, et al. Atmos. Chem. Phys. , 2007, 7: 1809.
- [13] Wagner T, Deutschmann T, Platt U. Atmos. Meas. Tech. , 2009, 2: 495.
- [14] HAN Dong, CHEN Liang-fu, TAO Jin-hua, et al(韩冬, 陈良富, 陶金花, 等). Sci. China Earth Sci.(中国科学: 地球科学), 2011, 41(10): 1407.
- [15] PEI Xian, LI Ang, XIE Pin-hua, et al(裴显, 李昂, 谢品华, 等). Journal of Atmospheric and Environmental Optics(大气与环境光学学报), 2013, 8(5): 1.
- [16] de Beek R, Vountas M, Rozanov V, et al. Geophys. Res. Lett. , 2001, 28: 721.
- [17] Wagner T, Dix B, v Friedeburg C, et al. J. Geophys. Res. , 2004, 109: 22205.
- [18] Wang Yang, Li Ang, Xie Pinhua, et al. Chin. Phys. B, 2012, 21: 114211.
- [19] WANG Yang, LI Ang, XIE Pin-hua, et al(王杨, 李昂, 谢品华, 等). Acta Phys. Sin.(物理学报), 2013, 62(18): 180705.

Sensitivity Study of Aerosol Properties from Observation of Atmospheric Ring Effect

MU Fu-sheng^{1,3}, XIE Pin-hua^{1,2}, LI Ang¹, WANG Yang¹, WU Feng-cheng¹, XU Jin¹, ZHANG Jie¹, CHEN Hao¹, SUN You-wen¹

1. Key Lab of Environmental Optics and Technology, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China
2. School of Environmental Science and Optoelectronic Technology University of Science and Technology of China, Hefei 230031, China
3. College of Physics and Electronic Information, Huaibei Normal University, Huaibei 235000, China

Abstract Ring effect is defined as the phenomenon that the depth of solar Fraunhofer lines in scattered light is less than those observed in direct sunlight. The aerosol could change the light path and the scattering properties in the atmospheric, and influence Raman Scattering Possibility of the photons, and finally affect the filling-up effect. Aerosol parameters (aerosol optical depth, boundary layer height, single scattering albedo, asymmetric factor) could be obtained by observation of the Ring effect in different aerosol condition. The Ring effect is measured by ground-based MAX-DOAS instrument under clear days and the measurement results is compared with McArtim results. The comparison has a good agreement. Radiation transfer model McArtim is used to study the sensitivity of the Ring effect to the aerosol parameters. The study shows that in most conditions, aerosol optical depth (AOD) and boundary layer (bh) height has a great influence to RSP, and in 90 degree elevation angle, RSP has a decrease of 24.6% when AOD varies from 0.1 to 1, and a decrease of 4.4% when bh varies from 1km to 3 km. The study shows RSP is more sensitive to AOD and boundary layer height, which may provide a new method for aerosol profile.

Keywords Multi-axis differential optical absorption spectroscopy; Ring effect; Rotational Raman scattering possibility; Aerosol parameter

(Received Mar. 2, 2015; accepted Jul. 18, 2015)