

基于光谱遥测技术的烟羽二维分布快速成像

张强^{1,2}, 谢品华^{1,2,3*}, 徐晋^{2**}, 李昂², 胡肇琨², 田鑫²,
黄业园², 刘文清^{1,2}

¹中国科学技术大学环境科学与光电技术学院, 安徽 合肥 230026;

²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;

³中国科学院城市环境研究所区域大气环境研究卓越创新中心, 福建 厦门 361021

摘要 基于大气污染物二维分布遥测系统,开展了被动成像差分吸收光谱技术和图像优化算法相结合的大气污染物二维分布遥测研究。将紫外光谱和可视化图像的双通道系统相结合,实现了污染物浓度信息与可视化图像的精确匹配。针对复杂背景下污染物的数据处理问题,尤其是受浓烟、障碍物遮挡等情况下的数据缺失问题,对观测值进行筛选和处理,再结合烟羽扩散模型和曲面三次样条插值算法对整个区域内的浓度信息进行优化,从而快速获得高空间分辨的污染物二维分布图像信息。

关键词 光谱学; 差分吸收光谱技术; 紫外光谱成像遥测; 二维分布; 高斯烟羽扩散模型

中图分类号 O433.1

文献标志码 A

doi: 10.3788/AOS202040.0930002

Two-Dimensional Fast Imaging of Smoke Plumes Based on Spectral Telemetry

Zhang Qiang^{1,2}, Xie Pinhua^{1,2,3*}, Xu Jin^{2**}, Li Ang², Hu Zhaokun², Tian Xin²,
Huang Yeyuan², Liu Wenqing^{1,2}

¹*School of Environmental Science and Optoelectronic Technology, University of Science and Technology of China, Hefei, Anhui 230026, China;*

²*Key Laboratory of Environmental Optics & Technology, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Hefei, Anhui 230031, China;*

³*Innovation Excellence Center of Regional Atmospheric Environment, Institute of Urban Environment, Chinese Academy of Sciences, Xiamen, Fujian 361021, China*

Abstract Based on the two-dimensional distribution remote measurement system of air pollutants, this study examined the two-dimensional distribution remote measurement of pollutants by the passive imaging differential optical absorption spectroscopy technology combined with the image optimization algorithms. The concentration information of pollutants and the visual images were accurately matched using a dual-channel system that combines the ultraviolet spectra with the visual images. For the problems of the data processing of pollutants under complex backgrounds, particularly the problem that of data missing under conditions of dense smoke and obstacles, the observed values were screened and processed. Subsequently, the smoke plume diffusion model was combined with the curved cubic spline interpolation algorithm to optimize the concentration information in the entire area, and thus to quickly obtain the two-dimensional distribution image information of pollutants with high spatial resolution.

Key words spectroscopy; differential absorption spectroscopy technology; ultraviolet spectral remote measurement system; two-dimensional distribution; Gaussian plume diffusion model

OCIS codes 300.6540; 300.6320; 300.6530

收稿日期: 2019-12-12; 修回日期: 2020-01-06; 录用日期: 2020-01-19

基金项目: 国家重点研发计划(2017YFC0209902)、国家自然科学基金(41530644, 41975037)、中国科学院重点部署项目(KFZD-SW-320)

* E-mail: phxie@aiofm.ac.cn; ** E-mail: jxu@aiofm.ac.cn

1 引 言

近年来,随着工业的快速发展和城市化的加快,大气污染物排放现象加剧。大气污染物排放与人类活动密切相关,污染源排放的污染气体主要分布在大气边界层,因此准确获得大气边界层污染成分(痕量气体、气溶胶)的分布和变化信息有助于预测大气污染成分的输送、扩散过程,为大气环境和空气质量预报模型等的研究提供重要的数据。国内外已经开展了相关研究工作,但是对重点污染源的排放扩散和工业区污染物的泄漏等缺乏高效、准确的。因此,针对我国在大气污染源排放及突发性大气污染事故应急监测中对污染物的快速、精准识别需求,对工业源、移动源、散乱源等进行排放监测和分析显得尤为重要。

大气污染物光谱成像遥测技术是一种有效的针对大气污染物时空分布的快速测量方式,近几年来,国内外对烟羽污染物成像观测技术的研究很多。德国海德堡大学利用成像差分吸收光谱(I-DOAS)技术对意大利埃特纳火山烟羽中的 SO_2 、BrO 和 OClO 进行了二维分布成像遥测研究^[1]。德国不莱梅大学环境物理研究所在布加勒斯特 AROMAT (airborne Romanian measurements of aerosols and trace gases)期间,利用机载 I-DOAS 测量技术获得了 NO_2 等的区域分布信息^[2]。韩国先进环境监测研究中心(ADEMRC)在某电厂开展了地基成像扫描实验,改进了污染源排放烟羽扩散公式^[3]。美国加利福尼亚大学利用 I-DOAS 技术对休斯顿加尔维斯顿地区的石化火炬进行了甲醛和 SO_2 排放观测^[4]。在国内,中国科学院安徽光学精密机械研究所对 I-DOAS 技术的研究也取得了一定进展,利用 I-DOAS 技术在机载和地基平台上分别进行了污染

痕量气体的二维分布解析,针对污染源排放的污染痕量气体(SO_2)的成像遥测取得了一定的研究成果^[5]。王汝雯等^[6]利用红外 DOAS 技术测得大气中水汽的二维分布。Cheng 等^[7]利用地基 DOAS 系统对深圳盐田港船舶污染源的排放进行了监测,获得了船舶排放烟羽的 NO_2 二维分布。但是,对复杂背景下污染物分布的快速实时遥测成像,尤其是在浓烟、障碍物遮挡等情况下,污染物分布的高空间分辨率探测仍是亟需解决的问题。

针对复杂背景下污染物成像观测的需求,本文开展了基于被动 I-DOAS 技术并结合二维插值算法的污染物分布遥测研究。通过光谱遥测的方法获得烟羽区域污染物浓度(斜柱浓度,下同)信息,利用紫外、可见双通道观测结果对观测值进行筛选和处理,再结合烟羽扩散模型和曲面三次样条插值算法对整个平面的污染物浓度信息进行优化,从而获得高分辨的污染物二维分布图像信息。2019年4月和6月分别在某工业园区和某港口对火炬、烟囱及近海船舶排放的烟羽进行了扫描测量,获得了 NO_2 、 SO_2 的二维分布信息,并估算了排放通量。

2 基于扫描 I-DOAS 技术获取污染气体二维分布的原理

2.1 紫外可见光谱遥测原理

太阳光透射被测物体后,会受到大气成分的吸收和散射,从而产生不同的光谱结构。被动 I-DOAS 技术就是通过接收经大气散射后的太阳光,利用待测气体成分的特征光谱结构反演污染气体的种类和浓度信息。将测得的气体浓度与 CCD 像元空间分布进行匹配,从而得到目标气体的二维空间分布信息^[8-9]。紫外遥测成像系统如图 1 所示。

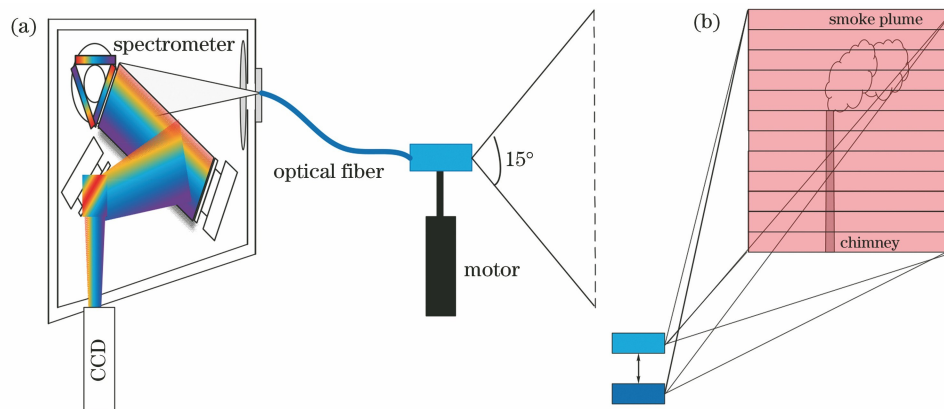


图 1 大气污染物二维分布遥测系统。(a)系统集成图;(b)扫描区域图

Fig. 1 Two-dimensional distribution remote measurement system for atmospheric pollutants.

