

文章编号: 0253-2239(2004)05-597-5

L625 差分吸收激光雷达探测对流层臭氧*

胡顺星 胡欢陵 吴永华 周 军 张寅超 岳古明 戚福弟
(中国科学院安徽光学精密机械研究所, 合肥 230031)

摘要: 介绍了用于探测对流层大气臭氧的 L625 差分吸收激光雷达系统, 叙述了该激光雷达的结构、探测大气臭氧的原理和数据处理方法。利用波长对 289~299 nm 和 289~308 nm 对合肥上空中、上部对流层的臭氧进行了对比测量。测量结果表明, 这两对波长的测量结果差别约在 10% 左右。分析了 289~308 nm 波长对测量臭氧的结果和误差。10 km 以下, 289~308 nm 波长对测量的对流层臭氧统计误差绝对值一般小于 2×10^{11} molecules/cm³, 忽略气溶胶影响引起的相对系统误差一般小于 4%。给出和分析了合肥地区对流层 5~15 km 臭氧柱含量的季节变化特征, 柱含量最大的月份一般出现在第二季度, 柱含量最小的月份一般出现在第三季度。

关键词: 差分吸收激光雷达; 臭氧; 对流层; 垂直分布; 拉曼散射

中图分类号: TN958.98 文献标识码: A

L625 Differential Absorption Lidar System for Tropospheric Ozone Measurements

Hu Shunxing Hu Huanling Wu Yonghua Zhou Jun Zhang Yinchao
Yue Guming Qi Fudi

(Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, The Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031)

(Received 11 March 2003; revised 21 May 2003)

Abstract: The L625 differential absorption lidar (DIAL) is introduced to measure vertical ozone profiles in the troposphere. System structure, measurement principle and data processing are also described. Comparison measurements of middle and upper tropospheric ozone are made with a couple of wavelength pairs of 289~299 nm and 289~308 nm at Hefei. Measurement results show that the differences between this couple is about 10%. Statistic errors below 10 km altitude are usually less than 2×10^{11} molecules per cubic centimeter in tropospheric ozone measurement by wavelength pair of 289~308 nm. Systematic errors due to aerosol loading are commonly less than 4%. Characteristics of seasonal variation of tropospheric ozone column contents from 5~15 km altitude are given and analyzed over Hefei. Maximal tropospheric ozone column contents occurred in the second quarter and minimal contents in the third quarter.

Key words: differential absorption lidar; ozone; troposphere; vertical profile; Raman scattering

1 引 言

在大气中, 对流层臭氧约占臭氧总量的 10%。它是温室气体。作为强氧化剂, 积极参与对流层的许多化学过程, 是光化学烟雾的发起者。在地面, 高

浓度的臭氧对动植物都有害。随着人类的工业活动增多, 对流层臭氧有逐年增加的趋势。因此, 长期的对流层臭氧的监测对于更好地了解对流层臭氧的来源和趋势是非常必要的。

激光雷达是一种测量大气各种参量的有效工具, 得到了较多研究^[1,2]。差分吸收激光雷达(DIAL)是一种适合于重复性测量大气痕量气体的先进技术^[3]。随着激光技术的发展, 相继出现了各种各样探测大气臭氧的差分吸收激光雷达系

* 国家科委 863 高科技项目(激光技术领域)资助课题。

E-mail: sxhu@aiofm.ac.cn

收稿日期: 2003-03-11; 收到修改稿日期: 2003-05-21

统^[4~6]。在探测平流层臭氧的 L625 UV-DIAL 系统基础上^[7],我们进一步设计和研制了用于对流层臭氧探测的差分吸收激光雷达系统。本文将介绍探测对流层臭氧的 L625 差分吸收激光雷达系统,波长选择和数据处理方法,给出并讨论对流层臭氧探测的部分结果。

