

气溶胶光学特性对宽谱差分吸收激光雷达NO₂质量浓度反演结果的影响

成远, 余纪恒, 官振峰, 梅亮*

大连理工大学光电工程与仪器科学学院, 辽宁 大连 116024

摘要 针对宽谱连续波差分吸收激光雷达(DIAL)的特点,通过仿真不同大气条件下的激光雷达信号,计算分析宽谱DIAL气溶胶消光和后向散射效应引起的二氧化氮(NO₂)质量浓度反演误差。研究表明:当大气气溶胶均匀分布时,NO₂质量浓度反演误差主要取决于气溶胶消光效应,而后向散射效应引起的NO₂质量浓度反演误差一般可忽略不计;当大气气溶胶非均匀分布时,气溶胶后向散射效应引起的NO₂质量浓度反演误差依赖于气溶胶非均匀分布程度,且与波长指数成反比。此外,适当增大分段拟合距离可有效降低气溶胶后向散射效应引起的NO₂质量浓度反演误差。利用光谱近似得到宽谱NO₂-DIAL气溶胶消光和后向散射效应引起的NO₂质量浓度反演误差的近似模型,通过对比模拟计算的结果,验证了近似模型评估NO₂质量浓度反演误差的可行性。

关键词 大气光学; 宽谱差分吸收激光雷达; 沙氏成像原理; 二氧化氮; 气溶胶光学特性

中图分类号 O436

文献标志码 A

DOI: 10.3788/AOS231130

1 引言

二氧化氮(NO₂)是大气中一种重要的痕量气体,它在大气中的质量浓度增加会引发人的呼吸系统和心脑血管系统疾病,严重危害人类健康^[1-5]。差分吸收激光雷达(DIAL)是探测大气NO₂质量浓度廓线的一种有效手段,具有高探测灵敏度和高时空分辨率的特点,能够实时监测三维空间中的大气痕量气体(SO₂、O₃、NO₂等)分布,在大气环境监测领域具有重要的应用价值^[6-8]。DIAL技术的基本原理是向大气交替发射两束波长相近的激光脉冲,其中一束激光脉冲的波长(λ_{on})位于待测气体的吸收峰,另一束激光脉冲的波长(λ_{off})位于待测气体的吸收谷,通过测量气体对波长为 λ_{on} 和 λ_{off} 的激光的差分吸收,可反演出待测气体的质量浓度信息。

基于差分吸收的原理,DIAL技术在探测痕量气体时不可避免地受到其他大气成分(大气分子、大气气溶胶等)的干扰。对于其他气体分子的干扰,一般可通过选择合适的激光波长来避开主要干扰气体的吸收谱线。然而,气溶胶在 λ_{on} 和 λ_{off} 波长处的光学特性取决于气溶胶质量浓度、种类、大气条件等因素,其产生的影响比较复杂。因此,在DIAL测量中,通常要求 λ_{on} 和 λ_{off} 尽可能相近,同时尽可能地缩短交替探测的时间间

隔,以确保波长分别为 λ_{on} 和 λ_{off} 的激光光束探测的是同一状态下的大气,且在这两个波长下大气气溶胶的光学特性相似,进而可以忽略大气气溶胶对DIAL探测气体质量浓度的影响^[9]。脉冲式DIAL在测量具有窄带吸收谱线的气体(如Hg、CO₂、H₂O等)时,差分吸收波长 λ_{on} 和 λ_{off} 的间隔仅为pm量级,此时大气气溶胶在 λ_{on} 和 λ_{off} 波长下的吸收和散射效应的差异可忽略不计^[10-12];对于O₃、NO₂等具有较宽吸收谱线的气体, λ_{on} 和 λ_{off} 波长间隔通常在nm量级,此时大气气溶胶的影响一般不可直接忽略,尤其是当待测气体质量浓度较低或吸收较弱时,大气气溶胶的影响尤为严重^[13-16]。

为了探讨大气气溶胶对DIAL测量结果的影响,针对O₃和NO₂气体测量,国内外学者开展了许多研究工作。1982年,Pelon等^[17]讨论了 λ_{on} 和 λ_{off} 间隔较大($\lambda=5$ nm)以及大气气溶胶的非均匀分布对O₃测量的影响。此后,Browell等^[18]采用激光雷达直接测量的方法获得大气气溶胶的消光及后向散射系数,并结合误差修正算法修正气溶胶的影响,但因气溶胶参数难以准确估计,该方法本身存在一定的误差。1996年,王志恩等^[19]提出了采用四波长差分吸收激光雷达测量O₃质量浓度的方案。随后,他们进一步提出三波长DIAL方法^[20],该方法能够在一定程度上克服大气气溶胶的影响,但系统较为复杂。2022年,谢银海等^[21]

收稿日期: 2023-06-13; 修回日期: 2023-08-25; 录用日期: 2023-09-06; 网络首发日期: 2023-09-22

基金项目: 国家自然科学基金(62075025)

通信作者: *meiliang@dlut.edu.cn

以激光雷达实测的气溶胶分布为基础,模拟并对比了三波长 O_3 -DIAL 方法和双波长 O_3 -DIAL 方法的气溶胶引入误差,并得出气溶胶含量主要影响消光项误差,而后向散射误差主要受气溶胶空间分布影响的基本结论。 NO_2 气体在 450 nm 波长附近的吸收截面较小且在大气背景中含量较低。利用 DIAL 技术测量大气 NO_2 时, λ_{on} 和 λ_{off} 一般为 448 nm 和 450 nm。由于 λ_{on} 和 λ_{off} 波长间隔较大(1~2 nm),大气气溶胶对 NO_2 质量浓度测量结果的影响较为复杂^[22-23],测量低质量浓度 NO_2 时必须仔细考虑。2017 年, Liu 等^[24]根据激光雷达实测的气溶胶分布,评估了气溶胶对 NO_2 质量浓度测量引入的误差。当波长指数(Angström exponent)为 1 时,气溶胶消光效应引起的相对误差为 0%~40%,气溶胶后向散射效应引起的相对误差为 0.2%~0.8%。

以上研究初步探讨了气溶胶在 DIAL 测量中的影响,但大多是基于激光雷达实测数据进行分析,缺乏系统性的气溶胶误差分析。此外,对于脉冲式 NO_2 -DIAL 系统,一般采用染料激光器作为光源,其发射激光的线宽远小于 NO_2 气体的吸收峰宽度,所以一般不需要考虑谱线宽度对 DIAL 测量结果的影响。然而,基于多模半导体激光器的连续波 NO_2 -DIAL 系统,发射光谱半峰全宽(FWHM; d_{FWHM})一般在 1~2 nm^[25],这使得气溶胶作用情况更加复杂。因此,在分析气溶胶引起的 NO_2 质量浓度反演误差时需要考虑激光器发射光谱宽度的影响。为了厘清大气气溶胶对宽谱 NO_2 -DIAL 测量结果的影响,基于宽谱连续波 NO_2 -DIAL 技术,本文采用模拟计算和近似模型两种研究方法,对比分析不同大气状况下的气溶胶引起误差,系统性地分析大气气溶胶的消光和后向散射效应对 NO_2 质量浓度反演结果的影响。

