

基于近红外体散射数据的气溶胶尺度谱正则化反演方法

胡 帅,高太长,李 浩,刘 磊,陈锦源,李 云

(解放军理工大学 气象海洋学院,江苏 南京 211101)

摘 要: 基于 $0.86\ \mu\text{m}$ 波段气溶胶的体散射数据,提出了一种新的尺度谱反演方法。根据大气气溶胶尺度谱特征,将尺度谱函数 $n(r)$ 分解为趋势变化函数 $H(r)$ 和细节变化函数 $\eta(r)$,并构造了一组新的基函数对 $\eta(r)$ 进行参数化逼近,然后严格依照 Mie 散射理论,采用 Tikhonov 正则化对尺度谱函数进行了反演。采用城市型、乡村型和海洋型气溶胶的尺度谱实测数据进行反演仿真,结果表明,在粒径 $0.2\text{--}10\ \mu\text{m}$ 区间、噪声不大于 50% 的条件下,实际与反演的尺度谱曲线相关系数高于 0.98,表现出良好的抗噪声能力;针对小尺寸段($r < 0.2\ \mu\text{m}$)反演结果的不稳定性,提出了小尺寸段的荣格分布修正法与细模态参数补偿法,模拟结果表明,两种方法对尺度谱修正效果较理想,在 $0.1\text{--}10\ \mu\text{m}$ 区间,实际与反演尺度谱曲线相关系数大于 0.97。与基于遗传算法的尺度谱反演方法相比,该方法效率高,耗时短,且对尺度谱函数细节变化特征反演较好。

关键词: 散射函数; Tikhonov 正则化; 荣格分布修正法; 细模态参数补偿法

中图分类号: P426.3+1 **文献标志码:** A **文章编号:** 1007-2276(2015)01-0017-10

Regularized inversion method for retrieving aerosol size distribution based on volume scattering function data at near-infrared waveband

Hu Shuai, Gao Taichang, Li Hao, Liu Lei, Chen Jinyuan, Li Yun

(College of Meteorology and Oceanography, PLA University of Science and Technology, Nanjing 211101, China)

Abstract: Based on volume scattering data at $0.86\ \mu\text{m}$, a new method for retrieving aerosol size distribution functions was put forward. According to the characteristics of aerosol size distribution, size distribution function $n(r)$ was broken into two part, whole-trend function $H(r)$ and detail-describing function $\eta(r)$, and a new series of basis functions were advanced and employed to approach $\eta(r)$. To overcome ill-posed nature in retrieval process, Tikhonov regularization method was combined with Mie scattering theory to strengthen the capabilities to void the influence of measurement noise and errors caused by numerical integration. Retrieval simulations are performed with size distribution data measured by Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, which represents three different kinds of aerosol, urban, rural and oceanic. Results show that, when radius of particles is larger than $0.2\ \mu\text{m}$, the curve of retrieved size distribution function nearly coincides with that of actual size distribution, and their

收稿日期: 2014-05-05; 修订日期: 2014-06-10

基金项目: 国家自然科学基金青年基金(41205125); 国家自然科学基金重大仪器专项(41327003)

作者简介: 胡帅(1990-), 男, 博士生, 主要从事大气探测与大气遥感方面的研究。Email: hhusai2012@hotmail.com

导师简介: 高太长(1958-), 男, 教授, 博士生导师, 主要从事大气探测与大气遥感方面的研究。Email: 2009gaotc@gmail.com

correlation coefficient is larger than 0.98 on condition that measurement noise isn't larger than 50%. Good robustness is also exhibited in the model put forward here; however when radius is smaller than $0.15 \mu\text{m}$, there is some deviation when measurement noise is large. To overcome this problem, Junge-correction method and accumulation-mode-compensation method were put forward, corrected results of retrieval size distributions show great consistency with actual size distribution. Compared with retrieval method based on intelligent algorithm, method here is more effective and less time-consuming, and has advantage in retrieving the detail characteristics of aerosol size distribution.

Key words: scattering function; Tikhonov regularization; Junge-correction method; accumulation mode compensation method

0 引言

气溶胶尺度谱是描述气溶胶尺寸分布的重要参量,多数气溶胶尺寸在微米级,对红外与可见光波段有较强的散射与吸收作用,对大气辐射、地球的能量收支等有重要影响^[1-6],因此气溶胶尺度谱的测量与反演一直是气溶胶研究领域的一个热点。由于气溶胶形状复杂多样^[7-8],确定合适的方法描述和测量气溶胶等效粒子尺度谱,使之不仅能够反映气溶胶粒子几何特性,同时也能一定程度符合其物理学特性(如辐射学、动力学等)^[9-10],这一直是一个难点。目前气溶胶尺度谱的测量方法主要有直接测量和间接测量两类^[11]:直接测量技术包括光学显微镜测量技术、透射式电子显微镜技术、扫描式电子显微镜技术等^[12],该类方法涉及复杂的气溶胶采样与技术操作过程,且需直接观察复杂几何形状估计粒子尺寸^[11];间接测量技术主要包括空气动力学计数器(基于空气动力学原理)、OPC 计数器、光衍射技术及消光光谱法等^[11-12],间接测量法主要通过不同粒径气溶胶粒子的物理学特性差异反演粒子粒径或尺度谱,不仅可实现气溶胶尺寸(谱)的实时、快速、准确测量,且所测粒子等效尺寸(谱)能一定程度反映粒子的物理学特性^[11],因此间接测量技术是目前粒子尺度谱测量的重要发展方向,而基于近红外与可见光波段的散射特性反演气溶胶尺度谱是目前研究的一个热点^[12]。由于单粒子散射特性的测量受粒子取向和尺度间隔划分影响,光谱消光法所含粒子尺寸信息量相对不足^[13],而采用气溶胶多角度体散射数据的反演技术恰可弥补上述不足,日益受到国内外学者的关注。

