

## 紫外多波长激光雷达的臭氧和气溶胶同步观测研究

赵忆睿<sup>\*\*</sup>, 曹念文<sup>\*</sup>, 贾鹏程, 沈吉

南京信息工程大学气象灾害预报预警与评估协同创新中心, 江苏 南京 210044

**摘要** 为了获取大气复合污染下臭氧和气溶胶的垂直分布信息,利用紫外多波长激光雷达对河北望都县进行了臭氧和气溶胶的同步观测。结果表明:双波长差分吸收反演算法中大气后向散射项引起的臭氧质量浓度误差最大,最大平均质量浓度误差为  $16 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ;三波长差分吸收算法可以减小部分气溶胶的影响。基于反演的臭氧质量浓度,对激光雷达三个波长的消光系数进行臭氧吸收的剔除,得到了各波长的气溶胶消光系数,并且气溶胶参数的反演结果与 AERONET 的气溶胶光学厚度(AOD)数据一致性较好。最后基于紫外多波长激光雷达反演结果、HYSPLIT 后向轨迹分析和 MERRA-2 再分析资料对望都县典型污染天气进行了分析。通过反演 300 m 处的臭氧质量浓度和 300 m 以上的 AOD,发现二者变化趋势相反,并且 AOD 对紫外辐射的抑制作用在中午表现最明显。观测期间,望都县大气污染可能受到西北方向污染物输送的影响。

**关键词** 大气光学; 激光雷达; 臭氧; 气溶胶; 空气污染监测

中图分类号 P407.5

文献标志码 A

DOI: 10.3788/LOP202259.1601001

## Simultaneous Observation of Ozone and Aerosol via Ultraviolet Multi-Wavelength Lidar

Zhao Yirui<sup>\*\*</sup>, Cao Nianwen<sup>\*</sup>, Jia Pengcheng, Shen Ji

*Collaborative Innovation Center on Forecast and Evaluation of Meteorological Disasters, Nanjing University of Information Science & Technology, Nanjing 210044, Jiangsu, China*

**Abstract** The simultaneous observation of ozone and aerosol in Wangdu County, Hebei Province was conducted using an ultraviolet multi-wavelength lidar to obtain vertical distribution information of ozone and aerosol under combined atmospheric pollution. The results show that atmospheric backscattering causes the largest ozone mass concentration error in the dual-wavelength differential absorption inversion algorithm, with a maximum average mass concentration error of  $16 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . The three-wavelength differential absorption algorithm can reduce the influence of some aerosols. The extinction coefficients of the three lidar wavelengths are eliminated by ozone absorption based on the inversion of ozone mass concentration, and the aerosol extinction coefficients of each wavelength are obtained. Moreover, the aerosol parameter inversion results agree well with the AERONET aerosol optical depth (AOD) data. Finally, UV multi-wavelength lidar inversion results, HYSPLIT backward trajectory analysis, and MERRA-2 reanalysis data were used to examine the typical pollution weather in Wangdu County. By the inversion of ozone mass concentration at 300 m and AOD above 300 m, the changing trend of the two is opposite, and the inhibition effect of AOD on UV radiation is most obvious during midday. During the observation period, air pollution in Wangdu County may be affected by pollutants transported from the northwest.

**Key words** atmospheric optics; lidar; ozone; aerosol; air pollution monitoring

## 1 引言

臭氧( $\text{O}_3$ )是大气化学的重要组成物质之一,对全球辐射强迫、生态环境和人体健康等具有重要影响。

仅有 10% 的臭氧分布在对流层中<sup>[1]</sup>,但是臭氧却是对流层中重要的痕量气体之一。大部分对流层臭氧浓度增长是因为臭氧重要前体物包括氮氧化物( $\text{NO}_x$ )和挥发性有机物(VOCs)的大量排放,它们在太阳光

收稿日期: 2021-06-06; 修回日期: 2021-06-10; 录用日期: 2021-06-28

基金项目: 国家重点研发计划(2017YFC0209600, 2018YFC0213100)

通信作者: [nwcao@nuist.edu.cn](mailto:nwcao@nuist.edu.cn); [657539853@qq.com](mailto:657539853@qq.com)

解下发生化学反应,属于二次污染物。随着我国城市发展进程的加快,臭氧污染不容忽视。臭氧已经成为我国仅次于颗粒物的第二大空气污染物。许多研究报告了在中国最发达地区监测到臭氧重污染事件。重度臭氧污染期间,京津冀地区最大臭氧体积比达  $170 \times 10^{-6} \sim 270 \times 10^{-6}$  [2],长三角地区达  $130 \times 10^{-6} \sim 180 \times 10^{-6}$  [3],珠三角地区达  $200 \times 10^{-6} \sim 220 \times 10^{-6}$  [4]。其中京津冀地区的近地面臭氧最大 8 h 浓度升高的趋势不断增长,且最大臭氧质量浓度上升最明显 [5],并且以臭氧为主要空气污染物的天数逐渐增多,因此对臭氧污染天气的监测不可忽视。大气气溶胶是悬浮在空气中的固体或液体颗粒物,其粒径尺度大小从  $0.001 \mu\text{m}$  到  $100 \mu\text{m}$  不等。气溶胶通过散射和吸收作用影响大气辐射,影响城市空气质量,降低大气能见度 [6]。特别是在城市和工业化地区,空气质量(AQI)主要受气溶胶颗粒物的浓度影响。快速发展的工业化和城市化,导致人为排放的气溶胶浓度不断增加,且气溶胶含量超标的地区多集中在人口密集的城市,例如京津冀、长三角、珠三角地区,在重度雾霾天气中,监测到京津冀地区每小时平均  $\text{PM}_{2.5}$  的质量浓度可超过  $600 \mu\text{g}/\text{m}^3$  [7-9]。

激光雷达因空间分辨率高、快速实时、动态范围大等优势成为探测大气垂直分布的一种行之有效的主动遥感。Gong 等 [10] 基于 Mie 散射激光雷达监测到了 2014 年武汉地区一次重雾霾天气,总结了武汉上空对流层气溶胶随时间变化的垂直分布。曹念文等 [11] 利用地基激光雷达研究了南京北郊地区雾霾天气下气溶胶的光学特性。Sheng 等 [12] 利用激光雷达分析了北京地区雾霾天气和清洁天气下气溶胶的光学特性。多波长激光雷达可以利用差分吸收原理,即利用待测气体对不同波长光的吸收程度不同的原理进行气体浓度探测。多波长激光雷达与其他污染气体监测手段相对比,具有较高的时空分辨率和准确度等优点 [13-14]。范广强等 [15] 利用三波长差分吸收激光雷达监测了北京地区的一次灰霾天气下的臭氧垂直分布特征,发现气溶胶与臭氧浓度在不同高度上具有不同的关联特征。秦龙等 [16] 利用三波长差分吸收激光雷达对天津市大气进行了长期观测,得到了天津市的臭氧垂直分布的特征。

多波长激光雷达能够监测污染气体和气溶胶浓度,但是关于颗粒物和臭氧复合型污染二者的垂直分布研究并不多见。本文利用紫外多波长激光雷达对望都地区大气进行垂直监测,对激光雷达数据进行预处理后反演得到气溶胶消光系数和臭氧浓度廓线。通过