(a) Schematic of system integration; (b) schematic of scanning area

大气污染物二维分布遥测系统由高精度扫描云台系统、多芯光纤束、高空间分辨率光谱仪(PI-SOPlane)及控制计算机构成。利用光纤连接光谱仪和前置多通道光学接收单元,通过高精度扫描云台系统驱动光学接收单元并实现对目标区域的精确扫描观测。通过“推扫”的方式获取目标区域的空间光谱信息^[10],推扫方式示意图如图 2 所示,可实现

方位角为 $0^\circ \sim 360^\circ$,俯仰角为 $0^\circ \sim 90^\circ$ 的扫描,选取目标区域上相对“干净”区域的测量光谱作为参考光谱,“干净”区域是指视场范围内没有污染物,能见度高的区域。利用 DOAS 技术对目标区域的测量光谱进行反演,从而得到多组浓度值,再将浓度信息与空间上的每个像元相匹配,最终获得目标区域污染气体的二维分布。

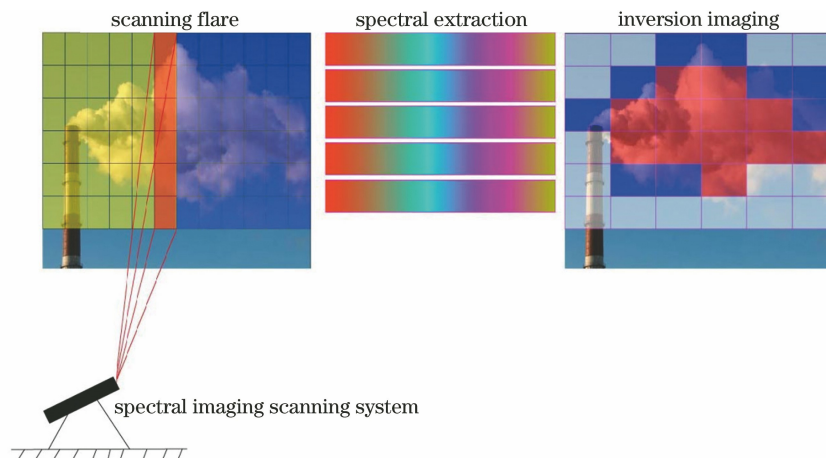


图 2 大气污染物二维分布遥测系统“推扫”成像示意图

Fig. 2 Schematic of “push sweep” imaging by two-dimensional distribution remote measurement system for atmospheric pollutants

太阳光被大气中的气体分子吸收散射后进入紫外镜头,再依次被耦合导入光纤和光栅光谱仪。光谱仪连接的面阵 CCD 将光谱仪接收到的光谱信号通过数模转换成电信号,并将其传输给计算机。面阵 CCD 的大小为 512 pixel(空间维) \times 2048 pixel(光谱维)。将一个纵列上进入镜头的光分成 512 条光谱,每个光谱拥有 2048 个像元,利用电机水平推

扫完成二维测量。利用 DOAS 方法和 Matlab 程序对采集到的光谱进行处理和反演,获得目标气体的斜柱浓度,再对反演结果进行空间匹配和优化,获得烟羽排放的可视化污染气体浓度二维分布图。

2.2 气体柱浓度反演方法

数据反演基于 DOAS 原理,其基本计算公式是朗伯-比尔(Lambert-Beer)定律:

$$I(\lambda) = I_0(\lambda) \cdot \exp\left\{-\int_0^l \left[\epsilon_R(\lambda, l) + \epsilon_M(\lambda, l) + \sum_i \sigma_i(\lambda, P, T) \cdot c_i(l) dl\right]\right\}, \quad (1)$$

式中: $I(\lambda)$ 为波长为 λ 的接收光强; $I_0(\lambda)$ 为波长为 λ 的初始光强; l 为主动 DOAS 中的光程长度; $\epsilon_R(\lambda, l)$ 为波长为 λ ,光程长度为 l 的瑞利散射系数; $\epsilon_M(\lambda, l)$ 为波长为 λ ,光程长度为 l 的米氏散射系数; $\sigma_i(\lambda, P, T)$ 为吸收截面; P 为大气压; T 为温度; c_i 为气体浓度; i 为气体种类。

光通过大气中的气团时,除了受气团里的气体分子散射作用,还被气体吸收。吸收截面分为随波长慢变化的截面和随波长快变化的截面,变化过程为

$$\sigma_i(\lambda) = \sigma_{i0}(\lambda) + \sigma'_i(\lambda), \quad (2)$$

式中: $\sigma_{i0}(\lambda)$ 为快变化气体吸收截面; $\sigma'_i(\lambda)$ 为慢变化气体吸收截面。

可以通过高通滤波去除慢变化结构,从而得到由分子窄带吸收造成的光强衰减。基于“差分”思想,Lambert-Beer 公式变形为

$$\ln\left[\frac{I(\lambda)}{I'_0(\lambda)}\right] = -\int_0^l \left[\sum_i \sigma'_i(\lambda) \cdot c_i(l)\right] \cdot dl, \quad (3)$$

式中: $I'_0(\lambda)$ 为接收到的初始光强。因此,由(3)式可获得气体的浓度 c_i 。

在被动 DOAS 中,太阳光作为一般光源,痕量气体的路径 l 是不确定的,因此要对 Lambert-Beer

定律进行变换,即

$$I(\lambda) = I_0(\lambda) \cdot \exp\left\{-\int[\sigma(\lambda) \cdot c(s)]ds\right\}。 (4)$$

令 $D_{\text{SCD}} = \int c(s)ds$, 其中 s 为被动 DOAS 中的光程, 则(4)式变为

$$I(\lambda) = I_0(\lambda) \cdot \exp[-\sigma(\lambda) \cdot D_{\text{SCD}}]。 (5)$$

将慢变化部分通过数字高通滤波去除后, 得到差分光学厚度, 即

$$D' = \ln \frac{I'_0(\lambda)}{I(\lambda)} = \sum_i \sigma_i(\lambda) \cdot D_{\text{SCD}_i}, (6)$$

式中: D_{SCD_i} 为差分斜柱浓度, 即痕量气体浓度沿光路的积分。

3 污染物二维分布反演方法

3.1 浓度空间分布匹配方法

由于所用探测器为面阵 CCD, 像元数为 $512 \text{ pixel} \times 2048 \text{ pixel}$ (像元大小为 $13.5 \mu\text{m} \times 13.5 \mu\text{m}$), 为提高测量光谱的信噪比, 将每 25 条光束累加得到一条光谱, 一次采集可获取 20 条累加光谱(扣除 CCD 边缘的 12 行像元), 曝光时间为 $50 \sim 200 \text{ ms}$ 。根据测量烟羽的目标要求, 水平视场(由