基于气溶胶光散射特性的测量,逐渐发展了两类尺度谱反演方法:基于多波段消光系数或光学厚度的反演方法(简称消光光谱法)和基于多角度体散射数据的反演方法^[13]。早期主要以消光光谱法的研究为主,Phillips^[14]、Twomey^[15-16]及 M. Bertero^[17-18]提出基于离散数据的线性约束性反演算法,为消光光谱法提供了重要理论基础;Gail P. Box^[19]等通过气溶胶消光系数的测量,采用特征函数法反演了气溶胶尺度谱,并将结果与线性约束算法结果进行了比较;B. P. Curry^[20-21]与 C. D. Capps^[22]等分别采用约束性特征函数法反演了气溶胶谱分布,但反演的尺度谱曲线不够平滑,且抗测量噪声能力不佳。基于多波段消光系数反演气溶胶结果总体不够理想^[13],而多角度的体散射数据所含信息丰富,因此基于体散射函数反演气溶胶谱分布可取得更理想效果,且气溶胶体散射函数测量技术的发展也为其提供了技术基础^[11,23-24]。M. R. Jones 等基于实测的多角度散射函数数据,采用约束特征函数法与 Schmidt-Hilbert 理论反演了单一尺寸的气溶胶尺寸^[23-24];B. R. Lienert 等^[25]提出采用 Mie 理论结合遗传算法和模拟退火算法,对单模态气溶胶谱分布进行了反演,效果较好,但对多模态的谱分布反演不够理想;Ligon 等^[26]也提出了采用 Monte Carlo 方法反演气溶胶谱分布;Mao Ye 等^[27]改进了遗传算法,可实现多模态气溶胶谱的反演,但对谱分布细节变化特征反映不足。较其他反演方法而言,基于智能算法的反演方法的反演效果有所提高,但总体耗时长,效率低,且需预先假定一定形式的尺度谱函数,普适性不够理想。因此,结合 $0.86 \mu\text{m}$ 波段气溶胶体散射数据与尺度谱特征,文中提出了尺度谱函数分解方案,并严格依照 Mie 散射理论,采用正则化方法对尺度谱进行了反演,可弥补

上述方法的不足。

1 气溶胶尺度谱特征分析与谱函数分解

气溶胶尺度谱是影响大气辐射的重要参数,在无特殊气溶胶来源情况下,气溶胶尺度谱通常由2~3个模态叠加而成,分别是细模态($r < 0.8 \mu\text{m}$)、中间模态($1 \mu\text{m}$ 左右)和粗模态($r > 2 \mu\text{m}$),其中细模态粒子数密度最大,中间模态次之,粗模态最少,每个模态均可用一个对数正态分布表示^[28],在某些特殊地区和季节,气溶胶尺度谱也可能出现无中间模态或粗模态的现象^[1,28],气溶胶尺度谱函数可用公式(1)表示:

$$n(r) = \frac{dN(r)}{r} = \sum_{i=1}^k n_i(r) = \sum_{i=1}^k \frac{N_i}{\sqrt{2\pi} \ln 10 \cdot r \cdot \ln \sigma_i} \exp\left(-\frac{(\ln r - \ln r_{mi})^2}{2 \ln^2 \sigma_i}\right) \quad (1)$$

式中: N_i 、 r_{mi} 、 σ_i 分别为第*i*个对数正态分布函数的峰值粒子数密度、平均粒子半径及分散性参数。目前,在基于体散射数据的气溶胶尺度谱反演方法中,多数是采用该对数正态分布谱模型,同时结合智能算法(如遗传算法、模拟退火算法)进行计算的^[25,27]。大气气溶胶尺度谱分布存在两大特征:一是粒子数密度变化范围宽,其中细模态粒子数密度是粗模态粒子的 $10^2 \sim 10^3$ 倍^[28];二是半径动态范围大, r 可从 $0.01 \mu\text{m}$ (甚至更小)变化至 $10 \mu\text{m}$ ^[8,10,19],这两点给全尺寸范围内气溶胶尺度谱反演造成困难。基于以上气溶胶谱分布的特征,提出了尺度谱函数分解与基函数逼近相结合的方法。

根据气溶胶尺度谱的第一个特征,将气溶胶谱分布函数 $n(r)$ 分解为趋势变化函数 $H(r)$ 与细节变化函数 $\eta(r)$ 之积,如公式(2)所示:

$$n(r) = \eta(r) \cdot H(r) \quad (2)$$

其中趋势变化函数 $H(r)$ 主要反映尺度谱曲线的趋势变化特征,可借鉴荣格谱分布曲线($0.1 \sim 10 \mu\text{m}$ 区间的常用气溶胶尺度谱近似曲线^[2]),取 $H(r) = r^{-\nu}$,为2~4之间的一个常数^[2](文中取 $\nu = 2.5$),如此不仅表征了尺度谱曲线变化趋势,同时可将尺度谱 $n(r)$ 的反演转化为细节变化函数 $\eta(r)$ 的求解,可减小所需反演参数的动态范围; $\eta(r)$ 反映的是尺度谱函数的细节变化特征,主要作用是对趋势变化函数 $H(r)$ 进行细节上“修剪”,最终通过与 $H(r)$ 组合获取尺度谱函数 $n(r)$ 。对于细节变化函数 $\eta(r)$,采用基函数逼

近的方式对其进行近似,取基函数 $\varphi_i(r)$,而 $\eta(r) \in \text{span}\{\varphi_i(r), i=0, 1, 2, \dots, n\}$,也即

$$\eta(r) = \sum_{j=1}^n x_j \varphi_j(r) \quad (3)$$

基函数 $\varphi_i(r)$ 的选取决定了反演尺度谱的精细化程度,由于大气气溶胶尺寸跨越2~3个量级,取基函数为 $\varphi_i(r) = (r^{1/\alpha} \ln r)^i$,式中: $\ln r$ 用于减小反演半径的动态范围; i 为逼近次数(文中取0~15, $i=0$ 为常数项); $r^{1/\alpha}$ 为修正性因子,增加该项原因是当 r 较小时, $\ln r$ 趋于发散,增加 $r^{1/\alpha}$ 项可保证 $\lim_{r \rightarrow 0} (r^{1/\alpha} \ln r)^i = 0$,从而改善小尺寸段($r < 1 \mu\text{m}$)气溶胶谱分布的反演效果;参数 α 为常数,大量仿真实验表明,当 α 取30~50间的常数时,通常能取得较好的反演效果。

2 基于近红外波段体散射数据的尺度谱反演方法

2.1 体散射反演模型

体散射函数是单位光强照射至散射体时,在单位距离与空间角上接收的散射光强,对于气溶胶而言,是指一定体积内所有粒子散射能量随散射角的分布状况,所含散射信息量丰富。目前随着光电技术的发展,气溶胶体散射函数测量已经有了一定技术积累,为体散射数据的运用提供了重要基础^[11~13]。