应用不受臭氧吸收影响的 396 nm 波长为参考波长,结合双波长和三波长差分吸收反演算法,定量研究紫外多波长激光雷达反演臭氧浓度和气溶胶光学参数的相互影响。并且利用紫外多波长激光雷达观测数据、HYSPLIT 后向轨迹模式 [17] 和 MERRA-2 再分析资料 [18] 分析了此次污染物的来源和传输路径,以期为北方地区空气污染的监测提供更多参考。

## 2 实验观测系统与反演方法

### 2.1 实验观测系统

实验采用的紫外多波长激光雷达系统主要由激光发射系统、光学接收系统、数据采集处理系统三部分组成。激光雷达系统的基本结构如图 1 所示。臭氧的 Hartley 吸收带波长位于紫外波段,激光发射系统中 Nd:YAG 固体激光器经过  $\text{CO}_2$  拉曼管作用后可以产生 276, 287, 299 nm 波长的激光 [19], 所得波长激光经扩束镜扩束后垂直发射至大气,再由望远镜接收激光束的弹性后向散射光,经光栅光谱仪分光后,由光电倍增管将接收的光信号转换为电流信号进行数据采集,采集的原始信号存储在计算机中。

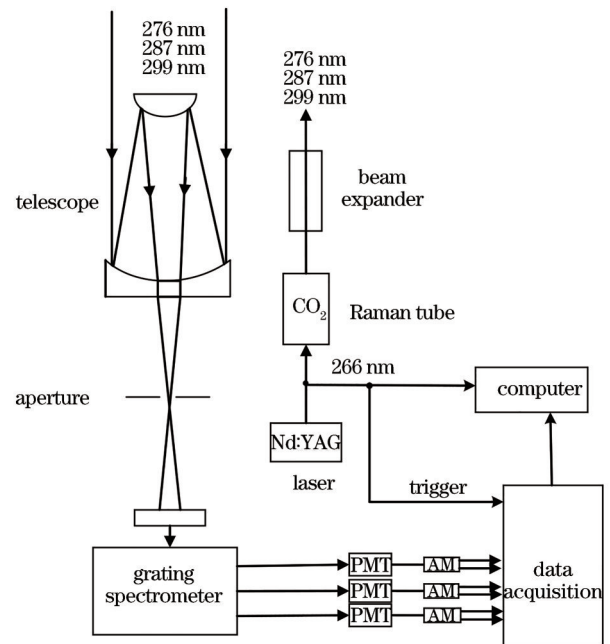


图 1 激光雷达系统结构示意图

Fig. 1 Schematic of lidar system structure

### 2.2 数据反演方法

#### 2.2.1 气溶胶消光系数的反演

采用 Fernald 方法 [20] 反演气溶胶消光系数,并采用稳定的后向积分方法,计算公式为

$$\alpha_{\text{aer}}(z) = \frac{P(z) \exp \left[ -2 \left( \frac{S_{\text{aer}}}{S_{\text{mol}}} - 1 \right) \int_z^{z_0} \alpha_{\text{mol}}(z') dz' \right]}{\frac{P(z_0)}{\alpha_{\text{aer}}(z_0) + \frac{S_{\text{aer}}}{S_{\text{mol}}} \alpha_{\text{mol}}(z_0)} + 2 \int_z^{z_0} P(z) \exp \left[ 2 \left( \frac{S_{\text{aer}}}{S_{\text{mol}}} - 1 \right) \int_z^{z_0} \alpha_{\text{mol}}(z') dz' \right] dz} - \frac{S_{\text{aer}}}{S_{\text{mol}}} \alpha_{\text{mol}}(z), \quad (1)$$

式中： $P(z)$ 为激光雷达接收的高度 $z$ 处的大气后向散射回波信号强度； $\alpha_{\text{aer}}(z)$ 为高度 $z$ 处的气溶胶消光系数； $\alpha_{\text{mol}}(z)$ 为高度 $z$ 处的大气分子消光系数；气溶胶 Mie 散射产生的消光后向散射比为  $S_{\text{aer}} = \alpha_{\text{aer}}(z)/\beta_{\text{aer}}(z)$ ，取  $S_{\text{aer}} = 50 \text{ sr}$ ；大气分子瑞利散射产生的消光后向散射比为  $S_{\text{mol}} = \alpha_{\text{mol}}(z)/\beta_{\text{mol}}(z) = 8\pi/3$ 。

### 2.2.2 臭氧质量浓度的反演

双波长差分吸收激光雷达可以根据一组  $\lambda_{\text{on}}$  和  $\lambda_{\text{off}}$  的回波信号反演得到臭氧的质量浓度，高度 $z$ 处的臭氧质量浓度<sup>[15]</sup>为

$$N(z) = -\frac{1}{2\Delta\sigma} \frac{d}{dz} \left[ \ln \frac{P(\lambda_{\text{on}}, z)}{P(\lambda_{\text{off}}, z)} \right] - B - E_A - E_M, \quad (2)$$

$$\Delta\sigma = \sigma(\lambda_{\text{on}}) - \sigma(\lambda_{\text{off}}), \quad (3)$$

$$E_M = \frac{1}{\Delta\sigma} [\alpha_M(\lambda_{\text{on}}, z) - \alpha_M(\lambda_{\text{off}}, z)], \quad (4)$$

$$E_A = \frac{1}{\Delta\sigma} [\alpha_A(\lambda_{\text{on}}, z) - \alpha_A(\lambda_{\text{off}}, z)], \quad (5)$$

$$B = -\frac{1}{2\Delta\sigma} \frac{d}{dz} \left[ \ln \frac{\beta(\lambda_{\text{on}}, z)}{\beta(\lambda_{\text{off}}, z)} \right], \quad (6)$$

式中： $E_M$ 、 $E_A$ 和 $B$ 统称为大气干扰项，其中 $E_M$ 、 $E_A$ 分布是大气分子和大气气溶胶消光系数引起的， $B$ 为大气（包括大气分子和气溶胶）后向散射系数引起的。消除气溶胶对臭氧探测的影响对提高臭氧探测的精度至关重要。对于大气分子消光作用项 $E_M$ ，可利用1976美国标准大气模式来计算。由于大气气溶胶的复杂性和变化性，通常利用实时测量的气溶胶消光系数来计算 $E_A$ 。

三波长差分吸收激光雷达可以将三个波长组成两组  $\lambda_{\text{on}}$  和  $\lambda_{\text{off}}$ 。臭氧数密度廓线方程<sup>[21]</sup>为

$$N(z) = -\frac{1}{2\Delta\sigma} \left\{ \frac{d}{dz} \left[ -\ln \frac{P(\lambda_{1\text{on}}, z)}{P(\lambda_{1\text{off}}, z)} + C \ln \frac{P(\lambda_{2\text{on}}, z)}{P(\lambda_{2\text{off}}, z)} \right] + B'(z) + E'(z) \right\}, \quad (7)$$