2 波长的选择

差分吸收激光雷达同时或交替向大气中发射两束臭氧吸收截面不同的激光束,由探测器接收这两束激光被大气介质的散射的后向散射光,由这两个回波信号可计算得到两束激光束穿过路径上的臭氧浓度。选择测量臭氧浓度的波长时,要考虑臭氧的测量精度和测量范围。不仅要求两束激光波长之间较大的臭氧吸收截面之差,而且必须使瑞利和米散射截面以及其它存在的气体分子(除臭氧外)的吸收差别很小。对于给定的两个测量臭氧的激光波长,最大的探测高度取决于很多因素,如臭氧的吸收截面,测量时臭氧浓度的垂直分布,气溶胶和分子的消光,探测器的灵敏度,可利用的动态范围,激光的输出功率和噪声来源等等。波长 266 nm 对臭氧的吸收很强,可以提供很大的吸收截面。但它在大气中衰减得很快,只能用于低对流层的探测。对于 300 nm 以上的波长,在对流层臭氧浓度下吸收很小,可以穿透高臭氧浓度的平流层。可以考虑在这两者之间选择测量对流层臭氧的强吸收波长。利用拉曼频移装置来获取激光波长是一种行之有效的方法^[8,9],其优点是结构简单,成本低,维护方便。我们可以方便地获得 300 nm 附近的波长,如准分子激光波长 308 nm, Nd:YAG 四倍频抽运气体介质 D₂ 和 H₂ 能得到的拉曼频移波长 289 nm 和 299 nm 等。这三个波长可以组成两个测量对流层臭氧的波长对 289~299 nm 和 289~308 nm。

选择了波长之后,还必须考虑测量范围。一般单一的光电倍增管的动态范围难以满足对整个对流层臭氧的测量。结合 L625 差分吸收激光雷达系统配置来考虑探测范围。将 L625 激光雷达的系统参量和美国的中纬度臭氧分布模式代入激光雷达方程,得到 289 nm, 299 nm 和 308 nm 的后向散射回波信号,并将它们归一到 4 km 高度,如图 1 所示。从图中可以看到,从 4 km 到 16 km, 289 nm 的回波信号衰减了约 5 个量级, 299 nm 和 308 nm 衰减了约 3 个量级。通常,光电倍增管的线性动态范围为 5~7 个

量级。如果 289 nm, 299 nm 和 308 nm 三个探测激光能量足够高,获得较高的信噪比,利用它们来测量 5~16 km 的对流层臭氧是可行的。

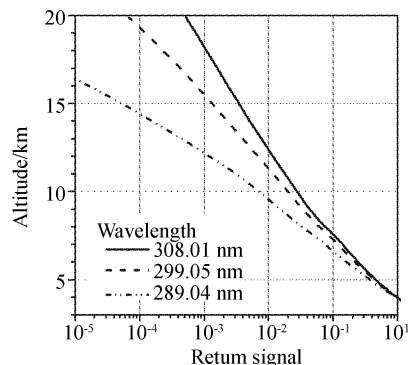


Fig. 1 Simulated backscattering signals derived from L625 DIAL system and normalized to 4 km altitude

3 L625 差分吸收激光雷达系统

L625 差分吸收激光雷达系统主要由激光发射、回波信号接收和数据采集及控制三部分组成。系统框图如图 2 所示。系统的主要技术参量如表 1 所示。

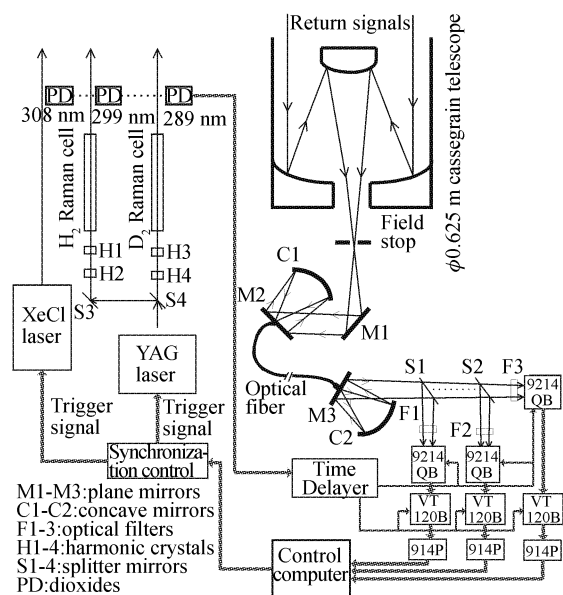


Fig. 2 Schematic diagram of L625 DIAL system

发射部分主要由 XeCl 激光器, Nd:YAG 激光器, 二、四倍频晶体, D₂ 气拉曼池(内充 6 个大气压 D₂ 气), H₂ 气拉曼池(内充 20 个大气压 H₂ 气), 导光单元等组成。Nd:YAG 激光四倍频抽运 D₂ 气产生的一级斯托克斯拉曼波长 289 nm, 抽运 H₂ 气产生的一级斯托克斯拉曼波长 299 nm 和 XeCl 准分子激光器发射波长 308 nm。这三个波长的激光光束经若干个分色镜,可垂直导入大气中。