考虑气溶胶在空气中含量相对较少,根据Van de Hulst的理论^[29],可认为气溶胶在近红外波段的散射近似满足独立散射原理,即可不考虑多次散射的影响,该原理也为国内外学者所验证^[19~27]。由此,散射角 θ_1 处的体散射函数值 $I_{sc}(\theta_1)$ 可通过公式(4)进行计算:

$$I_{sc}(\theta_1) = \int_{r_{min}}^{r_{max}} P_{sc}(m, \theta_1, r) n(r) dr \quad (4)$$

式中: r_{max} 和 r_{min} 表示尺度谱函数积分上下限,通常取区间 $0.1 \sim 10 \mu\text{m}$ ^[30]; $P_{sc}(m, \theta_1, r)$ 为半径为 r 的单粒子在散射角 θ_1 处的散射光强度。若入射光为非偏振光, $P_{sc}(m, \theta_1, r)$ 可通过公式(5)计算(单位距离与入射光强情形):

$$P_{sc}(m, \theta_1, r) = \frac{1}{k^2} (|S_1(\theta_1)|^2 + |S_2(\theta_1)|^2) \quad (5)$$

式中: $S_1(\theta_1)$ 、 $S_2(\theta_1)$ 是描述散射电场的复振幅函数,反映了散射角 θ_1 处散射电场的强弱,它们可以用公式(6)进行计算,其中 a_n 、 b_n 为电多极系数和磁多级系数,

分别反映电场振荡及磁场振荡对散射特性的影响,与复折射率 m 及尺度参数 $\alpha=2\pi r/\lambda$ ($k=2\pi/\lambda$) 有关,可用第一类与第三类 Bessel 函数计算, π_n 、 τ_n 为角函数,仅和散射角有关。

$$\begin{cases} S_1(\theta) = \sum_{n=1}^{\infty} \left\{ \frac{2n+1}{n(n+1)} [a_n \pi_n(\cos \theta) + b_n \tau_n(\cos \theta)] \right\} \\ S_2(\theta) = \sum_{n=1}^{\infty} \left\{ \frac{2n+1}{n(n+1)} [a_n \tau_n(\cos \theta) + b_n \pi_n(\cos \theta)] \right\} \end{cases} \quad (6)$$

将公式(2)、(3)代入公式(4)可得:

$$\begin{aligned} I_{sc}(\theta) &= \int_{r_{min}}^{r_{max}} P_{sc}(m, \theta, r) H(r) \cdot \sum_{j=1}^n x_j \varphi_j(r) dr = \\ &= \sum_{j=1}^n x_j \int_{r_{min}}^{r_{max}} P_{sc}(m, \theta, r) H(r) \cdot \varphi_j(r) dr \end{aligned} \quad (7)$$

对上式简化可得:

$$I_{sc}(\theta) = \sum_{j=1}^n x_j Q_{ij} \quad (8)$$

其中

$$Q_{ij} = \int_{r_{min}}^{r_{max}} P_{sc}(m, \theta, r) H(r) \cdot \varphi_j(r) dr$$

为方便分析,将上式写成矩阵形式,即

$$I = Qx \quad (9)$$

式中: I 为散射角 θ 处的体散射能量测量值 $I_{sc}(\theta)$ 组成的观测向量; Q 为散射特征矩阵; x 为参数向量。

2.2 基于正则化的尺度谱参数求解

在求解公式(9)的过程中,散射特征矩阵 Q 在某些情形下会出现小奇异值,导致 Q 条件数过大,当散射光测量噪声到达一定程度时,反演尺度谱与实际尺度谱将偏离较大。为改善求解过程的不适定性,采用 Tikhonov 正则化对问题进行求解^[31]。根据最小

二乘原理,设计泛函

$$J(x) = \|Qx - \hat{I}\|^2 + \gamma \|x\|^2 \quad (10)$$

式中: \hat{I} 为实际体散射数据观测向量; γ 为正则化参数。 γ 的确定是 Tikhonov 正则化方法的关键,该参数可通过广义交叉检验准则及 L 曲线法等方法确定^[31-32],文中采用广义交叉检验准则求解。

求解上述泛函(公式(10))极小值,可得到尺度谱细节变化函数的相关参数:

$$\hat{x} = (Q^T Q + \gamma E)^{-1} Q^T \hat{I} \quad (11)$$

3 仿真结果与分析

3.1 反演仿真结果

采用 Mie 散射程序对体散射测量值 $\hat{I}(\theta)$ 进行模拟。其中散射角取 $3^\circ \sim 177^\circ$ ^[25],均分为 50 份;取入射光波长 $\lambda = 0.86 \mu\text{m}$,气溶胶粒子尺度谱数据取至参考文献[28],为合肥、北京、岳西及厦门等地的实测数据,分别代表城市型、乡村型、海洋型气溶胶^[28],其谱分布参数如表 1 所示,气溶胶的复折射率分别取 $m = 1.53 - 0.040i$ 、 $1.43 - 0.004i$ 、 $1.53 - 0.008i$ ^[1,33],公式(4)中尺度谱积分上下限取 $0.05 \mu\text{m}$ 和 $10 \mu\text{m}$ 。在模拟的散射数据中添加高斯白噪声,取高斯分布的均值 $\mu = 0$,标准方差 σ 分别取 0(无噪声)、 $30\% \cdot \min(\hat{I})$ 、 $50\% \cdot \min(\hat{I})$ 及 $100\% \cdot \min(\hat{I})$ (文中简记噪声 0、30%、50% 及 100%)。在反演算法中,公式(4)中积分半径上下限取 $0.1 \mu\text{m}$ 和 $10 \mu\text{m}$ ^[30]。模拟观测数据过程中,公式(4)积分上下限之所以大于反演算法中积分上下限的目的是为了模拟自然状态的微小气溶胶的微弱散射对反演的干扰,各类气溶胶的散射函数如图 1 所示。