云台的旋转角度决定)可以覆盖整个烟羽扩散范围。

为了获得更加直观的烟羽二维分布, 设计了紫外、可见双镜头通道。双镜头采用移轴设计, 上方为紫外镜头, 用来接收紫外光谱信息, 下方为可见镜头, 用来采集图像信息。紫外镜头光轴与可见镜头光轴相距 10 cm 。在实际测量的过程中, 将可见镜头的视场角度调为 $16^\circ \times 16^\circ$, 紫外镜头垂直视场角度为 15° (与可见镜头垂直视场基本相同), 水平视场角度根据实际测量要求可以设为 $32^\circ, 48^\circ, 64^\circ, 80^\circ, 96^\circ$ 。在垂直视场区域, 为充分使用 CCD 阵面和紫外镜头的垂直视场, 将紫外镜头的垂直视场完全包含于可见镜头的垂直视场, 从而获取紫外镜头视场的完整信息。 d 为包含紫外视场的可见视场区域离镜头的最短距离。

$$d = \frac{0.1 \text{ m}}{\tan 8^\circ - \tan 7.5^\circ} = 10 \text{ m}, (7)$$

故可在距污染源 10 m 以上的位置进行测量, 根据遥测目标气体与紫外遥测系统的距离, 设置软件中的参数, 并裁剪可见区域, 使其视场与紫外镜头视场大小相等, 从而完成可见视场与紫外视场的完全匹配。匹配示意图如图 3 所示。

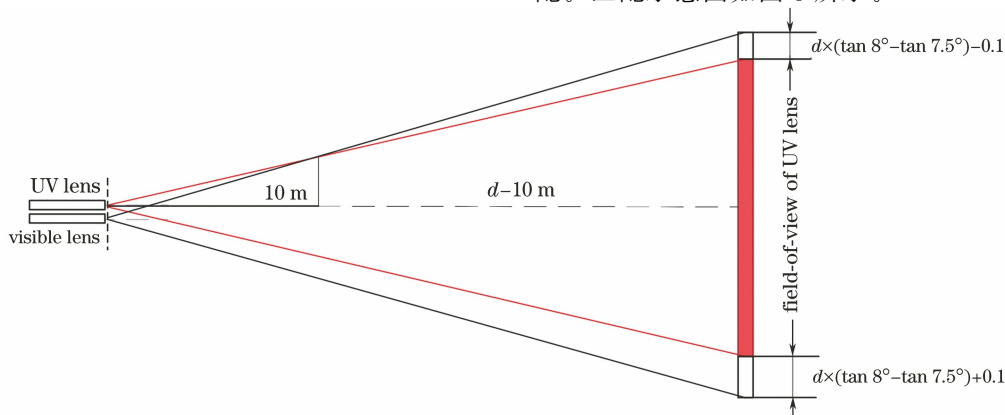


图 3 紫外镜头视场匹配示意图

Fig. 3 Schematic of field-of-view matching of UV lens

3.2 图像优化

反演出目标气体的浓度后, 将其匹配到整个视场范围内, 在烟羽距离 I-DOAS 300 m 处获得像元大小为 $5 \text{ m} \times 4 \text{ m}$ 的烟羽二维分布图。

在数据成图之前, 部分弱光谱信号及背景干扰、遮挡等因素造成数据反演出现奇异值、无效值等, 因此首先需要采用阈值数字滤波算法对数据进行处理和筛选。该算法步骤为: 1) 判断每一个像元周围四个相邻的浓度值是否满足高斯烟羽扩散模型的连续浓度值条件, 若存在浓度突变, 则滤除该像元(先设置浓度值为 0); 2) 结合可见镜头通道(像元匹配污

染源位置), 获取最高浓度的位置; 3) 将高浓度值位置和浓度信息输入高斯烟羽扩散模型; 4) 根据已滤去浓度值的像元位置, 对滤除的像元进行浓度填充。

为了提高图像的分辨率, 采用能够提供最优线性无偏估计的 Kriging 插值。Kriging 法^[11]是一种针对随机场的回归算法, 主要应用于空间建模和插值。Kriging 插值能够对数据集中存在的聚类作用进行补偿, 插值精度高, 在插值过程中充分考虑了符合高斯分布特征的污染气体扩散趋势^[12]。Kriging 法^[11]的无偏估计 $\hat{Y}(s_0)$ 为

$$\hat{Y}(s_0) = C_0^T C^{-1} Y + (I - C_0^T C^{-1} I)(I^T C^{-1} I)^{-1}(I^T C^{-1} Y), \quad (8)$$

式中： C 为协方差矩阵； C_0 为由未知点和样本间协方差组成的列向量； I 为由 n 个 1 组成的列向量； Y 为样本； s_0 为未知点。根据需要的空间分辨率，可以选择插入的像素个数，本文在每两个像素之间插入四

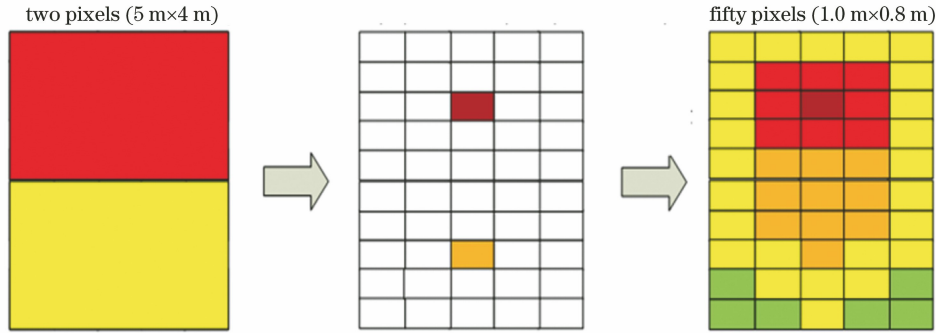


图 4 浓度插值示意图

Fig. 4 Schematic of concentration interpolation

3.3 分布重构

在实际测量过程中，针对环境因素、障碍物遮挡及背景云层干扰等造成的数据缺失、无效等问题，基于高斯扩散模型并结合测量数据相，研究了双三次 B 样条曲面数据处理算法。采用该算法对测量结果进行优化，从而得到完整准确的污染物排放二维分布图。

双三次 B 样条曲面数据处理算法是基于三次样条基函数的，三次样条基函数的表达式为

$$N_{i,4}(x) = \frac{1}{6} [1 \ x \ x^2 \ x^3] \begin{bmatrix} 1 & 4 & 1 & 0 \\ -3 & 0 & 3 & 0 \\ 3 & -6 & 3 & 0 \\ -1 & 3 & -3 & 1 \end{bmatrix}, \quad (9)$$