其中，

$$\Delta\sigma = (\sigma_{\lambda_{1\text{on}}} - \sigma_{\lambda_{1\text{off}}}) - C(\sigma_{\lambda_{2\text{on}}} - \sigma_{\lambda_{2\text{off}}}), \quad (8)$$

$$B'(z) = B_1(z) - CB_2(z), \quad (9)$$

$$E'(z) = E_1(z) - CE_2(z). \quad (10)$$

通过假设粒子谱分布满足 Junge 分布，就可以得到

$$B'(z) \simeq \frac{(\lambda_{1\text{on}} - \lambda_{1\text{off}}) - C(\lambda_{2\text{on}} - \lambda_{2\text{off}})}{\lambda_{2\text{off}}} \times (4 - \eta) \frac{d}{dz} \ln \frac{R_{\lambda_{2\text{off}}}(z) - 1}{R_{\lambda_{2\text{off}}}(z)}, \quad (11)$$

$$E'(z) \simeq 2 \frac{(\lambda_{1\text{on}} - \lambda_{1\text{off}}) - C(\lambda_{2\text{on}} - \lambda_{2\text{off}})}{\lambda_{2\text{off}}} \times [\gamma \alpha_{\lambda_{2\text{off}}}^{\text{aer}}(z) + 4\alpha_{\lambda_{2\text{off}}}^{\text{mol}}(z)]. \quad (12)$$

根据式(11)和式(12)可得，若选取 $C$ 使得 $(\lambda_{1\text{on}} - \lambda_{1\text{off}}) - C(\lambda_{2\text{on}} - \lambda_{2\text{off}}) = 0$ ，那么就可以消除激光雷达公式中的气溶胶和大气分子的后向散射项和消光系数项的影响，将所计算的 $C$ 值代入式(7)就可以计算准确度较高的臭氧数密度廓线。

### 2.2.3 气溶胶光学厚度的计算

气溶胶的光学厚度(AOD)是指单位面积上气溶胶产生的总衰减，包括散射和吸收作用。AOD定义为气溶胶消光系数廓线的积分，计算公式为

$$D_{\text{AOD}} = \int_0^h \alpha_{\text{aer}}(h) dh, \quad (13)$$

式中： $\alpha_{\text{aer}}(h)$ 为气溶胶的消光系数； $h$ 为积分高度。通常AOD的增加表示观测地区的气溶胶浓度较高。

### 2.2.4 大气边界层高度的计算

在对流层低空且受地面影响较大的大气区域被称为大气边界层。应用梯度法结合滑动窗口的方法反演大气边界层高度。首先对激光雷达反演的气溶胶消光系数进行求导，将气溶胶消光系数变化最大值所在的高度确定为边界层高度。利用梯度法反演边界层高度时，对信噪比要求较高。激光雷达反演得到的气溶胶消光系数 $\alpha(z)$ 的梯度 $D(z)$ 可以表示为

$$D(z) = \frac{d}{dz} \alpha(z). \quad (14)$$

## 3 资料处理与分析计算

### 3.1 臭氧质量浓度廓线的反演

在使用激光雷达对大气进行探测时，接收的后向散射信号中除了包含所需要的有用回波信号外，还包含着噪声信号<sup>[22]</sup>。臭氧的Hartley吸收带位于紫外波段，吸收带的中心波长为255 nm。实验所用的多波长激光雷达的276, 287, 299 nm波长位于Hartley吸收带，而辅助观测使用的Mie散射激光雷达的396 nm波长位于Hartley吸收带外，所以396 nm波长的激光能量衰减可以看成仅受气溶胶和大气分子因素影响。将



去噪平滑后的回波信号代入差分吸收反演算法进行臭氧浓度反演,可以减小噪声的影响。图 2 是实验获得的一组去噪后的 276, 287, 299, 396 nm 波长信号回波

强度图。实验采集的各波长的原始数据具有 7.5 m 的垂直分辨率。图 2(b) 中,去噪后的回波信号更加光滑,信号变化较为连续。

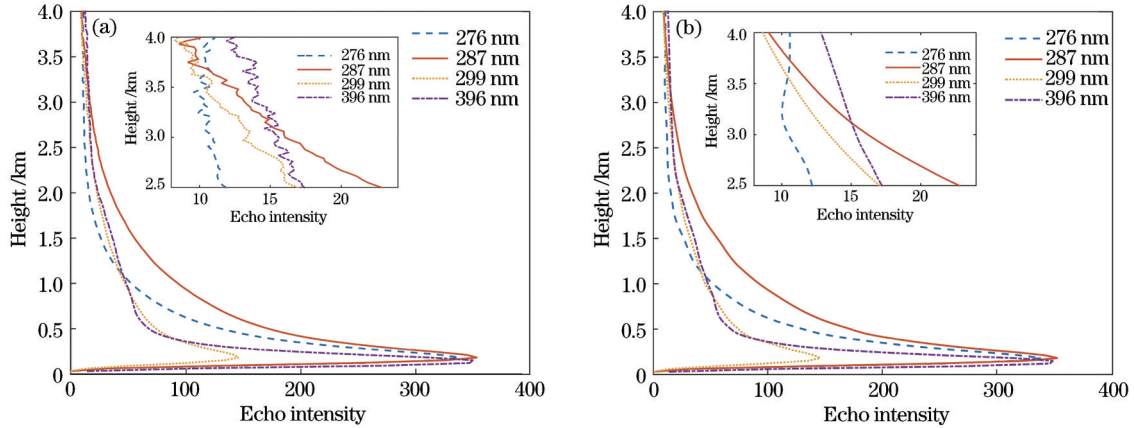


图 2 小波去噪前后的数据对比。(a)去噪前;(b)去噪后

Fig. 2 Data comparison before and after wavelet denoising. (a) Before denoising; (b) after denoising

### 3.1.1 双波长与三波长算法反演结果对比

在使用双波长差分吸收激光雷达反演臭氧浓度时,为了满足差分吸收原理, on 波长靠近臭氧吸收线的峰值, off 波长位于臭氧吸收线的边翼,且两个波长相距不能太远,故选择 276 nm 为  $\lambda_{on}$ , 299 nm 为  $\lambda_{off}$ 。选取 12 月 17 日夜间的观测数据,此时 500 m 以上高度均存在较高浓度的臭氧和气溶胶。根据双波长差分吸收反演算法,假设在无法去除气溶胶和大气分子引起的误差时,反演得到的臭氧质量浓度廓线如图 3 所示。如图 3(a) 所示,当使用不同的差分分辨率  $dz$  时,获得的臭氧质量浓度廓线略有差别。当  $dz=30$  m 时,所得

的臭氧质量浓度廓线波动较大,臭氧质量浓度变化不连续;当反演的分辨率  $dz$  从 30 m 增加至 300 m 时,臭氧的质量浓度廓线变化趋于连续。结论说明,增加反演的分辨率值,通过长时间信号累计,统计误差得到降低<sup>[15]</sup>。然而在实际探测中,为了减小臭氧质量浓度的统计误差,同时要满足探测的分辨率要求,可以在不同的高度区间使用不同的分辨率进行反演。高度在 1.5 km 以下时,可以采用分辨率为 150 m 进行反演,满足低空臭氧质量浓度探测分辨率较高的需求;而高度在 1.5 km 以上时,分辨率可以取为 300 m,也可以得到臭氧质量浓度的连续变化情况。