表 1 典型气溶胶多模对数正态分布谱分布参数

Tab.1 Parameters of multi-mode log-normal distribution

Type	Fine mode			Middle mode			Coarse mode		
	$r_m/\mu\text{m}$	$\ln\sigma_m$	N_0	$r_m/\mu\text{m}$	$\ln\sigma_m$	N_0	$r_m/\mu\text{m}$	$\ln\sigma_m$	N_0
urban (Beijing/Hefei)	0.15	0.5	1 300	0.85	0.25	15	4	0.6	4.5
	0.2/0.5	0.5/0.45	360/42	-	-	-	2	0.8	1.2
Rural (Yuexi)	0.15/0.6	0.48/0.6	300/6	1.2	0.4	1	4	0.8	0.18
	0.2/0.8	0.6/0.4	20/3.5	1.5	0.6	1.2	4	0.7	0.4
Oceanic (Xiamen)	0.1	0.6	1 400	0.9	0.35	15	2	0.7	6
	0.1	0.6	700	0.8/1.7	0.36/0.4	4/0.7	-	-	-

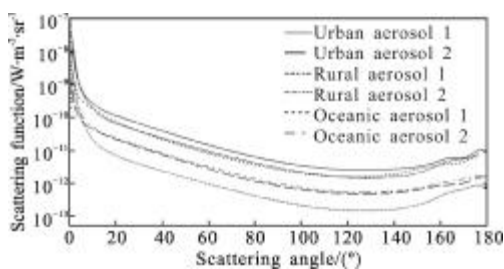


图 1 各类气溶胶的体散射函数数据

Fig.1 Scattering functions of different atmospheric aerosols

为反映气溶胶谱分布的反演效果,采用相关系数 ρ 、相对反演误差 δ_{ab} 两个指标进行定量评价,其计算公式如公式(12)、(13)所示:

$$\rho = \frac{\text{cov}(n(r), n'(r))}{\sqrt{\text{var}(n(r)) \cdot \text{var}(n'(r))}} \quad (12)$$

$$\delta_{ab} = \frac{\int_{r_{\min}}^{r_{\max}} |n'(r) - n(r)| dr}{\int_{r_{\min}}^{r_{\max}} n(r) dr} \quad (13)$$

式中: $n(r)$ 、 $n'(r)$ 分别表示实际与反演的尺度谱分布; ρ 表征的是两者相关程度; δ_{ab} 表征的是反演偏差程度。

图 2 为城市型气溶胶尺度谱反演结果。图 2(a)为北京地区(2004 年 1 月),图 2(b)合肥地区(2009 年 9 月),北京地区是典型的三模态尺度谱,且时间为冬季,正处于取暖期,空气污染较严重,气溶胶数密度高;合肥地区属于典型内陆城市,与北京地区相比,气溶胶浓度相对较低且尺度谱无中间模态,是一种典型气溶胶尺度谱。如图 2(a)所示,在半径区间 0.2~10 μm 内,气溶胶尺度谱反演曲线与原始谱分布曲线基本重合,当噪声小于 50%时,反演曲线不仅反映出实际尺度谱分布曲线的变化趋势,而且谱分布曲线的细节变化特征也反演较好,其中噪声分别为 0%、30%和 50%时,反演尺度谱函数与实际尺度谱函数相关系数达 0.998、0.994 和 0.984,相对反演误差仅为 5.6%、9.7%和 13.2%,说明该反演模型的较强抗噪声能力;噪声为 100%时,2~10 μm 区间的反演曲线与实际曲线一致性较好,两者相关系数达 0.986,但由于噪声淹没了部分观测信息,反演曲线仅反映实际曲线的整体变化趋势,对细节变化特征反演效果欠佳;当 $r < 0.15 \mu\text{m}$ 时,随着噪声的增大,反演结

果出现不稳定现象,特别是当噪声为 100%时,结果偏差较大,其原因包括两个方面,一是小粒子散射作用相对较弱,气溶胶的体散射特性对小粒子数目改变并不敏感;另一方面可能是选取的基函数为在小尺寸段反演的适应性相对较差,需要改进。合肥地区气溶胶尺度谱反演结果也存在类似特点,但反演效果好于北京地区,在噪声为 0%、30%、50%条件下,区间 0.2~10 μm 的反演与实际尺度谱函数曲线相关系数分别为 0.996、0.991 和 0.987,相对反演误差仅为 4.3%、8.2%和 12.7%,说明在气溶胶数密度相对较小,尺度谱函数变化平滑时,该模型反演效果更好,容噪声能力更强。

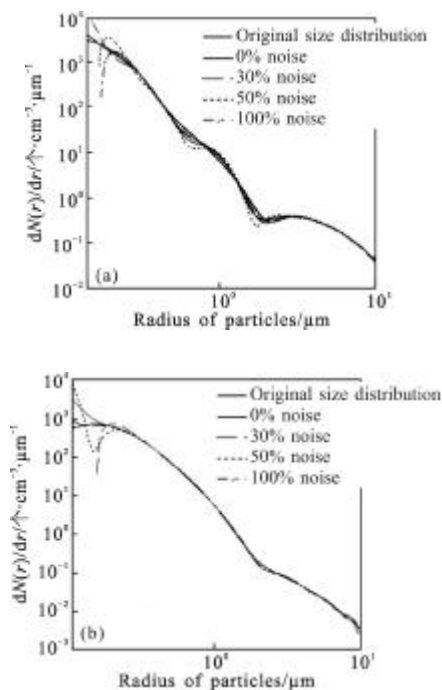


图 2 城市型气溶胶尺度谱反演

Fig.2 Retrieved size distribution of urban aerosol with different noise added

图 3 为乡村型气溶胶尺度谱的反演结果。选取地区为岳西地区,其中图 3(a)取 2009 年 5 月测量值,细模态峰值数密度达 300 个 $\cdot \text{cm}^{-3} \cdot \mu\text{m}^{-1}$,代表高浓度乡村气溶胶情形,图 3(b)为 2009 年 5 月测量值,细模态峰值数密度仅为 20 个 $\cdot \text{cm}^{-3} \cdot \mu\text{m}^{-1}$,代表低浓度乡村气溶胶情形;这两个尺度谱的特点是存在两个细模态,是典型的气溶胶尺度谱。如图 3(a)所示,噪声分别为 0%、30%、50%及 100%条件下,反演尺度谱曲线和实际尺度谱曲线在区间 0.15~10 μm