2 宽谱 NO_2 差分吸收激光雷达原理

2.1 基于沙氏成像原理的宽谱 NO_2 -DIAL

连续波差分吸收激光雷达(CW-DIAL)的原理如图 1 所示。CW-DIAL 基于沙氏成像原理(Scheimpflug principle),以高功率多模二极管激光器为光源,图像传感器为探测器。测量时,通过电流调谐二极管激光器(波长为 450 nm,功率为 1.6 W)交替发出位于 NO_2 气体吸收峰波段的 λ_{on} 波长激光和位于吸收谷波段的 λ_{off} 波长激光, λ_{on} 和 λ_{off} 波长激光的光谱中心间隔约 1.5 nm。发出的激光光束经过透镜组、折射式望远镜($f=600$ mm, $\varnothing=100$ mm)准直后被发射到大气中。发射到大气中的光束被大气分子和颗粒吸收并散射,然后由牛顿望远镜($f=800$ mm, $\varnothing=200$ mm)接收,经过窄带滤光片(中心波长为 450 nm,半峰全宽为 10 nm)后成像到 45° 倾斜放置的图像传感器(Hamamatsu S11071-1006,分辨率为 1044 pixel×

70 pixel,像元尺寸为 14 $\mu\text{m} \times 14 \mu\text{m}$)上。图像传感器通过对已知距离建筑物进行校准,可获得像素和测量距离的对应关系。通过对图像传感器记录的信号进行平均、数字滤波及像素-距离转换等处理,可获得 λ_{on} 和 λ_{off} 波长处的大气激光雷达信号。

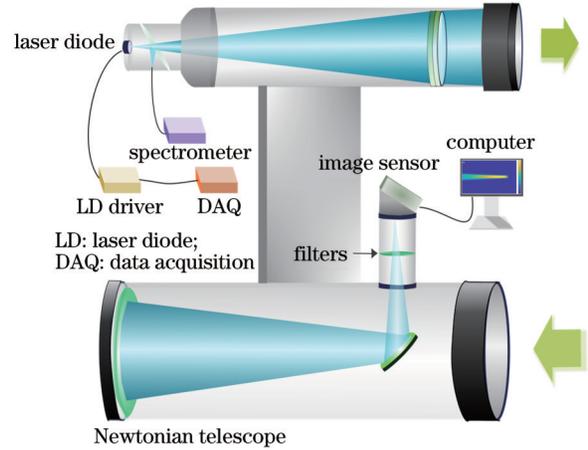


图 1 基于高功率多模二极管激光器的连续波 NO_2 -DIAL 系统原理示意图

Fig. 1 Schematic of continuous-wave NO_2 -DIAL system based on high-power multimode laser diode

图 2 所示为 NO_2 在可见光区域内的吸收截面及发射光谱中心波长分别位于 447.85 nm (λ_{on}) 和 449.35 nm (λ_{off}) 处的归一化发射光谱,归一化方法采用光谱曲线面积归一化。从图 2 可以看出,发射激光的光谱宽度与 NO_2 吸收峰宽度相近。因此,在进行 NO_2 质量浓度反演及 DIAL 模拟分析时,有必要系统性地考虑光谱宽度的影响。

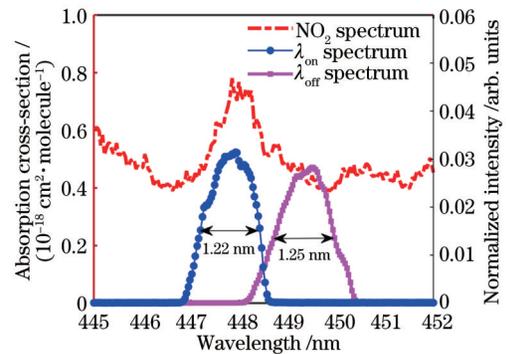


图 2 NO_2 吸收截面(294 K)及 450 nm 二极管激光器在 λ_{on} 和 λ_{off} 波长处的归一化光谱

Fig. 2 NO_2 absorption cross-section (294 K), as well as normalized emission spectra of 450 nm laser diode at λ_{on} and λ_{off} wavelengths

2.2 宽谱 NO_2 -DIAL 理论模型

结合二极管激光器发射激光的宽谱特性,根据大气探测激光雷达的基本理论,可建立宽谱 NO_2 -DIAL 方程。其中,波长为 λ_{on} 的大气激光雷达信号可表示为

$$P(\lambda_{\text{on}}, z) = \int_{\lambda_{\text{m}}} \left\{ g(\lambda) [\beta_{\text{m}}(\lambda, z) + \beta_{\text{a}}(\lambda, z)] \cdot \exp \left\{ -2 \int_0^z [\alpha_{\text{m}}(\lambda, z') + \alpha_{\text{a}}(\lambda, z')] dz' \right\} \cdot \exp \left[-2 \int_0^z \sigma_{\text{NO}_2}(\lambda) N_{\text{NO}_2}(z') dz' \right] \right\} d\lambda, \quad (1)$$

式中: z 为距离; $g(\lambda)$ 为归一化的光谱强度; β_{m} 为空气分子的后向散射系数; β_{a} 为气溶胶的后向散射系数; α_{a} 为气溶胶的消光系数; α_{m} 为空气分子的消光系数; σ_{NO_2} 为 NO_2 的吸收截面; N_{NO_2} 为大气中 NO_2 质量浓度。同理, 可得波长为 λ_{off} 的大气激光雷达信号, 记为 $P(\lambda_{\text{off}}, z)$ 。

若系统探测波长 λ_{on} 和 λ_{off} 的间隔较小, 大气分子和气溶胶的消光系数及后向散射系数在 λ_{on} 和 λ_{off} 的小范围内和波长无关, 可忽略空气分子和气溶胶作用, 不考虑两者的消光系数 ($\alpha_{\text{m}}, \alpha_{\text{a}}$) 和后向散射系数 ($\beta_{\text{m}}, \beta_{\text{a}}$) 的影响, 此时 λ_{on} 和 λ_{off} 波长的激光雷达信号比值可表示为

$$\frac{P(\lambda_{\text{on}}, z)}{P(\lambda_{\text{off}}, z)} = \exp \left[-2 \int_0^z \Delta \sigma_{\text{NO}_2}(\lambda) N_{\text{NO}_2}(z') dz' \right], \quad (2)$$

其中, 有效吸收截面由 NO_2 标准吸收截面 σ_{NO_2} 和宽带光谱卷积得到

$$\Delta \sigma_{\text{NO}_2}(\lambda) = \int_{\lambda} [g_{\lambda_{\text{on}}}(\lambda) \sigma_{\text{NO}_2}(\lambda) - g_{\lambda_{\text{off}}}(\lambda) \sigma_{\text{NO}_2}(\lambda)] d\lambda, \quad (3)$$