式中： x 为横坐标上的任意点； i' 为第 i' 个函数。对于任意未知曲面，若给定由 $(m+1) \times (n+1)$ 个空间点组成的空间点阵 P_{kj} ($k=0, 1, \dots, m; j=0, 1, \dots, n$)，则对于由矩阵 P_{kj} 构成的特征网格，对应的双三次 B 样条曲面的表达式为

$$S(u, v) = \sum_{k=0}^3 \sum_{j=0}^3 P_{kj} N_{k,4}(u) N_{j,4}(v), \quad (10)$$

式中： $N_{k,4}(u)$ 、 $N_{j,4}(v)$ 为 B 样条基底函数， u 、 v 为参数。在处理环境质量和空气污染问题时，用数学模型模拟预测大气污染物的扩散是一种常用而有效的方法^[13-14]。常用的高斯烟羽扩散模型^[15-17]的数学表达式为

$$C_{(x,y,z)} = \frac{Q}{2\pi u \sigma_x \sigma_y} \exp\left(-\frac{y^2}{2\sigma_y^2}\right) \cdot F, \quad (11)$$

$$F = \exp\left[-\frac{(z-h)^2}{2\sigma_z^2}\right] + \exp\left[-\frac{(z+h)^2}{2\sigma_z^2}\right], \quad (12)$$

个数，将大小为 $5 \text{ m} \times 4 \text{ m}$ 的单个像元分解为 25 个像元，在保证同等面积范围内污染物浓度相等的条件下，根据烟羽扩散模型和 Kriging 插值对分解出的每个像元进行浓度填值理，获得了空间分辨率为 $1.0 \text{ m} \times 0.8 \text{ m}$ 的空间二维分布。浓度插值示意图如图 4 所示。将优化后结果与非 binning 实测结果进行对比。

式中： $C_{(x,y,z)}$ 为污染源下一方向上 (x, y, z) 处的目标气体浓度； Q 为源强； u 为平均风速，平均风速为烟羽竖直抬升速度和水平方向上速度的矢量叠加大小； σ_y 、 σ_z 分别为横向扩散参数、垂直扩散参数； h 为泄漏源的有效高度。

结合烟囱高度、风速、浓度高值，根据烟羽扩散模型使用 Matlab 程序计算出曲面的控制点^[18]，再对未知浓度点和奇异值点进行插值。数据处理流程如图 5 所示，优化效果如图 6 所示。

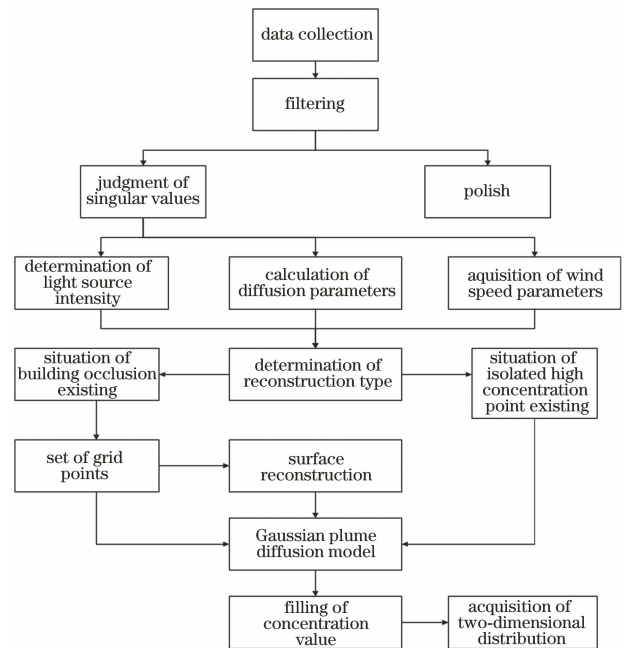


图 5 数据处理流程图

Fig. 5 Flowchart of data processing

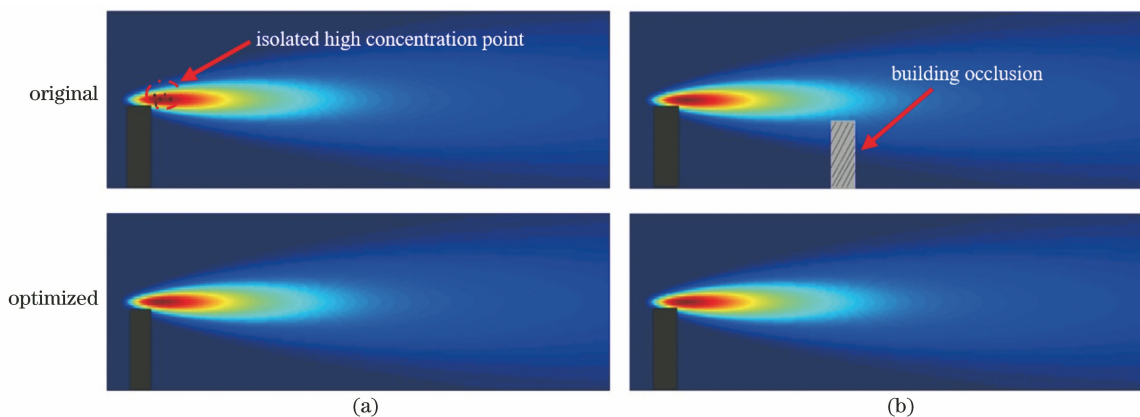


图 6 不同背景下的插值重构结果。(a)存在孤立高浓度值的情况;(b)存在建筑物遮挡的情况

Fig. 6 Interpolation reconstruction results in different contexts. (a) Situation of isolated high concentration value existing; (b) situation of building occlusion existing

在测量烟羽浓度的过程中,由于太阳光无法完全透射烟羽,烟羽内部光强不高且存在上方云层干扰情况,会出现孤立高浓度值点,且地面还存在高层建筑遮挡住烟羽的情况,如图 6 所示。在保持原有有效数据的基础上,通过插值重构对烟羽进行优化处