Table 1 Characteristics of the L625 differential absorption lidar system

Lasers	Nd: YAG		XeCl
Wavelength /nm	289	299	308
Pulse energy /mJ	12	12	300
Pulse duration /ns	18	18	30
Divergence /mrad	≤1	≤1	≤1.5×1.5
Repetition /Hz	10	10	20
Receiver	φ625 mm, Cassegrain		
View of field /mrad	2		
Bandwidth of filter /nm	10(289)	10(299)	1(308)
PMTS	9214QB×3		
Pre-amplifiers	VT120×3		
Multi-channel scalars	914P(150 MHz)×3		
Computer	Pentium586		

激光雷达接收部分主要有接收望远镜,干涉滤光片,衰减片,光电倍增管和导光单元等组成。望远镜是用来收集激光的后向散射光,小孔光阑是用来限制望远镜的视场范围以减小天空的背景光。根据天气条件和各个波长的回波信号强弱选择不同透过率的衰减片,使光电倍增管(PMT)处于线性工作状态。各个波长的后向散射回波信号由接收望远镜收集,经小孔光阑,由一平面反射镜和凹球面镜会聚导入4 m长的光纤,经过光纤传输后,再由一平面反射镜,凹球面镜和分色片,将各个波长导出至相应的光电倍增管靶面。

采集和控制部分由前置放大器,多通道光子计数器,光开关控制器,频率分配器,光电倍增管,门控延时器和计算机软硬件等组成。门控延时器是用来控制光电倍增管的工作状态,调节门控延时器的延时时间,可以使某高度以上的后向散射信号照射到达光电倍增管靶面时,光电倍增管处于工作状态,而在这一高度以下的后向散射强信号到达光电倍增管靶面时,光电倍增管处于不工作状态,避免光电倍增管在非线性状态下工作。可以同时采集多个激光波长的回波信号。

整个测量过程在计算机控制下完成,采集得到的数据贮存在计算机中。

4 差分吸收激光雷达探测臭氧的原理和数据处理方法

L625 差分吸收激光雷达测量的基本原理是利用臭氧对两束激光吸收不同而测量臭氧的浓度。若将臭氧吸收较强的波长记为 λ_{on} (289 nm),臭氧吸收较弱的波长记为 λ_{off} (299 nm或308 nm),忽略气溶

胶的影响,根据两个波长回波强度 $P(\lambda_{\text{on}}, z)$ 和 $P(\lambda_{\text{off}}, z)$ 可以确定高度 z 和 $z + \Delta z$ 区间的臭氧浓度 $N(z)$,可表达为

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

其中

$$\Delta\delta(T) = \delta(\lambda_{\text{on}}, T) - \delta(\lambda_{\text{off}}, T), \quad (2)$$

$$E_M = -2[\bar{\alpha}_M(\lambda_{\text{on}}, z) - \bar{\alpha}_M(\lambda_{\text{off}}, z)], \quad (3)$$

式中 $\delta(\lambda_i, T)$ 为波长 λ_i ($i = \text{on}$ 或 off) 温度 T 时的臭氧吸收截面,可以利用大气温度高度分布模式或实时探空资料进行温度订正^[10]。 E_M 分别为大气分子消光引起的修正项。 $\bar{\alpha}_M(\lambda_i, z)$ 分别大气分子对应于波长 λ_i , 高度 z 和 $z + dz$ 之间的平均消光系数。

采集到计算臭氧浓度所需的两个波长的大气后向散射回波 $P(\lambda_{\text{on}}, z)$ 和 $P(\lambda_{\text{off}}, z)$ 后,对原始信号进行背景的扣除,然后进行975 m平均平滑,在这之后,用斜率法计算(1)式中的第一项,得到臭氧浓度的高度分布。(1)式中分子消光项(E_M)利用大气模式计算修正。计算中距离分辨率 dz (range resolution)取1 km。