式中: $\Delta \sigma_{\text{NO}_2}$ 为宽带光谱下的 NO_2 等效差分吸收截面。根据式(2), 可得到 NO_2 质量浓度

$$N_{\text{NO}_2}(z) = -\frac{1}{2\Delta \sigma_{\text{NO}_2}} \frac{d}{dz} \left[\ln \frac{P(\lambda_{\text{on}}, z)}{P(\lambda_{\text{off}}, z)} \right]. \quad (4)$$

根据式(1)和模拟的大气气溶胶参数、 NO_2 质量浓度, 可得到在不同大气气溶胶分布情况下的激光雷达信号。在此基础上, 根据式(4)反演 NO_2 质量浓度, 将反演的 NO_2 质量浓度和预先设置的 NO_2 质量浓度 (N_{actual}) 进行对比, 可得到由气溶胶消光和后向散射效应引起的 NO_2 质量浓度反演误差。需要指出的是, 由空气分子差分吸收产生的反演误差一般可忽略不计^[26]。

3 激光雷达信号模拟及 NO_2 质量浓度反演

要想通过式(1)模拟大气激光雷达信号, 不仅需要预设 NO_2 质量浓度, 还需要确定宽带条件下的大气分子和气溶胶光学特性、大气分子和气溶胶光学参量的空间分布状态、 NO_2 吸收截面等参数, 才能得到不同大气条件下 λ_{on} 和 λ_{off} 波长的大气回波信号强度。

3.1 大气分子和气溶胶的光学特性

假设在波长为 λ_{off} 的激光光束的光谱中心 ($\lambda_{\text{off}0} = 449.35 \text{ nm}$), 空气分子的消光系数为 0.0278 km^{-1} 。在二极管激光器的发射光谱范围 (445~452 nm) 内, 可根据瑞利散射模型, 模拟得到空气分子消光系数随波长的变化。同时, 根据空气分子的后向散射系数与消光系数的关系, 可进一步推导得到空气分子的后向散射

系数随波长的变化。

气溶胶的消光系数和后向散射系数与大气状态密切相关。在模拟激光雷达曲线时, 可预先设定某一波长的消光系数, 随后根据激光雷达比、波长指数等参数确定其他所有波长处的气溶胶的消光系数及后向散射系数。同一波长处的气溶胶的消光系数 $\alpha_{\text{a}}(\lambda, z)$ 与后向散射系数 $\beta_{\text{a}}(\lambda, z)$ 之间的关系可通过激光雷达比来描述。对于工作在 450 nm 波段的 NO_2 -DIAL 系统, 激光雷达比可取为 40^[27-28]。不同波长处的气溶胶消光系数与后向散射系数之间的关系可用波长指数来表示,

$$\frac{\beta_{\text{a}}(\lambda_2)}{\beta_{\text{a}}(\lambda_1)} = \frac{\alpha_{\text{a}}(\lambda_2)}{\alpha_{\text{a}}(\lambda_1)} = \left(\frac{\lambda_2}{\lambda_1} \right)^{-\eta}, \quad (5)$$

式中: η 为波长指数, 取值范围一般在 0~3。波长指数描述了气溶胶消光、后向散射系数与波长的依赖关系。

假设气溶胶消光系数 α_{a} 在 λ_{off} 光束的激光光谱中心处为 0.3 km^{-1} ($\lambda_{\text{off}0} = 449.35 \text{ nm}$), 可以得到气溶胶后向散射系数 β_{a} 在 λ_{off} 光束的光谱中心波长处为 $0.0075 \text{ km}^{-1} \cdot \text{sr}^{-1}$ 。根据式(5)便可得到在二极管激光器发射光谱覆盖范围内气溶胶消光系数和后向散射系数随波长的变化关系, 其中消光系数如图 3 所示。

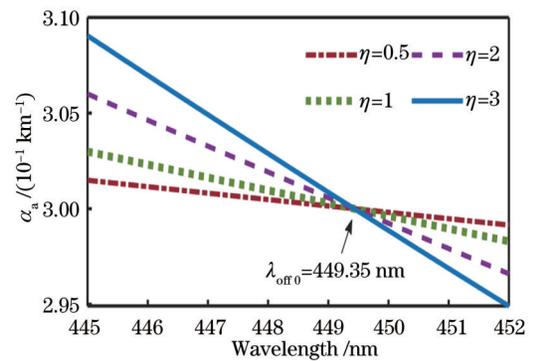


图 3 不同波长指数下气溶胶消光系数与波长的关系

Fig. 3 Relationship between aerosol extinction coefficient and wavelength with different Ångström exponents

当大气气溶胶均匀分布时, 气溶胶消光系数和后向散射系数不随距离变化, 在测量范围内的气溶胶光学参数均可根据上述方法进行模拟。当大气气溶胶非均匀分布时, 气溶胶消光系数和后向散射系数将随气溶胶质量浓度的改变在探测路径上发生变化。为了模拟非均匀大气条件, 利用高斯函数模拟探测路径上大气气溶胶气团的强回波信号。如图 4 所示, 在探测路径 1500 m 左右处出现气溶胶气团, 高斯函数的峰值表示气溶胶气团内气溶胶含量的相对大小, 半峰全宽表示气溶胶气团的分布范围。

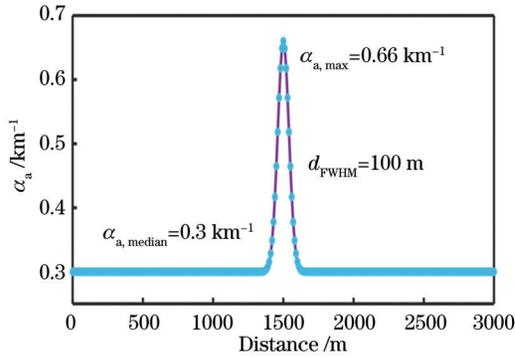


图 4 非均匀大气条件下模拟的气溶胶消光系数分布

Fig. 4 Distribution of aerosol extinction coefficient under inhomogeneous atmospheric conditions

3.2 激光雷达信号噪声

为了更好地模拟激光雷达信号,在模拟分析时引入了噪声。选取高斯白噪声作为系统的噪声模型,通过向模拟的大气激光雷达信号中添加高斯白噪声来获得更接近真实情况的仿真结果。激光雷达信号的信噪比可表示为 $R_{\text{SNR}} = P(z)/N_{\text{noise}}$,其中, $P(z)$ 为距离 z 处的激光雷达信号, N_{noise} 为高斯白噪声的标准差。

3.3 典型大气激光雷达信号

将大气分子/气溶胶光学参数、二极管激光器的归一化发射光谱、 NO_2 吸收截面代入式(1),加入高斯白噪声,可得到激光雷达信号。图 5 所示为叠加噪声之后的激光雷达信号。假设 NO_2 质量浓度为 $N_{\text{actual}} = 60 \mu\text{g}/\text{m}^3$, 波长指数 η 为 3, 高斯函数半峰全宽为 100 m, 探测路径 70 m 处的系统信噪比 R_{SNR} 为 8000。