内的相关系数达 0.999、0.994、0.985 及 0.975，相对反演误差为 3.8%、8.9%、11.8% 和 14.6%，反演效果较好，且表现出较强的抗噪声能力，但在小尺寸段反演效果不够理想，这与城市型气溶胶反演结果类似。对于气溶胶粒子较稀疏情形，区间 0.2~10 μm 内两曲线相关系数分别为 0.998、0.987、0.982 及 0.976，反演效果较理想，但随着噪声的增大，小尺寸段的反演效果也是迅速变差。

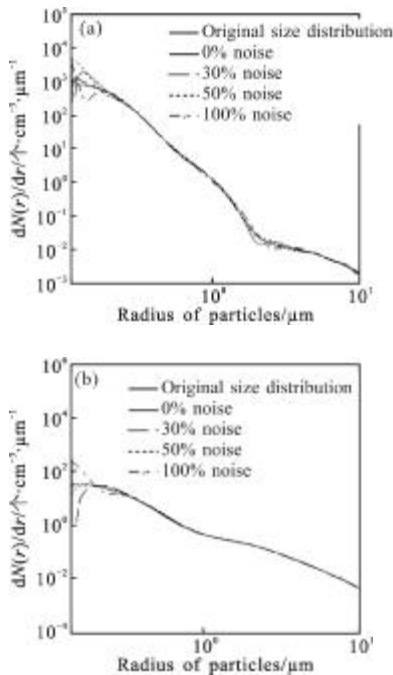


图 3 乡村型气溶胶尺度谱反演

Fig.3 Retrieved size distribution of rural aerosol with different noise added

图 4 所示为海洋型气溶胶反演结果。选取地点为厦门，图 4(a) 的谱分布数据为 2004 年 8 月的观测数据，是典型的三模态气溶胶；图 4(b) 采用的是 2006 年 12 月的观测数据，其特征是缺少粗模态，具有一定代表性。前一种情形的反演结果与上述反演结果类似，在 0.15~10 μm 区间，不同噪声情形下反演与实际气溶胶尺度谱曲线变化基本一致，两者相关系数达 0.997、0.991、0.983 及 0.973，相对反演误差为 5.8%、9.3%、12.4% 及 15.7%，表现出较强的抗噪声能力，但在小尺度段，尺度谱的反演结果不够理想；对于缺少粗模态的气溶胶尺度谱，不同噪声下，区间 0.15~10 μm 内实际与反演谱分布函数的相关系数达 0.997、0.992、0.981 和 0.976，但与上述尺度谱反演结

果有所不同，在 8~10 μm 段，尺度谱反演出现不稳定现象，且噪声越大，反演曲线波动越强，其原因是尺度谱缺少粗模态，其曲线与趋势变化曲线(荣格分布曲线)在大尺寸段有较大偏差，导致细节变化函数 $\eta(r)$ 在对趋势变化函数 $H(r)$ “修剪”过程中遇到困难。

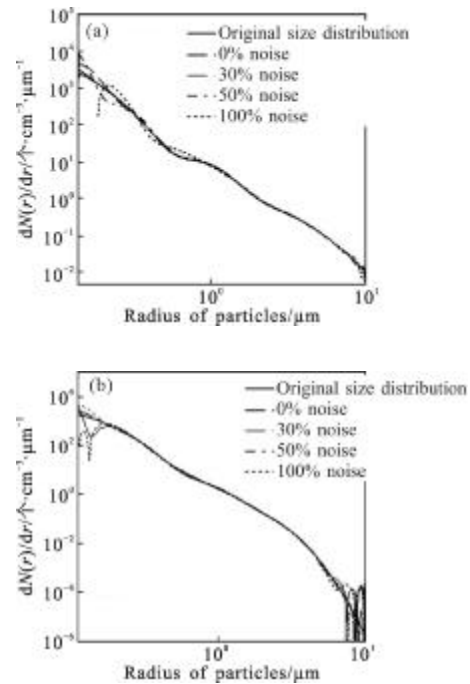


图 4 海洋型气溶胶尺度谱反演

Fig.4 Retrieved size distribution of oceanic aerosol with different noise added

3.2 反演模型的修正

仿真实验结果表明，当 $r > 0.2 \mu\text{m}$ 时，该模型反演效果较好，且具有良好的抗噪声能力，但在小尺寸段，尺度谱反演结果出现一定偏差。为改善小尺寸段的反演效果，需进行相应修正。结合实际大气气溶胶尺度谱特性，提出了两种小尺寸段尺度谱函数修正方法——荣格分布修正法和细模态参数补偿法，其基本思想是采用大尺度段的较理想反演结果推算小尺寸段尺度谱。

(1) 荣格分布修正法。实验结果证明，在 0.1~10 μm 区间内，气溶胶谱分布大致服从荣格分布 $n(r) = Cr^{-\alpha}$ ，由于该函数在对数坐标中为直线，为改善函数拟合性能，在该式中增加弯曲性修正因子 $e^{-\beta r}$ ，构造 $n(r) = Cr^{-\alpha}e^{-\beta r}$ ，对该式取对数可得：

$$\ln n(r) = \ln C - \alpha \ln r - \beta r \quad (14)$$

根据半径区间 0.2~1 μm 的反演结果，可对公

式(14)中的参数进行最小二乘估计,然后将此修正荣格谱分布作为小尺寸段的谱函数反演结果。此处半径区间取 0.2~1 μm,而非整个区间,是因为在大区间进行拟合,易将小尺寸段尺度谱的细节变化特征淹没,而在靠近小尺寸段选取适当半径区间进行拟合可更好地反映小尺寸段的“个性”变化特征。

(2) 细模态参数补偿法。在气溶胶谱分布 3 个模态中,细模态粒子数最多,在小尺寸区间内,细模态对数正态分布峰起绝对主导地位,可采用细模态对数正态分布函数对 0.1~0.2 μm 区间尺度谱函数进行修正。