5 探测结果和讨论

激光雷达探测对流层臭氧的高度分布一般选在无云的夜晚进行。信号采集的空间分辨力为75 m,测量累积时间约40 min。测量臭氧的起始高度一般在4~5 km间。

5.1 对流层与平流层臭氧分布的衔接

测量臭氧的差分吸收激光雷达是在测量平流层臭氧的激光雷达基础上建立起来。因此,对流层的臭氧分布须与平流层臭氧分布衔接起来,以便得到5~40 km的臭氧分布。衔接区间一般选在12~16 km之间,以平均结果作为连接区间的分布。如图3分别给出了2000年6月6日和2000年7月30日两个夜晚的两段测量结果。M为308~355 nm波长对测量的平流层臭氧分布,L为289~308 nm波长对测量的对流层臭氧分布。从图3中可以看到,在12~16 km衔接区间的臭氧数密度分布基本一致,大小吻合得较好。从图中可以看到合肥地区对流层臭氧分布的基本特征,合肥上空对流层5 km以上臭氧的数密度一般小于 1×10^{12} molecules/cm³,有时呈多峰或多谷结构,如图3(a)所示。

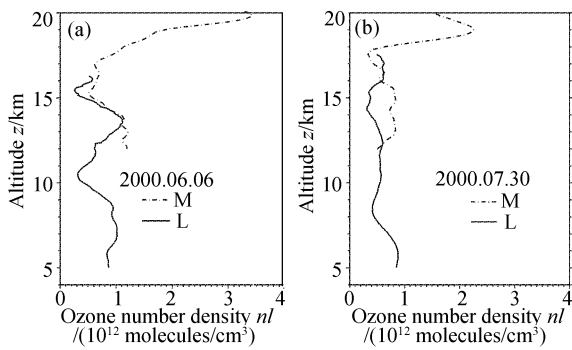


Fig. 3 Ozone vertical profiles measured by L625 DIAL based on wavelengths of 289 nm and 308 nm

5.2 289~308 nm 与 289~299 nm 波长对同时测量臭氧的高度分布

可以利用 289~308 nm 与 289~299 nm 两波长对同时测量对流层的臭氧分布。我们将这两对波长实测的臭氧分布进行了比较。如图 4 给出了 1998 年 9 月 6 日至 7 日两天测量结果,采集 289~299~308 nm 三个波长的空间分辨力均为 75 m。除臭氧吸收截面和波长大小等参量外,这两对波长的数据处理程序中的参量完全相同。为便于比较,在测量结果中还给出了 10% 的误差线。从图中可以看出,两组波长对测量的结果比较一致。图 4(a) 中,5~13 km 之间的臭氧浓度均在 10% 的误差线内。图 4(b) 中,除 7.5~9.5 km 的臭氧浓度差别较大外,其它高度的臭氧浓度差别均较小。从图 4 中可以看到,利用 289~299 nm 和 289~308 nm 测量的对流层臭氧分布,除个别区间外,相对偏差一般小于 10%。

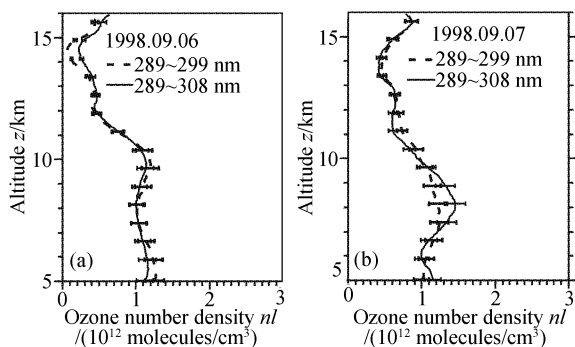


Fig. 4 Tropospheric ozone vertical profiles measured by wavelength pairs of 289~308 nm and 289~299 nm, are shown with $\pm 10\%$ error bars at 0.5 km intervals