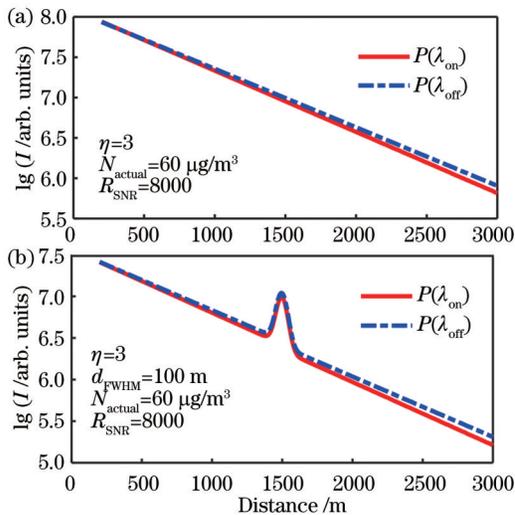


图 5 模拟的大气激光雷达信号强度 I 与距离的关系。(a) 大气气溶胶均匀分布; (b) 大气气溶胶非均匀分布

Fig. 5 Relationship between simulated atmospheric lidar signals intensity I and distance. (a) Homogeneous distribution of atmospheric aerosol; (b) inhomogeneous distribution of atmospheric aerosol

3.4 NO_2 质量浓度反演

根据式(4),可通过激光雷达回波信号比值求得 NO_2 质量浓度。然而,直接求得得到的 NO_2 质量浓度容易受到噪声影响。在实际测量时,一般采用分段拟合的方式获取 NO_2 的质量浓度,拟合公式为

$$R_{\text{ratio}} = \ln \frac{P(\lambda_{\text{on}}, z)}{P(\lambda_{\text{off}}, z)} = -2\Delta\sigma_{\text{NO}_2} N_{\text{NO}_2} z + C_0, \quad (6)$$

式中: C_0 为常数项。针对任意拟合区间 $[z_1, z_2]$, 均可得到该区间内的 NO_2 质量浓度,其中 $z_2 - z_1$ 为拟合区间的长度,即拟合距离,不同的拟合距离对应不同的气体吸收程。

由式(6)可知,分段拟合得到的曲线斜率 k 即为与 NO_2 吸收有关的衰减系数。在拟合区间 $[z_1, z_2]$ 内,反演的 NO_2 质量浓度为

$$N_{\text{NO}_2} = -\frac{k}{2\Delta\sigma_{\text{NO}_2}}. \quad (7)$$

由此,可得到气溶胶消光和后向散射效应引起的 NO_2 质量浓度测量误差

$$\Delta N_{\text{Tot-err}} = N_{\text{NO}_2} - N_{\text{actual}}. \quad (8)$$

当模拟激光雷达信号时,若只考虑气溶胶的消光作用,则可将气溶胶后向散射系数视为常数,与波长无关。由此,由式(8)得到的是仅由气溶胶消光系数产生的质量浓度反演误差 ($\Delta N_{\alpha\text{-err}}$)。同理,可得到气溶胶后向散射系数产生的质量浓度反演误差 ($\Delta N_{\beta\text{-err}}$)。对激光雷达信号求取差分吸收曲线,并进行分段拟合,其中拟合距离为 500 m,可反演 NO_2 质量浓度,如图 6(a)、(b) 所示。

4 模拟结果分析与讨论

下面将依据模拟计算得到的结果,分别讨论大气气溶胶均匀分布和非均匀分布两种情况下的 NO_2 质量浓度反演误差。

4.1 大气气溶胶均匀分布下的 NO_2 质量浓度反演误差

当大气气溶胶均匀分布时,差分吸收曲线如图 6(a) 所示。当分段拟合距离由 100 m 增加到 1000 m 时,由式(8)可得到气溶胶消光及后向散射效应引起的 NO_2 质量浓度误差,如图 7 所示,其中竖线段表示各拟合距离处的 NO_2 质量浓度反演误差波动范围。

从图 7 可以看出,当拟合距离较短时, NO_2 质量浓度反演误差受到噪声的影响较为严重。随着分段拟合距离的增加, NO_2 质量浓度反演误差趋向于稳定。虽然拟合距离的增加在一定程度上降低了空间分辨率,但提高了 NO_2 质量浓度反演的可靠性。当拟合距离增加到某一值后,再增大拟合距离,气溶胶误差将不再受到噪声影响而呈现较为稳定的波动(波动幅度小于 15%),定义此时的拟合距离为临界拟合距离。从图 7 可以看出,气溶胶消光系数和后向散射系数引起的反

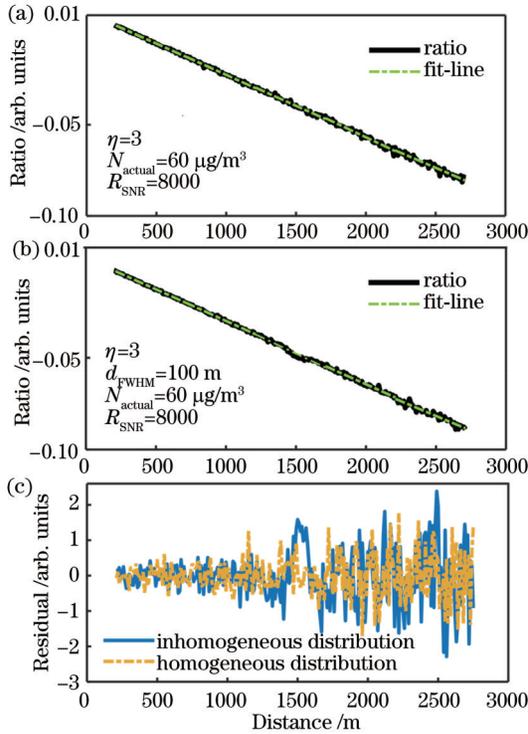


图 6 差分吸收曲线及分段拟合。(a)大气气溶胶均匀分布时的差分吸收曲线及分段拟合结果;(b)大气气溶胶不均匀分布时的差分吸收曲线及分段拟合结果;(c)分段拟合残差(拟合距离为 500 m)

Fig. 6 Differential absorption curves and segmental fitting. (a) Differential absorption curve and segmental fitting curve when atmospheric aerosol is homogeneously distributed; (b) differential absorption curve and segmental fitting curve when atmospheric aerosol is inhomogeneously distributed; (c) fitting residuals (fitting range is 500 m)

演误差之和与同时考虑两个系数时的反演误差之间具有较好的一致性。因此,可以单独分析消光系数和后向散射系数引起的反演误差。此外,当拟合距离超过临界值时,由气溶胶消光系数引起的误差约为 $14.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$,后向散射系数引起的误差约为 $0.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$,其在总误差中占比均小于 5%,可以忽略不计。由此说明,在均匀大气环境下,NO₂ 质量浓度反演误差主要为气溶胶消光系数引起的误差。当大气中的 NO₂ 质量浓度为 $60 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 时,气溶胶消光系数引起的相对误差约为 24%。为了深入研究大气中 NO₂ 质量浓度对气溶胶引入误差的影响,在模拟过程中改变大气 NO₂ 质量浓度 ($10\sim 60 \mu\text{g}/\text{m}^3$),进一步探讨气溶胶引入误差与 NO₂ 质量浓度的关系。研究结果表明,气溶胶引入误差基本不受大气 NO₂ 质量浓度变化的影响,而更主要受到气溶胶本身参数的影响。换句话说,气溶胶引入的 NO₂ 质量浓度误差是绝对误差,在整体上并不依赖于 NO₂ 质量浓度的变化。