理,可得到完整的烟羽扩散二维分布。

在某港口的船舶实验中,港口船舶排放的 SO_2 烟羽中存在孤立的高浓度值点,且港口上方高层建筑遮挡导致烟羽上半部分被遮挡,通过插值重构后结果如图 7 所示。

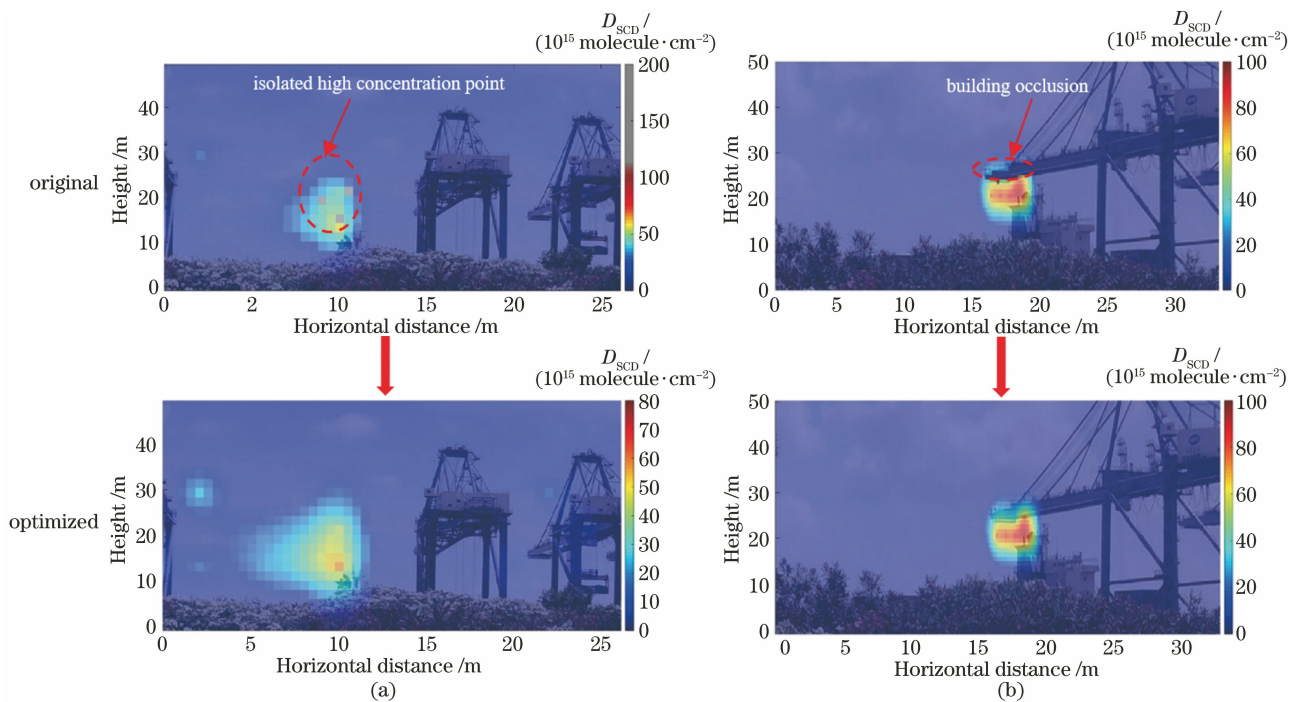


图 7 船舶实验中插值重构结果。(a)存在孤立高浓度值的情况;(b)存在建筑物遮挡的情况

Fig. 7 Interpolation reconstruction results in ship experiment. (a) Situation of isolated high concentration value existing; (b) situation of building occlusion existing

4 结果与讨论

4.1 观测实验

2019 年 4 月 11 日—13 日,采用地基紫外光谱扫描成像系统分别对某地化工区火炬排口和烟囱进

行地面遥测。火炬高度为 40 m,测量时间为 15:00 左右,太阳天顶角约为 42° ,测量期间当地的风速为 $5\sim 6$ m/s,烟羽向西扩散。为了能够垂直扫描烟羽,将测量仪器安放在烟羽南侧 300 m 处,实验观测方向如图 7 所示。利用云台让镜头抬升,使仪器

下边缘与水平线的夹角大约为 7° ，这样能够使整个烟羽在视场范围内。基于此系统对某工业区的烟囱排放口进行了 SO_2 、 NO_2 的二维分布成像测量，水平距离约为 300 m，烟囱高度约为 40 m，实验当天对烟羽进行了 4 次测量，扫描采集数据时间大约需要 30 s，初步成图时间大约是 2 min，获得高时空分辨率完整烟羽二维分布时间大约是 10 min，测量示意图如图 8 所示。

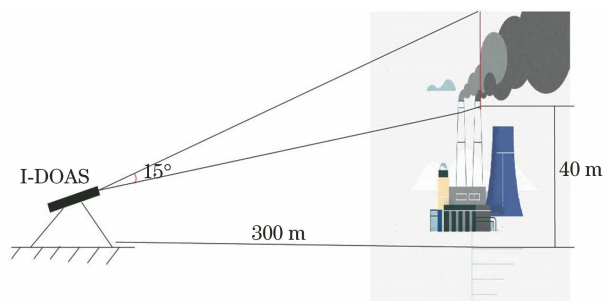


图 8 I-DOAS 成像区域示意图

Fig. 8 Schematic of I-DOAS imaging area

2019 年 6 月 14 日，采用此系统在上海某港口对船舶烟囱排放口进行了 SO_2 、 NO_2 的二维分布成像测量，水平距离约为 200 m，烟囱高度约为 25 m，

实验当天对烟羽进行了 4 次测量，获得高时空分辨率完整烟羽二维分布时间大约是 10 min。

4.2 火炬与烟囱污染气体的二维分布结果

选择 310~330 nm 波段进行反演，在此波段范围内 SO_2 具有明显的吸收结构^[19-20]。选取一条光谱进行拟合反演，得到的 SO_2 光谱拟合图与残差图如图 9 所示。

图 9(a)中实线表示测量光谱图，虚线表示拟合曲线。反演得出 SO_2 的斜柱浓度 D_{SCD} 为 4.0×10^{16} molecule/cm²，残差 R_{MS} 为 1.25×10^{-3} 。同理，对所有测得的光谱进行反演，拼接后得到 SO_2 的二维分布图。

在 NO_2 具有明显吸收结构的 338~370 nm 波段范围内选取一条光谱对 NO_2 进行拟合反演^[21-22]，得到 NO_2 光谱拟合图与残差图，如图 10 所示。

图 10(a)中实线表示测量光谱图，虚线表示拟合曲线。反演得出 NO_2 的斜柱浓度 D_{SCD} 为 4.2×10^{16} molecule/cm²，残差 R_{MS} 为 4.66×10^{-4} 。同理，对所有测得的光谱进行反演，拼接后得到 NO_2 的二维分布图。

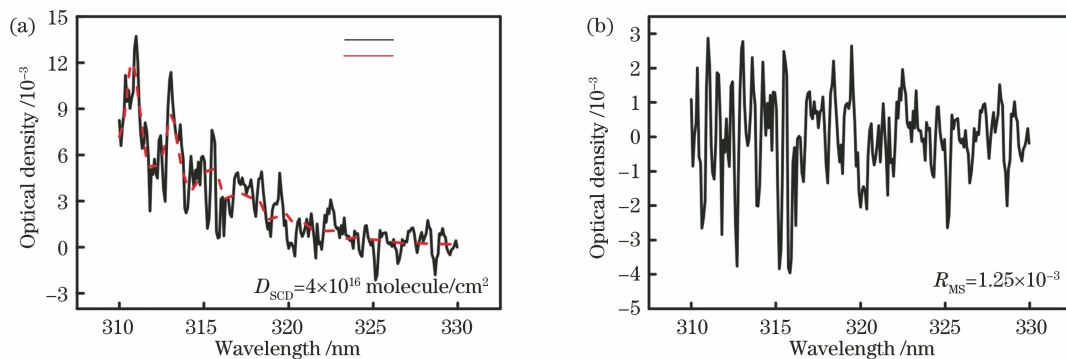


图 9 SO_2 光谱拟合结果。(a) SO_2 光谱拟合；(b) NO_2 斜柱浓度拟合残差

Fig. 9 Fitting results of SO_2 spectrum. (a) SO_2 spectral fitting; (b) fitting residuals of SO_2 slanting column density

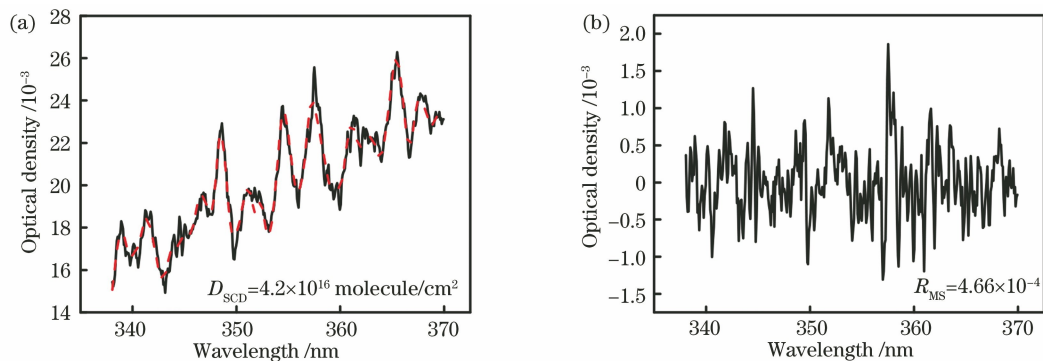


图 10 NO_2 光谱拟合结果。(a) NO_2 光谱拟合；(b) NO_2 斜柱浓度拟合残差

Fig. 10 Fitting results of NO_2 spectrum. (a) NO_2 spectral fitting; (b) fitting residuals of NO_2 slanting column density