细模态参数补偿法的关键在于选取细模态主导区间。取 $\eta(r)=n_1(r)/n(r)$ ($n_1(r)$ 为细模态对数正态分布函数),则 $\eta(r)$ 表征了细模态对数正态分布峰在整个粒径区间的影响因子,根据表 1 的尺度谱数据,绘制 $\eta-r$ 曲线如图 5 所示。当 $r < 0.7 \mu\text{m}$ 时,对于多数曲线而言, $\eta > 80\%$,因此提出采用半径区间 0.2~0.7 μm 的反演结果对 0.1~0.2 μm 区间尺度谱进行修正。考虑在修正区间内 r 较小,细模态对数正态分布函数的数值对 $1/r$ 项较灵敏,因此对 $1/r$ 的次数进行参数化,取 $n(r)$ 表达式为:

$$n(r) = \frac{\alpha}{\ln \sigma_1} \exp\left(-\frac{(\ln r - \ln r_m)^2}{2 \ln^2 \sigma_1}\right) \cdot r^{-\beta} \quad (15)$$

为了简化计算,令 $\alpha = \frac{N_1}{\sqrt{2\pi} \ln 10}$,将其作为一个参数整体估计。对于主导区间的选取,文中只做初步探究,如需精确确定区间范围,要针对大量气溶胶尺度谱样本进行更深入研究。

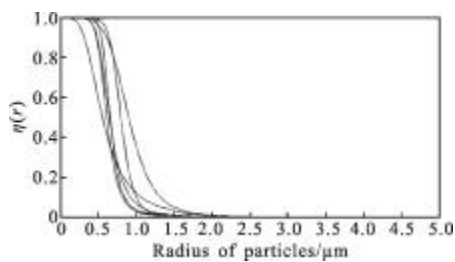


图 5 不同类型气溶胶的 $\eta-r$ 曲线

Fig.5 $\eta-r$ curves of different aerosols

图 6、7 分别为荣格分布修正法、细模态参数补偿法的反演尺度谱曲线,其中图(a)、(b)、(c)分别为城市型、乡村型和海洋型气溶胶尺度谱反演曲线,与图 1(a)、图 2(b)及图 3(a)相对应,表 2、3 分别为反演

与实际尺度谱曲线的相关系数及相对反演误差。由图可知,经过补偿修正,气溶胶小尺寸段谱分布效果有较大改善,且当噪声小于 30%时,对实际谱分布曲线细节变化反演较好。在整个反演区间(0.1~10 μm)内,当噪声为 0 时,两种方法得到的尺度谱函数与实际尺度谱相关系数大于 0.99,相对反演误差在 10% 以内;噪声 30%时,相关系数大于 0.98,相对反演误差在 15%左右;噪声为 50%时,相关系数大于 0.96,相对反演误差在 20%左右。数密度较小情形下,采用细模态参数补偿法的效果较好。

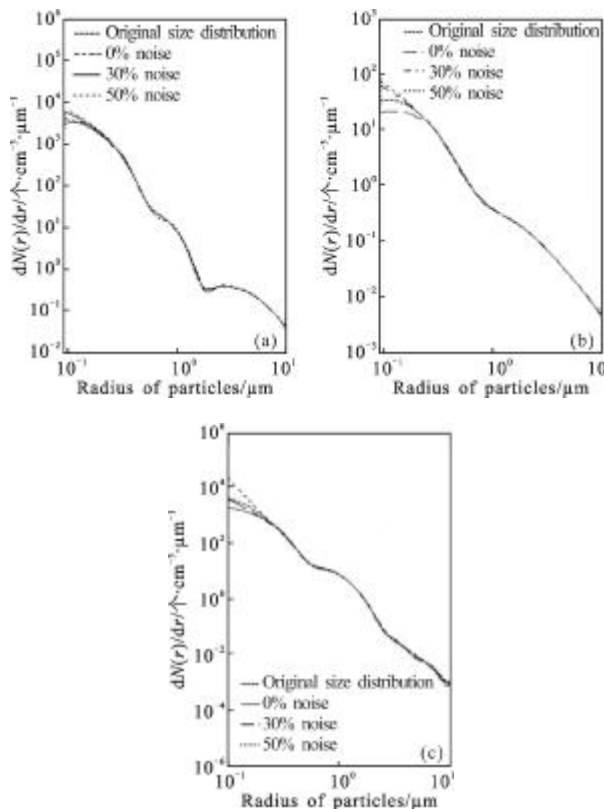
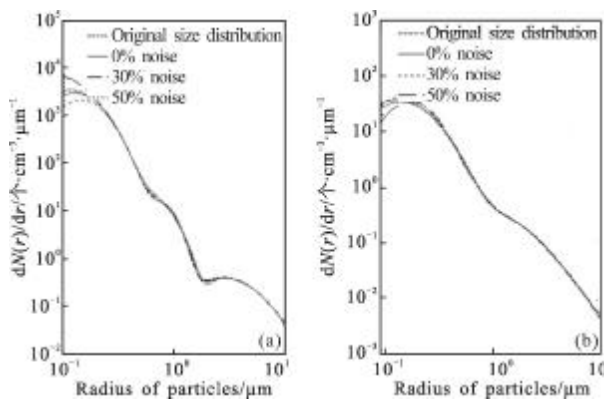


图 6 基于荣格分布修正法的谱分布反演

Fig.6 Retrieved size distribution by Junge-correction method



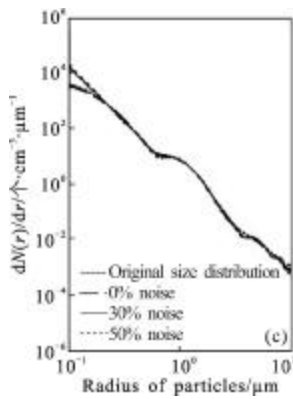


图 7 基于细模态参数补偿法的谱分布反演效果
Fig.7 Retrieved size distribution by accumulation-mode-compensation method

将该反演方法与基于遗传算法的反演方法进行比较。取遗传算法适应度函数如公式(16)^[25]所示,种群数量为 600,取交叉概率 0.7,变异概率 0.01,种群再生方式基于赌盘原理,气溶胶尺度谱反演结果如图 8 所示,反演与实际尺度谱曲线的相关系数及反演相对误差如表 2、3 所示,所需计算时间如表 4 所示。

$$\text{fitnessfcn} = \exp \left(\frac{\sum_{i=1}^N |\lg \hat{1} - \lg I(n(r))|}{N} \right) \quad (16)$$