下面将忽略噪声的影响,固定拟合距离为 500 m,

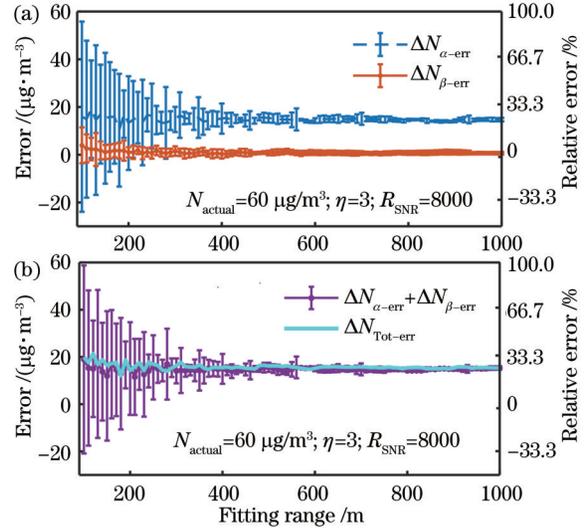


图 7 大气气溶胶均匀分布时,NO₂ 质量浓度反演误差与拟合距离的关系。(a) 仅由气溶胶消光系数引起的 NO₂ 质量浓度反演误差 ($\Delta N_{\alpha\text{-err}}$) 和仅由后向散射系数引起的 NO₂ 质量浓度反演误差 ($\Delta N_{\beta\text{-err}}$); (b) 气溶胶消光和后向散射系数引起的 NO₂ 质量浓度反演误差之和 ($\Delta N_{\alpha\text{-err}} + \Delta N_{\beta\text{-err}}$), 以及同时考虑气溶胶消光和后向散射系数引起的 NO₂ 质量浓度反演误差 ($\Delta N_{\text{Tot-err}}$)

Fig. 7 Relationship between retrieval error of NO₂ mass concentration and fitting range when atmospheric aerosol is homogeneously distributed. (a) Retrieval errors of NO₂ mass concentration resulted from aerosol extinction coefficient ($\Delta N_{\alpha\text{-err}}$) and backscattering coefficient ($\Delta N_{\beta\text{-err}}$); (b) sum of retrieval errors of NO₂ mass concentration resulted from aerosol extinction coefficient and backscattering coefficient ($\Delta N_{\alpha\text{-err}} + \Delta N_{\beta\text{-err}}$), as well as retrieval error of NO₂ mass concentration considering both aerosol extinction and backscattering coefficients ($\Delta N_{\text{Tot-err}}$)

探讨气溶胶引入的反演误差和波长间隔及气溶胶消光系数之间的关系。需要强调的是,波长间隔的增大不仅会使得气溶胶消光系数随探测波长发生改变,也会引起 NO₂ 差分吸收截面的改变。如图 8 所示,当气溶胶消光系数不变时,气溶胶引起的 NO₂ 质量浓度反演误差与波长间隔并非呈线性关系,而是随着波长间隔的增大,呈现先减小后增大的变化趋势。同时,随着气溶胶消光系数的增大,这一趋势更加明显。上述结果表明,在选择 λ_{on} 和 λ_{off} 波长时,并非波长间隔越小越好,而是要综合考虑待测气体差分吸收截面和气溶胶消光系数的影响。如图 8 所示,最佳的波长间隔在 1.5 nm 左右。

为了进一步研究波长指数和气溶胶消光系数对测量误差的影响,固定波长间隔为 1.5 nm,拟合距离为 500 m,得到如图 9 所示的结果。从图 9 可以看出,随着波长指数和气溶胶消光系数的增大,气溶胶消光系数引起的 NO₂ 质量浓度反演误差也增大。当波长指数为 1 且大气气溶胶消光系数仍为 0.3 km^{-1} 时,气溶胶

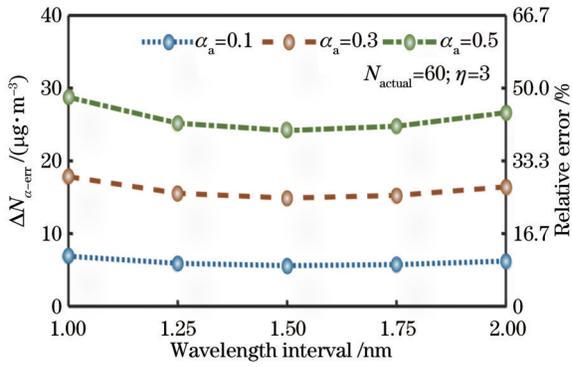


图 8 大气气溶胶均匀分布时,气溶胶消光系数引起的 NO₂ 质量浓度反演误差与波长间隔的关系

Fig. 8 Relationship between aerosol extinction coefficient induced retrieval error of NO₂ mass concentration and wavelength interval, when atmospheric aerosol is homogeneously distributed

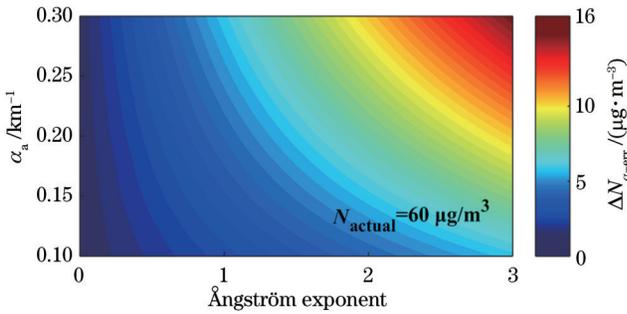


图 9 大气气溶胶均匀分布时,气溶胶消光系数引起的 NO₂ 质量浓度反演误差与波长指数和气溶胶消光系数的关系

Fig. 9 Relationship among aerosol extinction coefficient induced retrieval error of NO₂ mass concentration, Ångström exponent, and aerosol extinction coefficient of atmospheric aerosol, when atmospheric aerosol is homogeneously distributed

消光系数引起的 NO₂ 质量浓度反演误差降为 5 μg/m³ 左右,小于波长指数为 3 时的误差。

4.2 大气气溶胶非均匀分布下的 NO₂ 质量浓度反演误差

当大气气溶胶非均匀分布时,差分吸收曲线如图 6(b) 所示。对该差分吸收曲线进行滑动拟合,拟合距离从 100 m 增加到 1000 m,得到的 NO₂ 质量浓度反演误差和拟合距离之间的关系如图 10 所示。

从图 10 可以看出,当大气气溶胶非均匀分布时,气溶胶后向散射系数引起的 NO₂ 质量浓度反演误差很大,且会产生负值。当拟合距离大于 500 m 时,气溶胶引起的 NO₂ 质量浓度反演误差不再出现较大变化。由此说明,选择适当的拟合距离可有效避免气溶胶时空分布变化对 NO₂ 质量浓度反演结果的影响。