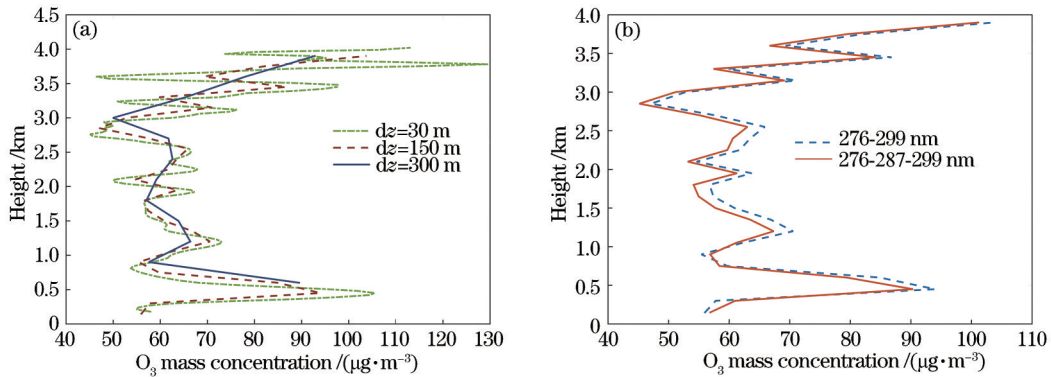


图 3 不同差分分辨率和不同波长算法反演的臭氧质量浓度廓线对比。(a)不同差分分辨率;(b)不同波长

Fig. 3 Comparison of ozone mass concentration profiles retrieved by different differential resolutions and wavelength algorithms.

(a) Different differential resolutions; (b) different wavelengths

与双波长差分算法相比,多波长激光雷达应用三波长双差分反演算法时能够减小气溶胶影响<sup>[23]</sup>。图 3(b) 为激光雷达同一时刻分别使用双波长和三波长双差分吸收算法反演的臭氧质量浓度廓线。其中双波长算法使用的是 276 nm 和 299 nm 波长组合,三波长双差分算法使用的是 276, 287, 299 nm 波长组合,并且算法中的差分分辨率  $dz$  都设置为 150 m。由图 3(b)

可以看出,三波长和双波长反演的臭氧质量浓度廓线略有差别,其中气溶胶在高空 2.5 km 以上分布较少,这两种方法的反演结果较为一致。但是低空受气溶胶影响,双波长反演结果偏大。当使用双波长差分吸收激光雷达观测臭氧质量浓度时,如果气溶胶较少,在不需要进行精确测量时,可以忽略气溶胶和大气分子对臭氧质量浓度反演的影响。在实际观测中,若气溶胶分布较多,

双波长差分吸收激光雷达无法进行大气干扰项的消除。多波长激光雷达的反演结果优于双波长差分吸收激光雷达,同时也可以应用在灰霾天气下对臭氧进行垂直观测,减小气溶胶对臭氧质量浓度反演的影响。

### 3.1.2 气溶胶对臭氧质量浓度反演的影响

为了量化双波长差分吸收反演算法中大气干扰项产生的误差,使用该多波长激光雷达获得了 2018 年 12 月 17 日晚 20 点至 2018 年 12 月 18 日凌晨 2 点大气回波信号,同时联合使用波长为 396 nm 的 Mie 散射激光雷达进行气溶胶观测。考虑大部分大气气溶胶存在于近地面,故选取 3 km 以下的数据进行讨论。图 4(a) 为波长 396 nm 的 Mie 散射激光雷达反演的气溶胶消光系数廓线图。在 300 m 处气溶胶消光系数均为每个时刻整层大气气溶胶消光系数的最大值,平均值为  $1.2 \text{ km}^{-1}$ ,说明大多数气溶胶在这一高度层上。随着高度的增加,气溶胶消光系数不断减小。大气后向散射项包括大气气溶胶与大气分子两项。根据激光雷达 396 nm 回波信号反演得到的气溶胶参数,通过波长转换可以得到 276 nm 和 299 nm 的气溶胶后向散射系数和消光系数。大气气溶胶和大气分子后向散射项  $B$  引起的臭氧质量浓度误差如图 4(b) 所示。大气后向散

射引起的臭氧质量浓度误差波动程度较大,并且在低空气溶胶分布较多时,产生的最大平均质量浓度误差为  $16 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 。后向散射项引起的质量浓度误差与气溶胶垂直分布情况相似,主要与大气气溶胶的浓度有关。图 4(c) 为大气气溶胶消光项  $E_A$  引起的臭氧质量浓度误差。臭氧质量浓度误差随高度的升高不断减小,近地面气溶胶消光项引起的最大质量浓度误差均值为  $9.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 。大多数气溶胶存在于近地面,此高度处的气溶胶平均消光系数为  $1.2 \text{ km}^{-1}$ ,对臭氧质量浓度反演产生了较大影响。但是随着高度增高,气溶胶质量浓度不断降低,气溶胶消光项产生的臭氧质量浓度误差也不断减小,在 3 km 处气溶胶的含量逐渐降低,气溶胶平均消光系数为  $0.02 \text{ km}^{-1}$ ,大气气溶胶消光系数对臭氧质量浓度反演的误差接近于 0。图 4(d) 为大气分子消光项  $E_M$  引起的臭氧质量浓度误差。在 300 m 处大气分子消光项引起的臭氧质量浓度误差为  $4.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ,并且随着高度的增加,臭氧质量浓度误差也逐渐减小,在 3 km 处时臭氧质量浓度误差减小到  $2.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 。由此可见在灰霾天,使用双波长差分吸收激光雷达反演臭氧质量浓度时,要考虑大气干扰项对臭氧质量浓度反演的影响。