由图 8 可知,与文中方法相比,在大尺寸段(0.2~10 μm),遗传算法反演法仅能反映实际尺度谱的变化趋势,对尺度谱的细节变化特征的反演效果不够理想,但遗传算法对小尺寸段尺度谱反演效果较好,

表 2 不同方法反演结果的相关系数

Tab.2 Correlation coefficient of different retrieved results

Method	Urban			Rural			Oceanic		
	0%	30%	50%	0%	30%	50%	0%	30%	50%
Junge-correction method	0.997	0.991	0.988	0.985	0.973	0.964	0.997	0.987	0.984
Accumulation-mode-compensation method	0.998	0.986	0.983	0.999	0.998	0.992	0.999	0.982	0.977
Genetic algorithm	0.996	0.983	0.975	0.999	0.997	0.996	0.994	0.986	0.974

表 3 不同方法反演结果的相对反演误差

Tab.3 Relative errors of different retrieved results

Method	Urban			Rural			Oceanic		
	0%	30%	50%	0%	30%	50%	0%	30%	50%
Junge-correction method	0.070	0.105	0.180	0.103	0.174	0.252	0.102	0.178	0.193
Accumulation-mode-compensation method	0.057	0.181	0.232	0.029	0.067	0.089	0.067	0.198	0.207
Genetic algorithm	0.080	0.112	0.183	0.043	0.062	0.118	0.124	0.203	0.323

从运行时间上看(表 4),采用遗传算法的反演时间在 330 s 左右,而文中方法所需时间仅为 5 s 左右,可见方法的高效性。

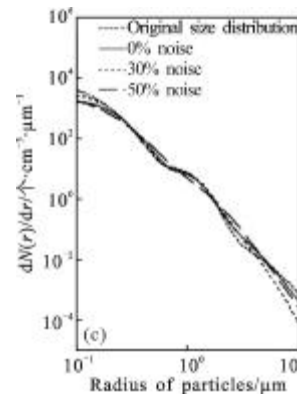
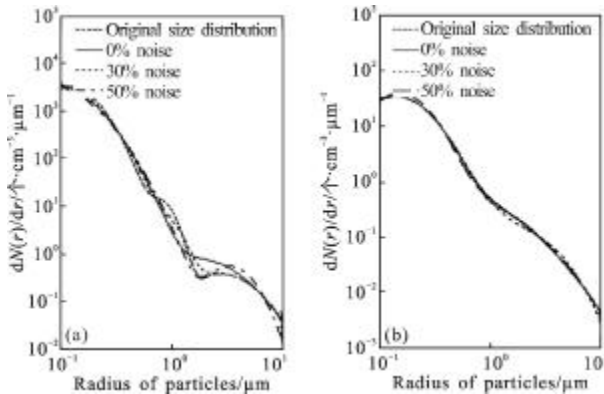


图 8 基于遗传算法的气溶胶谱分布反演结果
Fig.8 Retrieved size distribution by genetic algorithm

表 4 文中方法与遗传算法运行时间比较(计算机与编程语言均相同)

Tab.4 Time consumed of genetic algorithm and method put forward in paper (procedures are coded in the same computer language and executed on the same computer)

Method	Urban/s	Rural/s	Oceanic/s
Junge-correction method	5.008	4.892	4.965
Accumulation-mode-compensation method	5.012	4.973	4.943
Genetic algorithm	336.555	333.744	335.141

4 结 论

基于 $0.86 \mu\text{m}$ 波段的气溶胶体散射数据, 提出了一种新的气溶胶尺度谱反演算法。在反演模型中, 将尺度谱函数分解成趋势变化函数与细节变化函数, 并构造一组新的基函数对细节变化函数进行逼近, 实现了尺度谱函数的参数化, 最后采用 Tikhonov 正则化对相关参数进行反演。数值仿真结果表明, 在 $0.2\sim 10 \mu\text{m}$ 区间反演效果理想, 且表现出较强的抗测量噪声干扰能力。针对小尺寸段反演效果存在偏差的情况, 提出了荣格分布修正法及细模态参数补偿法, 经过补偿修正, 小尺寸段的反演结果有较大改善。与遗传算法反演结果相比, 文中方法耗时短, 效率高, 且对尺度谱细节变化特征反演较好。不过与其他反演方法相似, 在进行尺度谱反演前, 需要大致确定气溶胶复折射率, 多数情况下需依托经验数据或实测数据^[20-27]。因此, 如何确定反演模型中的气溶胶复折射率, 使反演尺度谱误差偏差最小, 需在今后工作中进一步研究。

参 考 文 献:

- [1] Mao Jietai, Zhang Junhua, Wang Meihua. Summary comment on research of atmospherical aerosol in China [J]. Acta Meteorologica Sinca, 2002, 60(5): 625-634. (in Chinese)
毛节泰, 张军华, 王美华. 中国大气气溶胶研究综述[J]. 气象学报, 2002, 60(5): 625-634.
- [2] Sheng Peixuan, Mao Jietai, Li Jianguo, et al. Atmospheric Physics [M]. Beijing: Peking University Press, 2003: 27-28. (in Chinese)