5.3 对流层激光雷达测量的误差分析

差分吸收激光雷达测量误差来源于与信噪比有关的统计误差和由于仪器本身制约引起的系统误差,

除臭氧外的大气分子和气溶胶消光差别引起的误差。统计误差可以按照 Uchino 等^[11]的方法或者计算多组臭氧廓线的标准方差来估计。以 2003 年 1 月 7 日夜晚 289~308 nm 波长测量对流层臭氧为例,计算结果如图 5 所示。图 5(a) 为臭氧数密度高度分布。图 5(b) 给出了它的统计误差和标准方差的绝对大小分布。以 Uchino 方法计算的统计误差分布,随高度增加,回波信号的信噪比降低,统计误差增大。如果差分吸收激光雷达探测的积分时间延长,统计误差可以进一步减小。标准方差高度分布为 4 组臭氧廓线的方差,每组臭氧廓线的激光脉冲数分别 5000 个(波长 289 nm)和 10000 个(波长 308 nm),相当于 8 min 的测量时间。从图 5 中可以看到,10 km 以下,它们的大小差别不大,小于 2×10^{11} molecules/cm³; 10 km 以上,它们的差别显著,利用 Uchino 方法计算的统计误差要大得多。

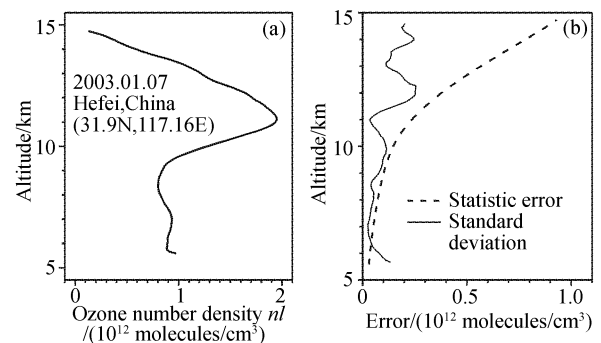


Fig. 5 (a) Tropospheric ozone number density profile obtained with wavelengths of 289~308 nm at night on Jan. 7, 2003; (b) Shows absolute statistical errors and standard deviations

除来自测量的统计误差外,差分吸收激光雷达测量自由对流层臭氧的误差还来自气溶胶引起的误差,大气中的 SO₂, NO₂, HNO₃, O₂ 和 H₂O 等多种气体的吸收的误差。但在对流层的中、上部,前面三种气体的含量很少,对臭氧的测量的影响很小。后面两种含量虽大,但它们的吸收截面差与臭氧的相比,要小几个量级。因此,它们对臭氧测量的影响也是很小的。气溶胶引起的误差有两方面,即后向散射和消光引起的误差。以 2003 年 1 月 7 日为例,气溶胶消光系数分布如图 6(a) 所示,这一廓线由 L300 激光雷达得到。假设不同的消光波长指数和散射波长指数,可以计算得到的臭氧相对误差分布,如图 6(b) 所示。图 6(b) 中可以看到,忽略气溶胶消光和散射引起臭氧相对误差一般小于 4%。

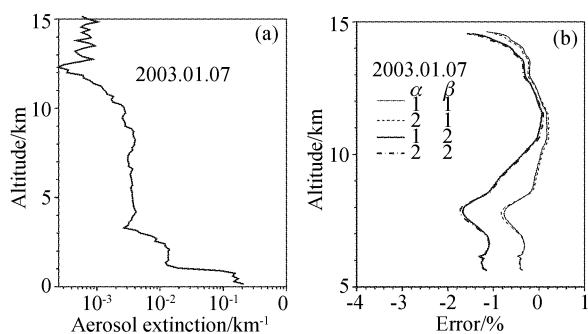


Fig. 6 (a) Aerosol extinction profiles at wavelength of 532 nm measured by a mobile lidar, (b) systematic errors profiles due to aerosol backscattering and extinction. (α and β are wavelength index of aerosol backscattering and extinction, respectively)

5.4 合肥地区对流层臭氧季节变化特征

从 1998 年 2 月到 2002 年 6 月间,利用 L625 差分吸收激光雷达的 289~308 nm 波长测量对流层的臭氧,获得了 124 天的对流层臭氧高度分布。我们对 5~15 km 的臭氧分子进行积分,并经过 5 天的平均平滑,得到图 7 所示的时间序列分布,该图显示了合肥地区对流层臭氧 5~15 km 柱含量的季节变化一般特征。柱含量最大的月份一般出现在第二季度,如 1999 年,2000 年和 2001 年,有时也出现在第一季度,如 1998 年和 2002 年;柱含量最小的月份一般出现在第三季度,有时出现在第四季度,如 1999 年。