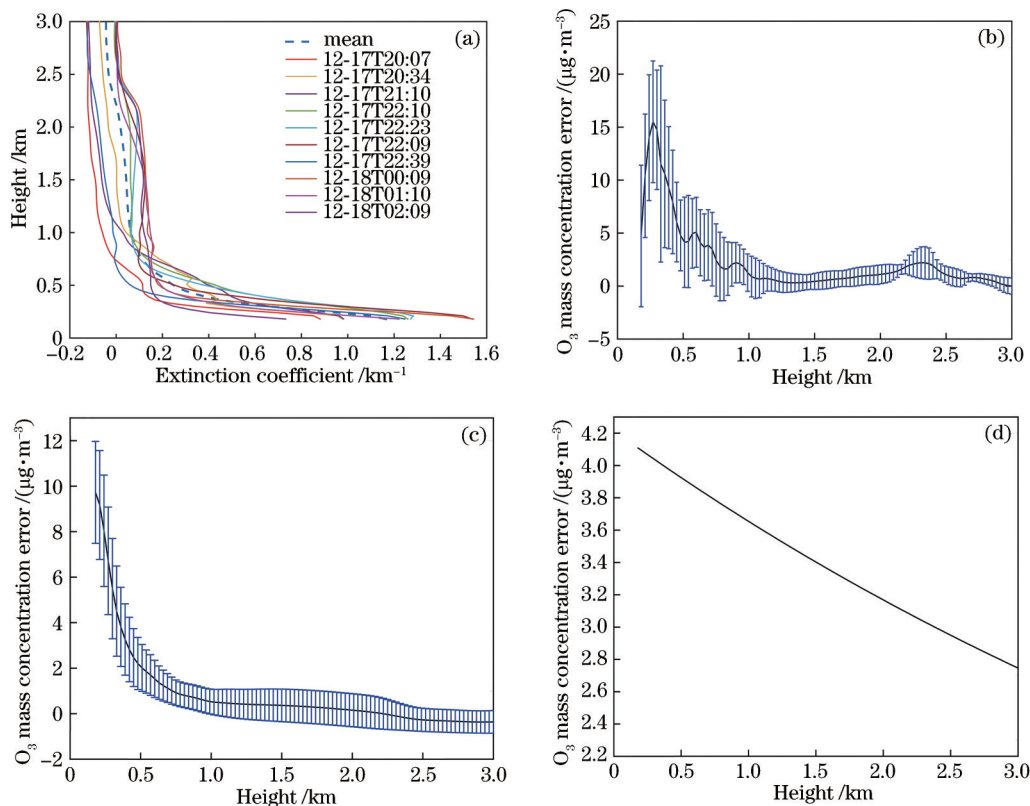


图 4 气溶胶消光系数和大气干扰项产生的臭氧质量浓度误差。(a)不同时刻的 396 nm 气溶胶消光系数;(b)大气后向散射项引起的臭氧质量浓度误差;(c)气溶胶消光项引起的臭氧质量浓度误差;(d)大气分子消光项引起的臭氧质量浓度误差

Fig. 4 Aerosol extinction coefficient and  $\text{O}_3$  mass concentration error generated by atmospheric interference term. (a) Aerosol extinction coefficient at 396 nm at different moments; (b)  $\text{O}_3$  mass concentration error of atmospheric backscattering term; (c)  $\text{O}_3$  mass concentration error of aerosol extinction term; (d)  $\text{O}_3$  mass concentration error of atmospheric molecular extinction term

### 3.2 气溶胶消光系数的反演

气溶胶消光系数间接反映了被测区域内气溶胶的含量。因为夜间激光雷达信号不受太阳光影响,同时此时近地面出现臭氧和气溶胶浓度增加的趋势,所以选取 2018 年 12 月 18 日凌晨的数据进行讨论。图 5(a)为同时刻基于紫外多波长激光雷达使用三波长双差分吸收算法反演的臭氧质量浓度廓线。对去噪后的 396 nm 波长回波信号使用 Fernald 方法处理,反演的气溶胶消光系数如图 5(b)所示,为了避免几何重叠因子对低空信号的影响,所以选取高度在 150 m 以上进行数据分析。由于 396 nm 波长的激光不在臭氧的紫外吸收带范围内,所以使用 396 nm 回波信号反演的气溶胶消光系数不受臭氧吸收的影响。由图 5(b)可知,随高度的增加,气溶胶的消光系数不断减小,在 300 m 处存在一个气溶胶消光系数的峰值,最大值为  $1.25 \text{ km}^{-1}$ ,说明近地面存在一个较高浓度的气溶胶层。剔除臭氧吸收的紫外多波长激光

雷达对三个波长的气溶胶消光系数如图 5(c)所示。剔除臭氧吸收后的气溶胶消光系数与 396 nm 激光雷达反演的气溶胶消光系数的变化趋势相似。1.5 km 以上时 276 nm 的消光系数衰减为负值,所以选取 1.5 km 以下的的数据进行讨论。气溶胶多聚集在 300~500 m 的高度层。图 5(c)中 300 m 高度处各波长的消光系数均偏大,说明此处气溶胶颗粒物较多。由于此数据为夜间观测数据,该现象可能与夜间边界层高度下降、颗粒物向地面沉降有关。图 5(d)为紫外多波长激光雷达的各波长消光系数绝对误差。该绝对误差即剔除臭氧吸收前后的消光系数的差值。由图 5(d)可以看出,三个波长的消光系数绝对误差变化趋势与臭氧质量浓度变化相似。276 nm 波长的消光系数的绝对误差最大,其次是 287 nm,绝对误差最小的是 299 nm,说明 299 nm 处反演的气溶胶消光系数受臭氧影响小,气溶胶消光系数的绝对误差仅为  $0.002 \text{ km}^{-1}$ 。

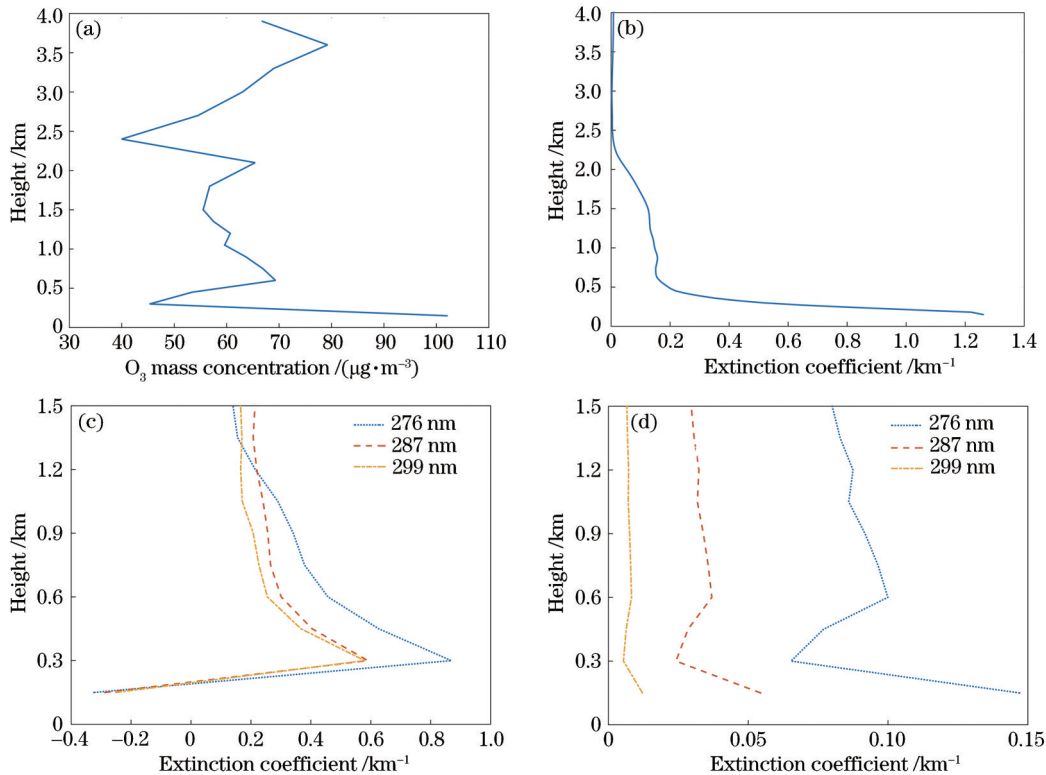


图 5 夜间臭氧和气溶胶反演结果。(a)  $\text{O}_3$  质量浓度廓线; (b) 396 nm 的气溶胶消光系数; (c) 剔除臭氧吸收系数后的气溶胶消光系数; (d) 消光系数绝对误差