图 11 展示了拟合距离为 500 m 时气溶胶引入的 NO₂ 质量浓度反演误差。从图 11 可以看出,在大气气溶胶非均匀分布时,气溶胶后向散射系数引起的误差

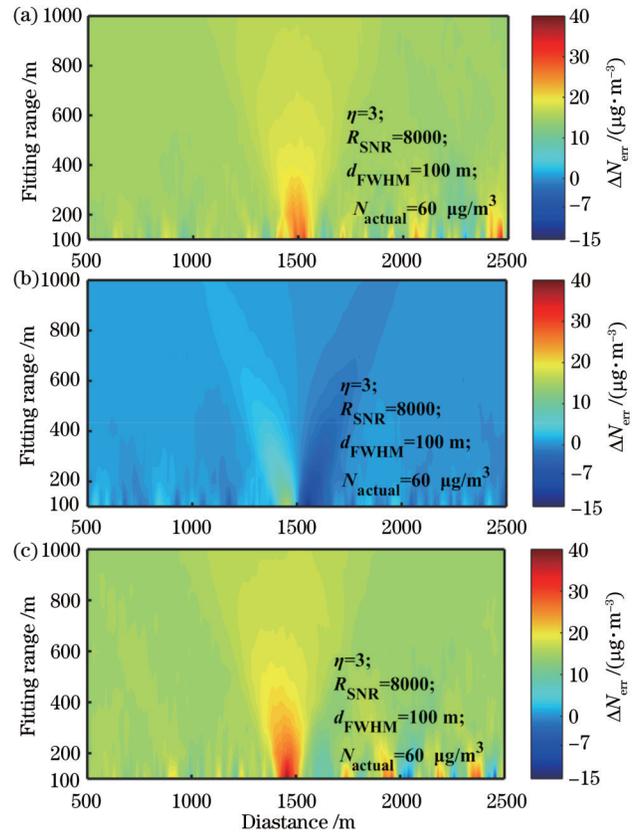


图 10 大气气溶胶非均匀分布时,在探测路径上气溶胶引入的 NO₂ 质量浓度反演误差与拟合距离关系。(a) 气溶胶消光系数引起的 NO₂ 质量浓度反演误差 ($\Delta N_{\alpha_{\text{err}}}$); (b) 气溶胶后向散射系数引起的 NO₂ 质量浓度反演误差 ($\Delta N_{\beta_{\text{err}}}$); (c) 同时考虑气溶胶消光系数和后向散射系数引起的 NO₂ 质量浓度反演误差 ($\Delta N_{\text{Tot-err}}$)

Fig. 10 Relationship between aerosol-induced retrieval error of NO₂ mass concentration and fitting distance on detection path, when atmospheric aerosol is inhomogeneously distributed. (a) Retrieval error of NO₂ mass concentration resulted from aerosol extinction coefficient ($\Delta N_{\alpha_{\text{err}}}$); (b) retrieval error of NO₂ mass concentration resulted from aerosol backscattering coefficient ($\Delta N_{\beta_{\text{err}}}$); (c) retrieval error of NO₂ mass concentration considering both aerosol extinction and backscattering coefficient ($\Delta N_{\text{Tot-err}}$)

发生了较大变化,增加至 3.3 μg/m³,气溶胶消光系数引起的误差峰值为 18.9 μg/m³。同时考虑消光和后向散射系数所得到的气溶胶总误差几乎等于气溶胶消光和后向散射系数单独作用时产生的误差之和。因此,当大气气溶胶非均匀分布时,可单独分析消光和后向散射系数引起的反演误差。

为了进一步研究在气溶胶非均匀分布时,由气溶胶后向散射系数引起的 NO₂ 质量浓度反演误差的变化,改变气溶胶消光系数(及对应的后向散射系数)和波长指数,得到如图 12 所示的结果。在图 12 中,纵坐标表示非均匀范围内气溶胶消光系数峰值与均匀大气

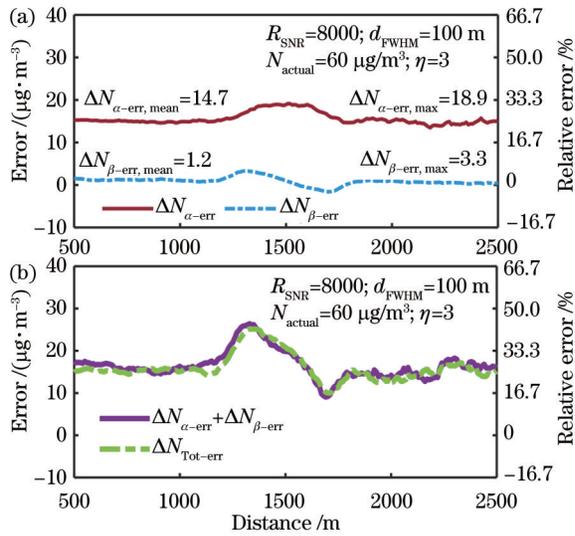


图 11 大气气溶胶非均匀分布时,气溶胶引起的 NO₂质量浓度反演误差随测量距离的变化。(a)气溶胶消光系数引起的 NO₂反演误差($\Delta N_{\alpha\text{-err}}$)和后向散射系数引起的 NO₂质量浓度反演误差($\Delta N_{\beta\text{-err}}$);(b)气溶胶消光系数和后向散射系数引起的 NO₂质量浓度反演误差之和($\Delta N_{\alpha\text{-err}} + \Delta N_{\beta\text{-err}}$),以及同时考虑消光系数和后向散射系数引起的 NO₂质量浓度反演误差($\Delta N_{\text{Tot-err}}$)

Fig. 11 Aerosol-induced retrieval error of NO₂ mass concentration and varies with detecting distance, when atmospheric aerosol is inhomogeneously distributed. (a) Retrieval error of NO₂ mass concentration resulted from aerosol extinction coefficient ($\Delta N_{\alpha\text{-err}}$) and aerosol backscattering coefficient ($\Delta N_{\beta\text{-err}}$); (b) sum of retrieval errors of NO₂ mass concentration resulted from extinction coefficient and backscattering coefficient ($\Delta N_{\alpha\text{-err}} + \Delta N_{\beta\text{-err}}$), as well as retrieval error of NO₂ mass concentration considering both aerosol extinction and backscattering effect ($\Delta N_{\text{Tot-err}}$)

范围内气溶胶消光系数平均值的比值,该比值在一定程度上表征了大气的非均匀性程度,当比值为 1 时,表示大气均匀分布。在模拟计算中,气溶胶消光系数的平均值(背景值)固定为 0.3 km^{-1} ,非均匀处的消光系数峰值则从 0.3 km^{-1} 变化到 0.9 km^{-1} 。从图 12 可以看出:随着非均匀范围内气溶胶消光系数峰值的增大,气溶胶后向散射引起的误差逐渐增大,可见由气溶胶