4月11日,利用大气污染物二维分布遥测系统对上海某地区的石化火炬排口进行了二维分布测量,得到的SO₂的测量结果如图11所示,可以看出,烟羽高度大约为3 m,石化火炬口处于间歇式喷发状态,在仪器扫描期间,1号、2号两个火炬口处于少量喷发状态,3号~6号四个火炬口处于喷发状态,火炬口上方烟羽中有大量的污染物。烟羽斜柱浓度最高值为 2.0×10^{16} molecule/cm²,3号火炬喷发口(矩形内)排放通量为17.5 g/s。

4月13日,上海地区晴转小雨,风速为6~8 m/s。

对上海某化工厂区内的一家企业相邻的两个排放口进行监测扫描成像,两个排放口的NO₂烟羽水平长度达到了35 m,烟羽上升高度有10 m左右,最大斜柱浓度高值在1号烟囱的上方出现,为 3×10^{16} molecule/cm²,1号烟囱的排放通量为26.85 g/s。SO₂烟羽水平长度达到了40 m左右,烟羽上升高度有15 m左右,最大斜柱浓度高值在1号烟囱上方出现,为 4×10^{16} molecule/cm²,1号烟囱排放通量为61.05 g/s。NO₂和SO₂斜柱浓度二维分布图如图12所示。

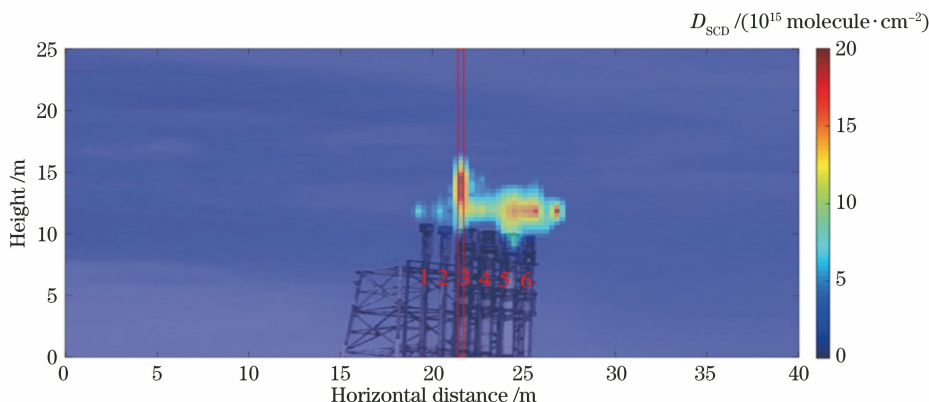


图 11 某地石化火炬口 SO₂排放的二维分布图

Fig. 11 Two-dimensional distribution map of SO₂ emission from petrochemical flare

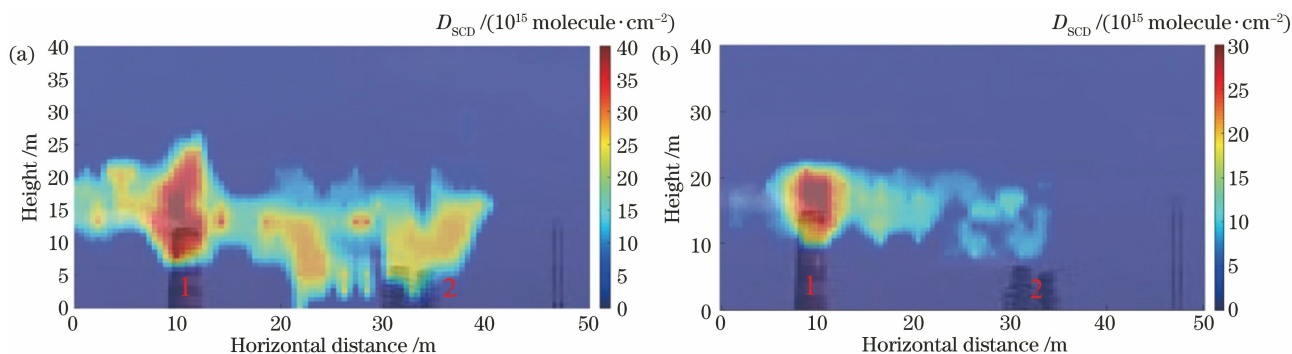


图 12 烟囱口污染气体排放的二维分布图。(a) SO₂; (b) NO₂

Fig. 12 Two-dimensional distribution maps of pollutant emission from chimney mouth. (a) SO₂; (b) NO₂

4.3 排放通量的估算与测量

结合污染气体二维分布结果,研究烟羽扩散方向上的排放通量。以烟囱口为参考点,分别对烟羽扩散方向上5,10,15 m处的目标气体进行通量计算,如图13所示。观测期间风速、温度假设恒定,在测量的短时间内,大气环境稳定,烟羽的扩散方向没有改变。故烟羽排放通量^[23]的计算表达式为

$$Q = \frac{d_{\text{SCD},i''} S_{i''} \Delta x \sin \alpha}{\Delta t} = d_{\text{SCD},i''} S_{i''} V_{\text{wind}} \sin \alpha, \quad (13)$$

式中: $d_{\text{SCD},i''}$ 为一个像元的平均斜柱浓度; $S_{i''}$ 为单个

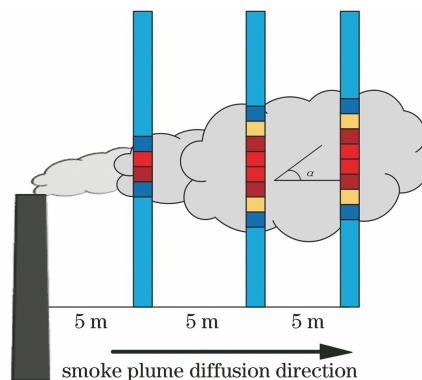


图 13 通量计算示意图

Fig. 13 Schematic of flux calculation

像元的面积; V_{wind} 为当地的风速; Δx 为烟羽移动的距离; Δt 为时间。

4月13日测得某厂区第二工区烟囱 SO_2 分布, 如图 14 所示。在测量区域范围内有两个排

放源, 烟羽随风向左边飘散, 选取两个区域计算得到排放通量分别为 30.78 g/s(距离 2 号烟囱 5 m 处, I 处)、35.69 g/s(距离 2 号烟囱 15 m 处, III 处)。