Fig. 5  $\text{O}_3$  and aerosol inversion results at night. (a)  $\text{O}_3$  mass concentration profile; (b) aerosol extinction coefficient at 396 nm; (c) aerosol extinction coefficient without  $\text{O}_3$  absorption coefficient; (d) absolute error of extinction coefficient

### 3.3 臭氧和气溶胶的连续观测实例分析

观测所用的紫外多波长激光雷达位于河北省保定市望都县 ( $38.709^\circ \text{N}$ ,  $115.237^\circ \text{E}$ )。图 6(a)为 2018 年 12 月 15 日夜间至 18 日该紫外多波长激光雷达数据反演的垂直方向臭氧质量浓度时序图,对 276, 287, 299 nm 波长数据进行预处理后使用三波长差分吸收

算法反演臭氧质量浓度。从图 6(a)看出,在垂直方向 1.5 km 以下,臭氧的质量浓度呈现明显的日变化,通常在午后臭氧质量浓度达到峰值。图 6(b)为该多波长激光雷达 299 nm 波长数据剔除臭氧吸收后的气溶胶消光系数时序图。图 6 中的实线为边界层高度,观测期间边界层的平均高度在 500 m 左右,通常白天边



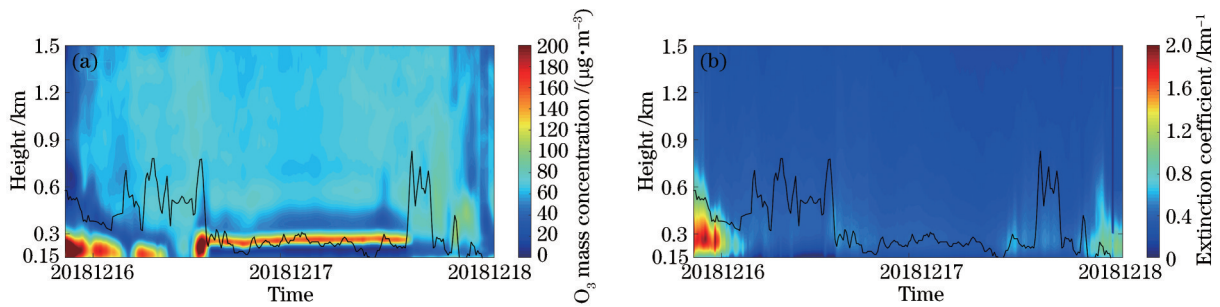


图 6 紫外多波长激光雷达反演结果。(a)臭氧质量浓度;(b)气溶胶消光系数

Fig. 6 Inversion results of UV multi-wavelength lidar. (a)  $O_3$  mass concentration; (b) aerosol extinction coefficient

边界层高度要高于夜间。在污染发生时段边界层高度降低,且污染程度不同,边界层的最低高度也不同,在观测期间重污染天气中白天边界层最低高度仅为 150 m。

15 日夜间至 16 日凌晨期间,300 m 高度附近气溶胶消光系数较大,颗粒物质量浓度偏高,为典型的灰霾天气,并且当时的臭氧质量浓度超过臭氧污染二级标准( $200 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ),所以此次污染为臭氧和颗粒物的复合型污染。15 日夜间,300 m 以下的臭氧峰值质量浓度从  $260 \mu\text{g}/\text{m}^3$  逐渐降低至  $130 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ,质量浓度峰值所在高度从 210 m 下降至 180 m。其变化趋势与边界层高度下降相似,可能是因为夜间边界层下降,污染物向地面聚集。16 日凌晨,300 m 以下的臭氧质量浓度呈再次增长趋势,质量浓度峰值增加到  $177 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ,但是质量浓度峰值所在高度无明显变化。随后随着边界层高度的升高,300 m 以上的臭氧质量浓度逐渐增加,污染向高空输送。

16 日中午至 17 日下午为一次臭氧重污染天气。16 日 12 时开始,在 400 m 以下出现一个臭氧污染带,峰值浓度为  $243 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ,峰值浓度所在高度为 240 m,此时同一高度处的气溶胶消光系数较小,小于  $0.3 \text{ km}^{-1}$ ,同时边界层高度下降,低于 300 m。至 18 时,240 m 处气溶胶消光系数增加至  $0.5 \text{ km}^{-1}$ ,臭氧质量浓度下降至  $147 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 。有研究表明白天气溶胶会对臭氧的质量浓度分布产生影响<sup>[24]</sup>。17 日 06:40 至 15:49,受人类生活排放影响,气溶胶消光系数开始逐渐增大,气溶胶层的厚度从 100 m 增长到 500 m 左右,边界层高度逐渐上升。午后边界层高度增长至 850 m,有利于污染物的扩散,15:49 臭氧质量浓度降低,峰值浓度仅为  $78 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 。

图 7 为 12 月 17 日白天期间,300 m 处的臭氧质量浓度与 AOD 的变化。其中 AOD 的高度积分区间为 300 m 至 4 km。由图 7 可知,AOD 的变化区间为 0.5~0.59,臭氧质量浓度的变化区间为  $71\sim 114 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 。从整体趋势上看,臭氧质量浓度与 AOD 变化趋势相反。从 7 时至 11 时期间,臭氧一直保持在较高的浓度,而 AOD 呈逐渐增加的趋势,此期间 AOD 对臭氧质量浓度的影响不明显;在 11 时至 13 时期间,AOD 连续两次

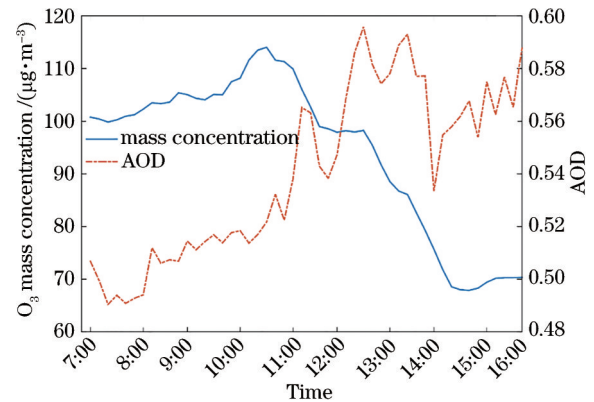


图 7 300 m 臭氧质量浓度与气溶胶光学厚度(AOD)的变化  
Fig. 7 Changes of  $O_3$  mass concentration at 300 m and aerosol optical depth (AOD)

急剧增加,并保持在 0.58 左右,此期间的臭氧质量浓度出现了两次的急剧下降;在 14 时,AOD 急剧下降,同时臭氧质量浓度不再降低并保持在  $68 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ;而后至 16 时,随着 AOD 的缓慢增加,臭氧质量浓度几乎不变。有学者研究发现,冬季期间臭氧质量浓度与气溶胶质量浓度呈负相关<sup>[24]</sup>,这主要是因为气溶胶的分布会影响太阳紫外辐射,影响光化学反应的进行,从而对臭氧质量浓度产生影响。气溶胶辐射效应会对臭氧质量浓度产生明显抑制作用,同时 AOD 对紫外辐射的抑制作用在中午最明显。但是影响臭氧质量浓度的因素较多,除了太阳紫外辐射以外,还有臭氧的前体物  $\text{NO}_x$  和挥发性有机物 VOCs 以及远距离输送等。