后向散射系数引起的 NO₂质量浓度反演误差和大气气溶胶的非均匀程度密切相关;当气溶胶消光系数平均值和峰值固定不变时,随着波长指数的增加,由后向散射系数引起的 NO₂质量浓度反演误差减小。当波长指数为 1、非均匀范围内的消光系数为 0.66 km^{-1} 时,由后向散射系数引起的 NO₂质量浓度反演误差为 $6.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$,大于波长指数为 3 时的误差。这一现象与气溶胶消光系数引起的反演误差显著不同。

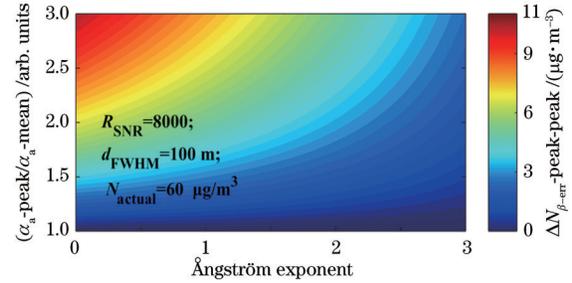


图 12 大气气溶胶非均匀分布且连续改变大气气溶胶非均匀范围消光系数(α_a 平均值: 0.3 km^{-1} , α_a 峰值: $0.3 \text{ km}^{-1} \rightarrow 0.9 \text{ km}^{-1}$)时,气溶胶后向散射产生的 NO₂质量浓度反演误差与大气气溶胶质量浓度和波长指数的关系

Fig. 12 Relationship among aerosol backscattering-induced retrieval error of NO₂ mass concentration, Ångström exponent, and atmospheric aerosol mass concentration, when atmospheric aerosol is inhomogeneously distributed and extinction coefficient of atmospheric aerosol in inhomogeneous range is continuously changed (α_a -mean: 0.3 km^{-1} , α_a -peak: $0.3 \text{ km}^{-1} \rightarrow 0.9 \text{ km}^{-1}$)

5 基于近似模型的 NO₂质量浓度反演误差分析

前文的模拟计算结果很好地揭示了 NO₂质量浓度反演误差与气溶胶消光系数和后向散射系数之间的关系,但无法应用于实际过程中激光雷达探测曲线的分析。因此,本节将从 DIAL 方程出发,通过理论近似的方式获得气溶胶消光及后向散射系数引起的反演误差,并将近似模型得到的结果与模拟计算结果进行对比分析。

根据式(1),得到波长为 λ_{on} 和 λ_{off} 的激光雷达信号比值为

$$\frac{P(\lambda_{\text{on}}, z)}{P(\lambda_{\text{off}}, z)} = \left\{ \int_{\lambda_{\text{on}}} \left\{ g(\lambda) [\beta_m(\lambda, z) + \beta_a(\lambda, z)] \exp \left\{ -2 \int_0^z [\alpha_m(\lambda, z') + \alpha_a(\lambda, z')] dz' \right\} \times \right. \right. \\ \left. \left. \exp \left[-2 \int_0^z \sigma_{\text{NO}_2}(\lambda) N_{\text{NO}_2}(z') dz' \right] \right\} d\lambda \right\} / \left\{ \int_{\lambda_{\text{off}}} \left\{ g(\lambda) [\beta_m(\lambda, z) + \beta_a(\lambda, z)] \times \exp \left\{ -2 \int_0^z [\alpha_m(\lambda, z') + \alpha_a(\lambda, z')] dz' \right\} \times \right. \right. \\ \left. \left. \exp \left[-2 \int_0^z \sigma_{\text{NO}_2}(\lambda) N_{\text{NO}_2}(z') dz' \right] \right\} d\lambda \right\}, \quad (9)$$

不难看出,式(9)涉及多重积分,难以直接求解,需要通过一定程度的理论近似。假设气溶胶的消光系数、后

向散射系数在波长为 λ_{on} 和 λ_{off} 的激光光谱宽度范围 (~ 1.5 nm) 内可视为常数, 式(9)可进一步化简为

$$\frac{P(\lambda_{on}, z)}{P(\lambda_{off}, z)} = \frac{\beta_m(\lambda_{on}, z) + \beta_a(\lambda_{on}, z)}{\beta_m(\lambda_{off}, z) + \beta_a(\lambda_{off}, z)} \cdot \exp \left\{ -2 \int_0^z [\alpha_a(\lambda_{on}, z') - \alpha_a(\lambda_{off}, z')] dz' \right\} \cdot \exp \left\{ -2 \int_0^z [\alpha_m(\lambda_{on}, z') - \alpha_m(\lambda_{off}, z')] dz' \right\} \cdot \exp \left[-2 \int_0^z \Delta\sigma_{NO_2}(\lambda) N_{NO_2}(z') dz' \right], \quad (10)$$

化简得到 NO_2 质量浓度及反演误差

$$N_{NO_2}(z) = -\frac{1}{2\Delta\sigma_{NO_2}} \frac{d}{dz} \left[\ln \frac{P(\lambda_{on}, z)}{P(\lambda_{off}, z)} \right] + \epsilon_\beta + \epsilon_a + \epsilon_m, \quad (11)$$

$$\epsilon_\beta = \frac{1}{2\Delta\sigma_{NO_2}} \frac{d}{dz} \left[\ln \frac{\beta_m(\lambda_{on}, z) + \beta_a(\lambda_{on}, z)}{\beta_m(\lambda_{off}, z) + \beta_a(\lambda_{off}, z)} \right], \quad (12)$$

$$\epsilon_a = -\frac{\alpha_a(\lambda_{on}, z) - \alpha_a(\lambda_{off}, z)}{\Delta\sigma_{NO_2}}, \quad (13)$$

$$\epsilon_m = -\frac{\alpha_m(\lambda_{on}, z) - \alpha_m(\lambda_{off}, z)}{\Delta\sigma_{NO_2}}, \quad (14)$$

式中: ϵ_β 为大气气溶胶和空气分子后向散射引起的 NO_2 质量浓度反演误差, 其中空气分子后向散射系数引起的误差可忽略不计^[25]; ϵ_a 为大气气溶胶消光系数引起的误差; ϵ_m 为空气分子消光系数引起的误差, 可忽略不计^[25]。

不同波长处的空气分子后向散射系数之间满足瑞利散射条件, 式(12)可进一步表示为

$$\epsilon_\beta = \frac{1}{2\Delta\sigma_{NO_2}} \frac{d}{dz} \left[\ln \frac{(\lambda_{on}/\lambda_{off})^{-4} \beta_m(\lambda_{off}, z) + (\lambda_{on}/\lambda_{off})^{-\eta} \beta_a(\lambda_{off}, z)}{\beta_m(\lambda_{off}, z) + \beta_a(\lambda_{off}, z)} \right]. \quad (15)$$

由于 λ_{on} 和 λ_{off} 非常接近, 且 $\eta \in [0, 3]$, 式(15)可进一步化简为

$$\epsilon_\beta = \frac{1}{2\Delta\sigma_{NO_2}} \frac{d}{dz} \left[\frac{(4-\eta)(\lambda_{off}/\lambda_{on} - 1)}{1 + \frac{\beta_a(\lambda_{off}, z)}{\beta_m(\lambda_{off}, z)}} \right]. \quad (16)$$