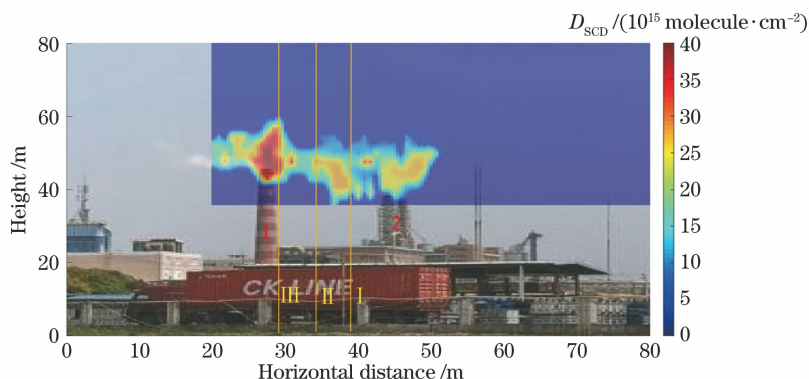


图 14 第二工区 SO_2 排放二维分布图

Fig. 14 Two-dimensional distribution map of SO_2 emission in the second factory

4.4 上海船舶 SO_2 排放二维分布图

为评估港口船舶排放, 采用地基紫外光谱扫描成像系统开展了船舶排放的 SO_2 [24-25] 分布研究, 对某码头进港船只排放进行扫描成像。

根据光谱结构选择 308~330 nm 波段进行反演, 在此波段范围内 SO_2 具有明显的吸收结构 [26-27]。选取一条光谱进行拟合反演, 得到的 SO_2 光谱拟合图与残差图如图 15 所示。

反演得出 SO_2 的斜柱浓度 D_{SCD} 为 1.24×10^{16} molecule/cm², 残差 R_{MS} 为 5.5×10^{-4} 。同理, 对所有测得的光谱进行反演, 拼接后得到 SO_2 的二

维分布图。

在 NO_2 具有明显吸收结构的 338~370 nm 波段选取一条光谱对 NO_2 进行拟合反演 [28-29], 得到的 NO_2 光谱拟合图与残差图如图 16 所示。

反演得出 NO_2 的斜柱浓度 D_{SCD} 为 1.95×10^{16} molecule/cm², 残差 R_{MS} 为 2.86×10^{-4} 。同理, 对所有测得的光谱进行反演, 拼接后得到 NO_2 的二维分布图。

船舶靠岸时, 烟囱排气口的 SO_2 斜柱浓度高值为 8×10^{16} molecule/cm², SO_2 排放二维分布图如图 17 所示。

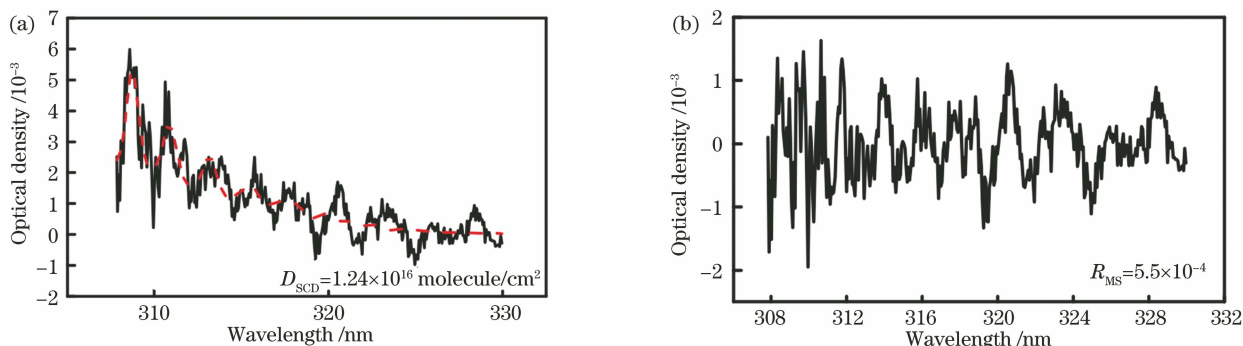


图 15 船舶排放 SO_2 光谱拟合结果。(a) SO_2 光谱拟合; (b) SO_2 斜柱浓度拟合残差

Fig. 15 Fitting results of SO_2 spectrum from ships. (a) SO_2 spectral fitting; (b) fitting residuals of SO_2 slanting column density

5 结 论

介绍了一种基于二维 CCD 光谱遥测的大气污染物二维分布遥测系统和方法。该系统能够对烟羽扩散进行快速扫描成像, 在垂直于烟羽方向进行“推

扫”式观测, 采集太阳散射光后快速获取大气污染物的二维分布信息, 成图时间大约是 2 min。结合烟羽扩散模型, 通过重构算法, 对无效值和奇异值进行滤波处理, 得到完整的烟羽扩散二维分布图, 提高了烟羽二维分布探测的空间分辨率。本研究为火炬

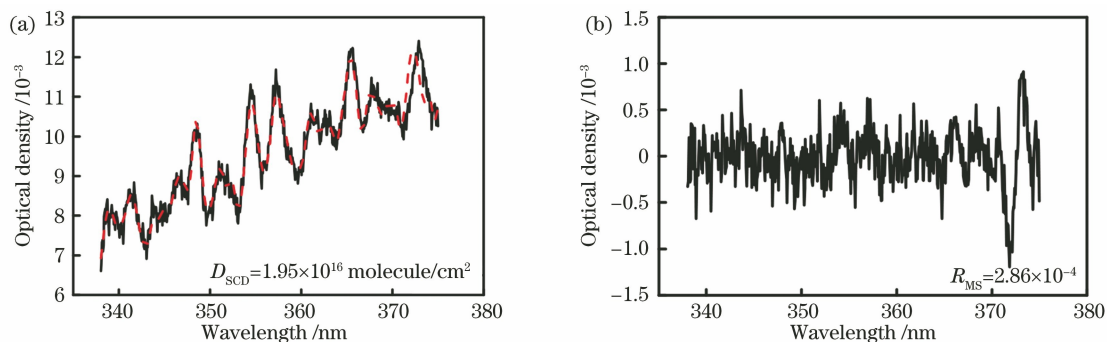


图 16 船舶排放 NO_2 光谱拟合结果。(a) NO_2 光谱拟合;(b) NO_2 斜柱浓度拟合残差

Fig. 16 Fitting results of NO_2 spectrum from ships. (a) NO_2 spectral fitting; (b) fitting residuals of NO_2 slanting column density

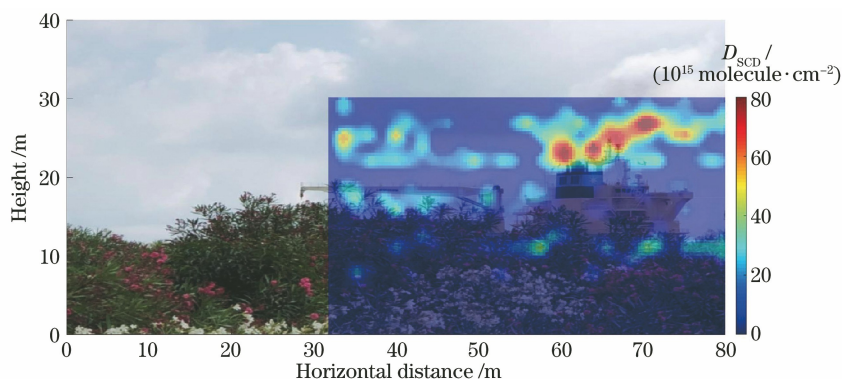


图 17 船停泊靠岸时 SO_2 排放的二维分布

Fig. 17 Two-dimensional distribution of SO_2 emission when ship heads for shore

口、烟道口等污染源监测提供了实时、有效的光学监测方法。紫外遥测光谱成像技术由于可以在短时间内对污染气体进行快速扫描,获得烟羽的扩散方向和扩散趋势,因此也为应急管理(如化工厂爆炸、气体泄漏等大气突发事件)提供科学的数据支撑。