为了确定污染时段气团输送途径,对监测到污染的前 24 小时不同高度的气团轨迹进行追踪分析,如图 8 所示。利用 NOAA 的全球同化系统(GDAS)气象资料进行后向轨迹计算,选择的起始点为河北望都县( $38.709^\circ \text{N}, 115.237^\circ \text{E}$ )。图 9 为 MERRA-2 同化产品得到的 15 和 16 日 12 时 30 分望都地区 975 hPa(约 350 m)高度大气中臭氧质量混合比。第一次污染期间,由于污染所在高度低于 500 m,所以模拟高度分别选择 150, 300, 800 m。由图 8(a)可知,三个气团来自望都县的西北方向,途经山西省。300 m 处的气团由 500 m 高度的气团输送到观测地得到,结合图 9(a)可以看出 15 日午后望都县西北地区臭氧质量混合比较

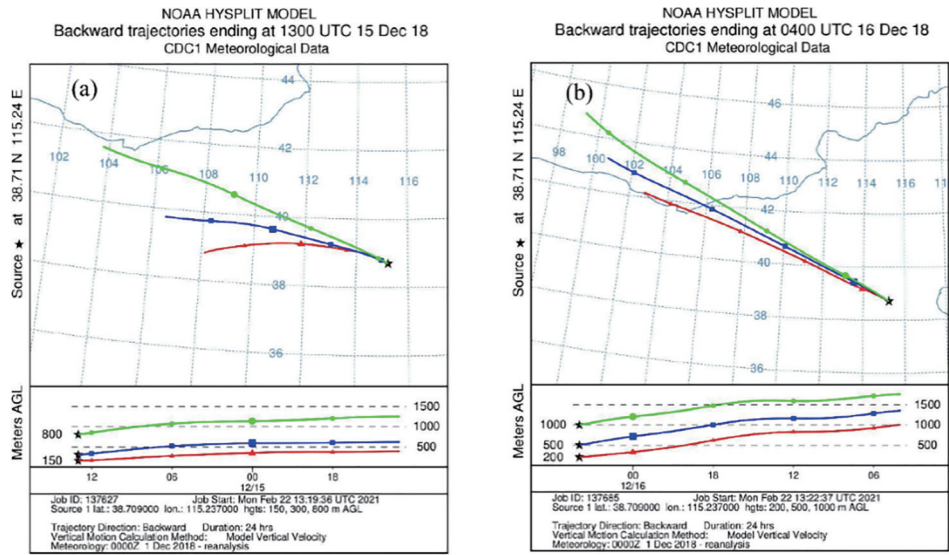


图 8 24 h 气团后向轨迹。(a) 12 月 15 日 21 时; (b) 12 月 16 日 12 时

Fig. 8 Air mass backward trajectories among 24h. (a) 21:00 on 15th December; (b) 12:00 on 16th December

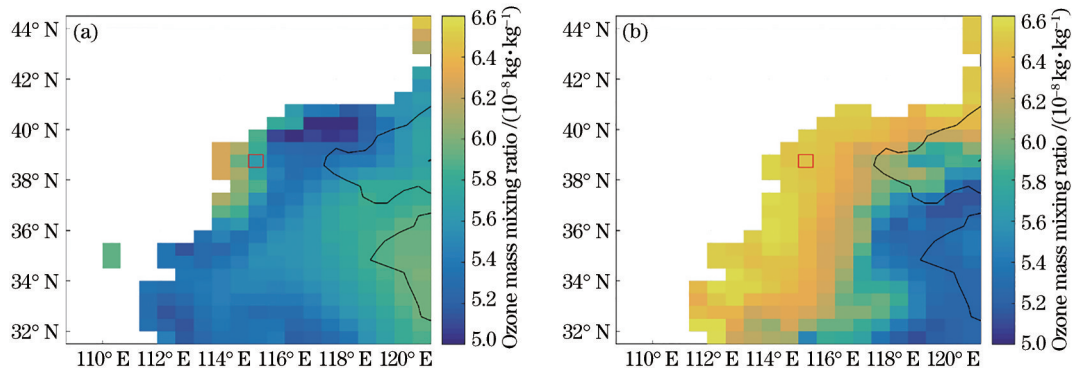


图 9 望都地区 975 hPa 高度的 MERRA-2 得到的臭氧质量混合比。(a) 12 月 15 日; (b) 12 月 16 日

Fig. 9  $O_3$  mass mixing ratio obtained by MERRA-2 at 975 hPa in the Wangdu area. (a) On 15th December; (b) on 16th December

大,所以当地污染可能受西北方向的污染输送影响。图 8(b)是发生第二次污染前 24 小时的气团后向轨迹,模拟高度分别选择 200, 500, 1000 m, 三个气团均来自望都县的西北方向。在污染发生前 4 小时三个气团的下降高度约 300 m。200 m 高度处的气团由高空 1 km 处的气团下沉得到,结合图 9(b)可以看出 16 日午后望都县西北地区臭氧质量混合比与 15 日相比明显增加,所以当地污染可能仍然受西北方向的污染输送影响。

#### 4 结 论

基于紫外多波长激光雷达反演得到了臭氧质量浓度廓线和气溶胶光学参数,定量研究了紫外多波长激光雷达在同时观测臭氧和气溶胶时二者的相互影响。并且利用紫外多波长激光雷达观测数据、HYSPLIT 后向轨迹模式和 MERRA-2 再分析资料对河北望都大气臭氧和气溶胶进行了一次同步观测实验分析,结果表明:在使用差分吸收算法反演臭氧质量浓度时,可以通过增加差分分辨率来减小统计误差。基于双波长差分吸收激光雷达算法反演臭氧质量浓度,当低空大气

气溶胶较多时,后向散射项对臭氧质量浓度影响最大,最大平均误差可达  $16 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 。在雾霾天使用双波长差分吸收激光雷达反演臭氧质量浓度时,不能忽略掉大气干扰项的影响。紫外多波长激光雷达的回波数据中同时含有气溶胶信息,可以通过剔除各波长的臭氧吸收系数来获得各波长的气溶胶消光系数。299 nm 反演的气溶胶消光系数受臭氧影响小,气溶胶消光系数的绝对误差为  $0.002 \text{ km}^{-1}$ 。

紫外多波长激光雷达可进行 24 h 的连续观测,能够在雾霾和臭氧污染下对大气进行实时监测。重污染天气期间边界层高度低于 300 m,并且边界层最低高度达到 150 m。通过计算 300 m 处的臭氧质量浓度和 300 m 以上高度的 AOD,发现二者变化趋势相反,说明气溶胶质量浓度可能会对臭氧质量浓度的增加产生部分抑制作用,并且 AOD 对紫外辐射的抑制作用在中午最明显。结合 HYSPLIT 后向轨迹分析和 MERRA-2 再分析资料发现,本次污染可能受到西北方向污染气团输送的影响。