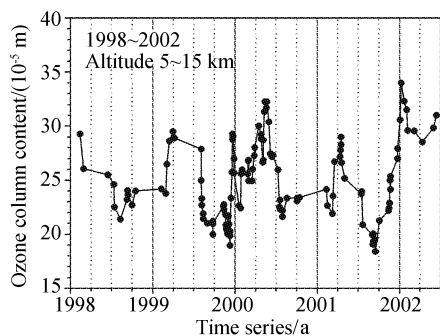


Fig. 7 Tropospheric ozone column contents at altitude from 5~15 km observed by L625 DIAL over Hefei from February 1998 to June 2002

小结 本文介绍了测量对流层臭氧的 L625 差分吸收激光雷达系统,并用该差分吸收激光雷达系统的两组激光波长 289~299 nm 和 289~308 nm 对合

肥上空对流层中、上部 5~16 km 的臭氧分布进行了测量,两组波长测量臭氧浓度差别约在 10% 左右。测量的对流层臭氧廓线和平流层臭氧廓线衔接得较好。分析了 289~308 nm 波长对测量测量臭氧的统计误差和标准方差。10 km 以下,289~308 nm 波长对测量的对流层臭氧统计误差绝对值一般小于 2×10^{11} molecules/cm³,忽略气溶胶影响引起的相对系统误差一般小于 4%。该差分吸收激光雷达系统测量的对流层臭氧柱含量表现明显的季节特征。

参 考 文 献

- 1 Zhou Jun, Yue Guming, Jin Chuanjia *et al.*. Two-wavelength mie lidar for monitoring of tropospheric aerosol. *Acta Optica Sinica* (光学学报), 2000, **20**(10): 1412~1417 (in Chinese)
- 2 Ai Yong, Zhang Xunjie, Lu Su *et al.*. Characteristics of the solidum layers observed by the laser radar in Wuhan. *Chin. J. Lasers* (中国激光), 1998, **25**(7):654~657 (in Chinese)
- 3 Megie G, Menzies R T. Complementarity of UV and IR differential absorption lidar for global measurements atmospheric species. *Appl. Opt.*, 1980, **19**(7):1173~1183
- 4 Browell E V, Carter A F, Shipley S T *et al.*. NASA multipurpose airborne DIAL system and measurements of ozone and aerosol profiles. *Appl. Opt.*, 1983, **22**(4): 522~534
- 5 Mégie G J, Ancellet G, Pelon J. Lidar measurements of ozone vertical profiles. *Appl. Opt.*, 1985, **24**(21): 3454~3463
- 6 Ferdinando de Tomasi, Parrone M R, Protopapa M L. Monitoring O₃ with solar-blind Raman lidars. *Appl. Opt.*, 2001, **40**(9):1314~1320
- 7 Hu Huanling, Wang Zhien, Wu Yonghua *et al.*. An UV-DIAL system for measurements of stratospheric ozone. *Chin. Atmospheric Science*, 1998, **22**(3): 293~301
- 8 Zheng Yi, Yao Jianquan, Zhu Shaoming *et al.*. Stimulated Raman scattering in oxygen or oxygen-helium mixing gas pumped by a Q-switch frequency doubled Nd:YAG laser. *Acta Optica Sinica* (光学学报), 1995, **15**(11):1594~1597 (in Chinese)
- 9 Grant W B, Browell E V, Higdon N S *et al.*. Raman shifting of KrF laser radiation for tropospheric ozone measurements. *Appl. Opt.*, 1991, **30**(18):2628~2633
- 10 Bass A M. The ultraviolet absorption cross-section of ozone. Final report to NASA, 1984, Contract No. S-40127B
- 11 Uchino O, Tabata I. Mobile lidar for simultaneous measurements of ozone, aerosol, and temperature in the stratosphere. *Appl. Opt.*, 1991, **30**(15):2005~2012