参 考 文 献

- [1] General S, Bobrowski N, Pöhler D, et al. Airborne I-DOAS measurements at Mt. etna: BrO and OClO evolution in the plume [J]. *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, 2015, 300: 175-186.
- [2] Meier A C, Schönhardt A, Bösch T, et al. High-resolution airborne imaging DOAS measurements of NO_2 above Bucharest during AROMAT [J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2017, 10 (5): 1831-1857.
- [3] Lee H, Irie H, Ryu J, et al. Lower tropospheric aerosol measurements by MAX-DOAS during severe Asian dust period [J]. *Aerosol Science and Technology*, 2009, 43(12): 1208-1217.
- [4] Pikelnaya O, Flynn J H, Tsai C, et al. Imaging DOAS detection of primary formaldehyde and sulfur dioxide emissions from petrochemical flares [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2013, 118(15): 8716-8728.
- [5] Liu J, Si F Q, Zhou H J, et al. Observation of two-dimensional distributions of NO_2 with airborne imaging DOAS technology [J]. *Acta Physica Sinica*, 2015, 64(3): 034217.
刘进, 司福祺, 周海金, 等. 机载成像差分吸收光谱技术测量区域 NO_2 二维分布研究 [J]. *物理学报*, 2015, 64(3): 034217.
- [6] Wang R W, Xie P H, Xu J, et al. Retrieve of water vapor column density in atmosphere based on near infrared differential optical absorption spectroscopy [J]. *Acta Optica Sinica*, 2019, 39(2): 0201001.
王汝雯, 谢品华, 徐晋, 等. 基于近红外差分吸收光谱技术的大气中水汽柱浓度反演 [J]. *光学学报*, 2019, 39(2): 0201001.
- [7] Cheng Y L, Wang S S, Zhu J, et al. Surveillance of SO_2 and NO_2 from ship emissions by MAX-DOAS measurements and the implications regarding fuel sulfur content compliance [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2019, 19(21): 13611-13626.
- [8] Lohberger F, Hönninger G, Platt U. Ground-based imaging differential optical absorption spectroscopy of atmospheric gases [J]. *Applied Optics*, 2004, 43

- (24): 4711-4717.
- [9] Lee H, Kim Y J, Lee C. Estimation of the rate of increase in nitrogen dioxide concentrations from power plant stacks using an imaging-DOAS [J]. *Environmental Monitoring and Assessment*, 2009, 152(1/2/3/4): 61-70.
- [10] Platt U, Lübcke P, Kuhn J, et al. Quantitative imaging of volcanic plumes: results, needs, and future trends [J]. *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, 2015, 300: 7-21.
- [11] Mons V, Wang Q, Zaki T A. Kriging-enhanced ensemble variational data assimilation for scalar-source identification in turbulent environments [J]. *Journal of Computational Physics*, 2019, 398: 108856.
- [12] van Zoest V, Osei F B, Hoek G, et al. Spatio-temporal regression kriging for modelling urban NO₂ concentrations [J]. *International Journal of Geographical Information Science*, 2019: 1-15.
- [13] Sharan M, Gopalakrishnan S G. Mathematical modeling of diffusion and transport of pollutants in the atmospheric boundary layer[J]. *Pure and Applied Geophysics*, 2003, 160(1/2): 357-394.
- [14] Sánchez-Sosa J E, Castillo-Mixcóatl J, Beltrán-Pérez G, et al. An application of the Gaussian plume model to localization of an indoor gas source with a mobile robot[J]. *Sensors*, 2018, 18(12): 4375.
- [15] Rakesh P T, Venkatesan R, Srinivas C V, et al. Performance evaluation of modified Gaussian and Lagrangian models under low wind speed: a case study[J]. *Annals of Nuclear Energy*, 2019, 133: 562-567.
- [16] Wu Z Q, Liu C H. Parameterisation study of chemically reactive pollutant dispersion over idealised urban areas based on the Gaussian plume model[J]. *International Journal of Environment and Pollution*, 2019, 65(1/2/3): 84-102.
- [17] Jeong H, Kim E, Park M, et al. Numerical simulation of air pollutant dispersion using an *in situ* tracer experiment at a nuclear site [J]. *Annals of Nuclear Energy*, 2014, 73: 1-6.
- [18] Shah A, Allen G, Pitt J R, et al. A near-field Gaussian plume inversion flux quantification method, applied to unmanned aerial vehicle sampling [J]. *Atmosphere*, 2019, 10(7): 396.
- [19] Wang Y, Dörner S, Donner S, et al. Vertical profiles of NO₂, SO₂, HONO, HCHO, CHOCHO and aerosols derived from MAX-DOAS measurements at a rural site in the central western North China Plain and their relation to emission sources and effects of regional transport [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2019, 19(8): 5417-5449.
- [20] Tan W, Liu C, Wang S S, et al. Tropospheric NO₂, SO₂, and HCHO over the East China Sea, using ship-based MAX-DOAS observations and comparison with OMI and OMPS satellite data[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2018, 18(20): 15387-15402.
- [21] Tian X, Xie P H, Xu J, et al. Long-term observations of tropospheric NO₂, SO₂ and HCHO by MAX-DOAS in Yangtze River Delta area, China [J]. *Journal of Environmental Sciences*, 2018, 71: 207-221.
- [22] Brinkma E J, Pinardi G, Volten H, et al. The 2005 and 2006 Dandelions NO₂ and aerosol intercomparison campaigns [J]. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 2008, 113 (D16): D16S46.
- [23] Li A, Xie P H, Liu W Q, et al. Studies on the determination of the flux of gaseous pollutant from an area by passive differential optical absorption spectroscopy [J]. *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 2009, 29(1): 28-32.
- 李昂, 谢品华, 刘文清, 等. 被动差分吸收光谱法测量区域内污染气体排放通量的方法研究[J]. *光谱学与光谱分析*, 2009, 29(1): 28-32.
- [24] Balzani Lööv J M, Alföldy B, Gast L F L, et al. Field test of available methods to measure remotely SO_x and NO_x emissions from ships[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2014, 7(8): 2597-2613.
- [25] Berg N, Mellqvist J, Jalkanen J P, et al. Ship emissions of SO₂ and NO₂: DOAS measurements from airborne platforms [J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2012, 5(5): 1085-1098.
- [26] Hong Q Q, Liu C, Chan K L, et al. Ship-based MAX-DOAS measurements of tropospheric NO₂, SO₂, and HCHO distribution along the Yangtze River [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2018, 18(8): 5931-5951.
- [27] Wu F C, Xie P H, Li A, et al. Investigations of temporal and spatial distribution of precursors SO₂ and NO₂ vertical columns in the North China Plain using mobile DOAS[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2018, 18(3): 1535-1554.
- [28] Bucseala E J, Krotkov N A, Celarier E A, et al. A new stratospheric and tropospheric NO₂ retrieval algorithm for nadir-viewing satellite instruments: applications to OMI[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2013, 6(10): 2607-2626.
- [29] Hendrick F, Müller J F, Clémer K, et al. Four years of ground-based MAX-DOAS observations of HONO and NO₂ in the Beijing area [J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2014, 14(2): 765-781.