## 参 考 文 献

- [1] Staehelin J, Harris N R P, Appenzeller C, et al. Ozone trends: a review[J]. *Reviews of Geophysics*, 2001, 39(2): 231-290.
- [2] Wei W, Lü Z F, Cheng S Y, et al. Characterizing ozone pollution in a petrochemical industrial area in Beijing, China: a case study using a chemical reaction model[J]. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2015, 187(6): 377.
- [3] Ding A J, Fu C B, Yang X Q, et al. Ozone and fine particle in the western Yangtze River Delta: an overview of 1 yr data at the SORPES station[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2013, 13(11): 5813-5830.
- [4] Wang T, Tham Y J, Xue L K, et al. Observations of nitryl chloride and modeling its source and effect on ozone in the planetary boundary layer of Southern China[J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2016, 121(5): 2476-2489.
- [5] 余益军, 孟晓艳, 王振, 等. 京津冀地区城市臭氧污染趋势及原因探讨[J]. *环境科学*, 2020, 41(1): 106-114.  
Yu Y J, Meng X Y, Wang Z, et al. Driving factors of the significant increase in surface ozone in the Beijing-Tianjin-Hebei region, China, during 2013—2018[J]. *Environmental Science*, 2020, 41(1): 106-114.
- [6] Li S X, Chen L L, Huang G, et al. Retrieval of surface PM<sub>2.5</sub> mass concentrations over North China using visibility measurements and GEOS-Chem simulations[J]. *Atmospheric Environment*, 2020, 222: 117121.
- [7] Wang Y S, Yao L, Wang L L, et al. Mechanism for the formation of the January 2013 heavy haze pollution episode over central and Eastern China[J]. *Science China Earth Sciences*, 2014, 57(1): 14-25.
- [8] Wang H L, An J L, Shen L J, et al. Mechanism for the formation and microphysical characteristics of submicron aerosol during heavy haze pollution episode in the Yangtze River Delta, China[J]. *Science of the Total Environment*, 2014, 490: 501-508.
- [9] Huang R J, Zhang Y, Bozzetti C, et al. High secondary aerosol contribution to particulate pollution during haze events in China[J]. *Nature*, 2014, 514(7521): 218-222.
- [10] Gong W, Liu B M, Ma Y Y, et al. Mie LIDAR observations of tropospheric aerosol over Wuhan[J]. *Atmosphere*, 2015, 6(8): 1129-1140.
- [11] 曹念文, 杨丰恺, 施建中, 等. 南京地区低空雾霾气溶胶的拉曼-瑞利-米激光雷达测量[J]. *应用光学*, 2012, 33(5): 979-984.  
Cao N W, Yang F K, Shi J Z, et al. Low altitude fog-haze measurements by Raman-Rayleigh-Mie lidar in Nanjing[J]. *Journal of Applied Optics*, 2012, 33(5): 979-984.
- [12] Sheng Z Z, Che H Z, Chen Q L, et al. Aerosol vertical distribution and optical properties of different pollution events in Beijing in autumn 2017[J]. *Atmospheric Research*, 2019, 215: 193-207.
- [13] 胡顺星, 陈亚峰, 刘秋武, 等. 差分吸收激光雷达系统探测背景大气 SO<sub>2</sub> 和 NO<sub>2</sub>[J]. *中国激光*, 2018, 45(9): 0911009.
- Hu S X, Chen Y F, Liu Q W, et al. Differential absorption lidar system for background atmospheric SO<sub>2</sub> and NO<sub>2</sub> measurements[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2018, 45(9): 0911009.
- [14] 范广强, 刘建国, 陈臻懿, 等. 一套测量对流层臭氧的差分吸收激光雷达系统[J]. *中国激光*, 2012, 39(11): 1113001.  
Fan G Q, Liu J G, Chen Z Y, et al. A differential absorption lidar system for tropospheric ozone monitoring[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2012, 39(11): 1113001.
- [15] 范广强, 张天舒, 付毅宾, 等. 差分吸收激光雷达监测北京灰霾天臭氧时空分布特征[J]. *中国激光*, 2014, 41(10): 1014003.  
Fan G Q, Zhang T S, Fu Y B, et al. Temporal and spatial distribution characteristics of ozone based on differential absorption lidar in Beijing[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2014, 41(10): 1014003.
- [16] 秦龙, 高玉平, 王文秀, 等. 差分吸收激光雷达用于探测天津市夏秋季臭氧垂直分布特征[J]. *光学精密工程*, 2019, 27(8): 1697-1703.  
Qin L, Gao Y P, Wang W X, et al. Observation of vertical distribution of ozone based on differential absorption lidar during summer and autumn in Tianjin[J]. *Optics and Precision Engineering*, 2019, 27(8): 1697-1703.
- [17] 庄全风, 王一萌, 王章军, 等. 多波长气溶胶激光雷达观测北京地区持续性雾霾的典型案例分析[J]. *激光与光电子学进展*, 2019, 56(24): 240101.  
Zhuang Q F, Wang Y M, Wang Z J, et al. Typical case of multi-wavelength aerosol lidar observation of persistent hazy weather in Beijing[J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2019, 56(24): 240101.
- [18] 朱倩, 潘增新, 毛飞跃, 等. 中国区域 CALIPSO 和 MERRA-2 气溶胶三维参数对比验证[J]. *红外与激光工程*, 2020, 49(S2): 20200350.  
Zhu Q, Pan Z X, Mao F Y, et al. Comparison and verification of 3D parameters of aerosols between CALIPSO and MERRA-2 in China[J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2020, 49(S2): 20200350.
- [19] Nakazato M, Nagai T, Sakai T, et al. Tropospheric ozone differential-absorption lidar using stimulated Raman scattering in carbon dioxide[J]. *Applied Optics*, 2007, 46(12): 2269-2279.
- [20] Fernald F G. Analysis of atmospheric lidar observations: some comments[J]. *Applied Optics*, 1984, 23(5): 652-653.
- [21] Wang Z E, Nakane H, Hu H L, et al. Three-wavelength dual differential absorption lidar method for stratospheric ozone measurements in the presence of volcanic aerosols[J]. *Applied Optics*, 1997, 36(6): 1245-1252.
- [22] 沈吉, 曹念文. 米-拉曼散射激光雷达反演对流层气溶胶消光系数廓线[J]. *中国激光*, 2017, 44(6): 0610003.  
Shen J, Cao N W. Inversion of tropospheric aerosol extinction coefficient profile by Mie-Raman scattering lidar[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2017, 44(6): 0610003.
- [23] 项衍, 刘建国, 张天舒, 等. 基于差分吸收激光雷达和数值模式探测杭州夏季臭氧分布[J]. *光学精密工程*,

2018, 26(8): 1882-1887.

Xiang Y, Liu J G, Zhang T S, et al. Differential absorption lidar combined with numerical model used for detecting distribution of ozone during summer in Hangzhou[J]. Optics and Precision Engineering, 2018, 26(8): 1882-1887.

[24] 刘姝岩, 包云轩, 金建平, 等. 重霾天气气溶胶辐射效应对近地面臭氧峰值的影响[J]. 高原气象, 2018, 37(1): 296-304.

Liu S Y, Bao Y X, Jin J P, et al. Impact of aerosol radiative effect on surface ozone peaks during heavy haze events[J]. Plateau Meteorology, 2018, 37(1): 296-304.