- 盛裴轩, 毛节泰, 李建国, 等. 大气物理学[M]. 北京: 北京大学出版社, 2003: 27-28.
- [3] Zhang Lisheng, Shi Guangyu. The simulation and estimation of radiative properties and radiative forcing due to sulfate and soot aerosols [J]. Chinese Journal of Atmospheric Sciences, 2001, 25(2): 231-242. (in Chinese)
张立盛, 石广玉. 硫酸盐和烟尘气溶胶辐射特性及辐射强迫的模拟估算[J]. 大气科学, 2001, 25(2): 231-242.
- [4] Zhang X Y, Wang Y Q, Zhang X C, et al. Atmospheric aerosol compositions in China: spatial/temporal variability, chemical signature, regional haze distribution and comparisons with global aerosols [J]. Atmospheric Chemistry and Physics, 2012, 12(21): 779-799.
- [5] Mao Jietai, Li Chengcai. Observation study of aerosol radiative properties over China [J]. Acta Meteorologica Sinca, 2005, 63(5): 622-635. (in Chinese)
毛节泰, 李成才. 气溶胶辐射特性的观测研究 [J]. 气象学报, 2005, 63(5): 622-635.
- [6] Curtis D B, Meland B, Aycibin M. A laboratory investigation of light scattering from representative components of mineral dust aerosol at a wavelength of 550 nm [J]. Journal of Geophysical Research, 2008, 113: D08210.
- [7] Setzer D E. Comparison of measured and predicted aerosol scattering functions[J]. Applied Optics, 1969, 8(3): 905-911.
- [8] Xu Li, Fan Xiaobiao, Shi Guangyu, et al. Shape and composition of aerosol in tropospheric and stratospheric atmosphere[J]. Acta Meteorologica Sinca, 1998, 56(5): 551-559. (in Chinese)
许黎, 樊小标, 石广玉, 等. 对流层平流层气溶胶粒子形态与化学组成[J]. 气象学报, 1998, 56(5): 551-559.
- [9] Hudson P K, Gibson E R, Young M A, et al. Coupled infrared extinction and size distribution measurements of several clay components of mineral dust aerosol [J]. Journal of Geophysical Research, 2008, 113: D01201.
- [10] Zhang Chengchang, Zhou Wenxian. Introduction to Atmospheric Aerosol [M]. Beijing: Meteorology Press, 1995: 66-86. (in Chinese)
章澄昌, 周文贤. 大气气溶胶教程[M]. 北京: 气象出版社, 1995: 66-86.
- [11] Castagner J L, Bigio I J. Particle Sizing with a fast polar nephelometer[J]. Applied Optics, 2007, 46(10): 527-532.
- [12] Han Yong, Wang Jianti, Rao Ruizhong, et al. Progress in the study of physic-optics characteristics of atmospheric aerosol [J]. Acta Physica Sinica, 2008, 57(11): 7396-7405. (in Chinese)

- 韩永, 王健体, 饶瑞中, 等. 大气气溶胶物理光学特性研究进展[J]. 物理学报, 2008, 57(11): 7396-7405.
- [13] Rao Ruizhong. Modern Atmospheric Optics [M]. Beijing: Science Press, 2012: 547-576. (in Chinese)
饶瑞中. 现代大气光学[M]. 北京: 科学出版社, 2012: 547-576.
- [14] Phillips D L. A technique for the numerical solution of certain integral equations of the first kind [J]. J Assoc Comput Mach, 1961, 9(13): 84-97.
- [15] Twomey S. Information content in remote sensing [J]. Applied Optics, 1974, 13(11): 942-945.
- [16] Twomey S. Introduction to the Mathematics of Inversion in Remote Sensing and Indirect Measurements [M]. Amsterdam: Elsevier, 1977.
- [17] Bertero M, Mol C D, Pike E R, et al. Linear inverse problems with discrete data I: General formulation and singular system analysis[J]. Inv Probl, 1985, 4(2): 301-330.
- [18] Bertero M, Mol C D, Pike E R, Linear inverse problems with discrete data II: Stability and regularisation [J]. Inv Probl, 1988, 4(2): 573-594.
- [19] Box G P, Sealey K M, Box M A, et al. Inversion of Mie extinction measurements using analytic eigenfunction theory [J]. Journal of the Atmospheric Science, 1992, 49 (22): 2074-2081.
- [20] Curry B P. Constrained eigenfunction method for the inversion of remote sensing data: application to particle size determination from light scattering measurements[J]. Applied Optics, 1989, 28(7): 1345-1355.
- [21] Curry B P, Kiech E L. Determination of the particle size distribution from blind inversion of synthetic data [C]// Proceedings, Chemical Research, Development, and Engineering Center, Scientific Conference on Obscuration and Aerosol Research, 1985: CRDEC-SP-86019.
- [22] Capps C D, Henning R L, Hess G M. Analytic inversion of remote-sensing data [J]. Applied Optics, 1982, 21 (19): 3581-3587.
- [23] Jones M R, Curry B P, Brewster M Q, et al. Inversion of light-scattering measurements for particle size and optical constants: theoretical study[J]. Applied Optics, 1994, 33(18): 4025-4034.
- [24] Jones M R, Leong K H, Brewster M Q, et al. Inversion of light-scattering measurements for particle size and optical constants: experimental study[J]. Applied Optics, 1994, 33(18): 4035-4041.
- [25] Lienert B R, Porter J N, Sharma S K. Aerosol size distributions from genetic inversion of polar nephelometer data [J]. Journal of Atmospheric and Oceanic Technology, 2003, 20(24): 1403-1409.
- [26] Ligon D A, Chen T W, Gillespie J B. Determination of aerosol parameters from light scattering data using an inverse Monte Carlo technique [J]. Applied Optics, 1996, 35 (4): 4297-4303.
- [27] Ye M, Wang S M, Lu Y, et al. Inversion of particle-size distribution from angular light scattering data with genetic algorithms[J]. Applied Optics, 1999, 38(12): 2677-2685.
- [28] Li Xuebin, Hu Shunxing, Zhu Wenyue, et al. Characteristics of aerosol size distribution in Hefei, Yuexi, Xaimen and Beijing [J]. Journal of Atmospheric and Environmental Optics, 2011, 6(2): 154-162. (in Chinese)
李学彬, 胡顺星, 朱文越, 等. 合肥、岳西、厦门、北京气溶胶谱分布分析 [J]. 大气与环境光学学报, 2011, 6(2): 154-162.
- [29] H C Van De Hulst. Light Scattering by Small Particles[M]. New York: Wiley, 1957: 12-100.
- [30] Wang Y F, Zhang Y, Lukyanenko D V. Recovering aerosol particle size distribution function on the set of bounded piecewise-convex functions [J]. Inverse Problems in Science and Engineering, 2012, 21(2): 339-354.
- [31] Tikhonov A N, Arsenin V Y. Solution of Ill-Posed Problems [M]. New York: Wiley, 1977.
- [32] Müller D, Wandinger U, Ansmann A. Microphysical particle parameters from extinction and backscatter lidar data by inversion with regularization: theory [J]. Applied Optics, 1999, 38(12): 2346-2357.
- [33] Li Xuebin, Huang Yinbo, Xu Chidong, et al. Measurement of refractive index for aerosol particle in Xiamen [J]. Optics and Precision Engineering, 2008, 16(10): 1831-1835. (in Chinese)
李学彬, 黄印博, 徐赤东, 等. 厦门地区气溶胶折射率的测量[J]. 光学 精密工程, 2008, 16(10): 1831-1835.