由式(16)可以看出, 由后向散射产生的误差随波长指数的增大而减小。下面将结合气溶胶的消光系数、后向散射系数等参数, 分析近似模型的反演误差。

5.1 大气气溶胶均匀分布

图 13 展示了当大气气溶胶均匀分布时, 模拟计算和近似模型得到由气溶胶引起的 NO_2 质量浓度反演误差, 模拟计算对应的分段拟合距离为 500 m。可以看出, 两种方法得到的气溶胶消光系数引起的 NO_2 质量浓度误差非常接近, 相差仅为 $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 左右。当波长指数为 0 时, 根据式(13), 利用近似模型得到的由消光系数引起的 NO_2 质量浓度反演误差为 0, 然而通过模拟计算得到的 NO_2 质量浓度反演误差为 $0.18 \mu\text{g}/\text{m}^3$, 二者之间存在微小差异, 这可能是因为在近似模型的推导过程中使用了光谱近似。此外, 在近似模型中, 后向散射系数引起的 NO_2 质量浓度误差也为 0, 但在模拟计算时, 后向散射系数引起的误差虽然较小, 但不为 0。因此, 两种方式得到的总误差会略有差异, 但总误差相差较小。以上对比结果表明, 当大气气溶胶均匀分布时, 用近似模型可以得到较为准确的由气溶胶引起的 NO_2 质量浓度反演误差。需要特别强调的是, 通过近似模型得到反演误差的前提条件是获得气溶胶的

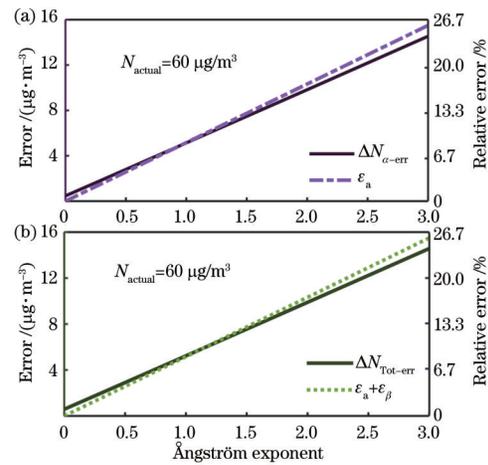


图 13 大气气溶胶均匀分布且消光系数为 0.3 km^{-1} 时, 气溶胶引入的 NO_2 质量浓度反演误差与波长指数的关系。(a) 模拟计算法得到的气溶胶消光系数引起的误差 (ΔN_{a-err}) 与近似模型法得到的气溶胶消光系数引起的误差 (ϵ_a) 的对比; (b) 模拟计算法得到的气溶胶引起的总误差 ($\Delta N_{Tot-err}$) 与近似模型法得到的气溶胶引起的总误差 ($\epsilon_a + \epsilon_\beta$) 的对比

Fig. 13 Relationship between aerosol-induced retrieval error of NO_2 mass concentration and Ångström exponent, when atmospheric aerosol is homogeneously distributed and value of extinction coefficient is 0.3 km^{-1} . (a) Comparison of aerosol extinction coefficient-induced errors obtained by simulated calculation method (ΔN_{a-err}) and approximate model method (ϵ_a); (b) comparison of total aerosol-induced error obtained by simulated calculation method ($\Delta N_{Tot-err}$) and approximate model method ($\epsilon_a + \epsilon_\beta$)

消光系数、波长指数等参数,而在实际测量时准确获取这些参数是一个难题。

5.2 大气气溶胶非均匀分布

图 14 所示为在非均匀大气条件下模拟计算和近似模型得到的气溶胶误差,模拟计算的拟合距离为 500 m,大气非均匀分布下气溶胶消光系数的最大值为 0.66 km^{-1} 。前文的模拟计算结果表明,气溶胶后向散射系数引起的误差与波长指数之间成反比关系。为

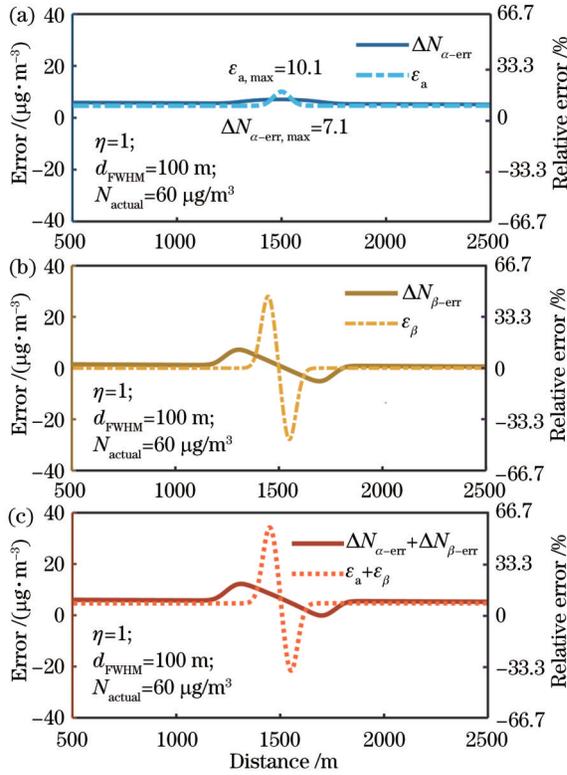


图 14 大气气溶胶非均匀分布时,气溶胶引入的 NO_2 质量浓度反演误差随测量距离的变化。(a) 模拟计算法得到的气溶胶消光系数引起的误差 ($\Delta N_{\alpha\text{-err}}$) 与近似模型法得到的气溶胶消光系数引起的误差 (ϵ_{α}) 的对比; (b) 模拟计算法得到的气溶胶后向散射系数引起的误差 ($\Delta N_{\beta\text{-err}}$) 与近似模型法得到的气溶胶后向散射系数引起的误差 (ϵ_{β}) 的对比; (c) 模拟计算法得到的气溶胶引起的总误差 ($\Delta N_{\alpha\text{-err}} + \Delta N_{\beta\text{-err}}$) 与近似模型法得到的气溶胶引起的总误差 ($\epsilon_{\alpha} + \epsilon_{\beta}$) 的对比

Fig. 14 Aerosol-induced retrieval error of NO_2 mass concentration varies with detecting distance, when atmospheric aerosol is inhomogeneously distributed. (a) Comparison of aerosol extinction coefficient-induced errors obtained by simulated calculation method ($\Delta N_{\alpha\text{-err}}$) and approximate model method (ϵ_{α}); (b) comparison of aerosol backscattering coefficient-induced errors obtained by simulated calculation method ($\Delta N_{\beta\text{-err}}$) and approximate model method (ϵ_{β}); (c) comparison of total aerosol-induced errors obtained by simulated calculation method ($\Delta N_{\alpha\text{-err}} + \Delta N_{\beta\text{-err}}$) and approximate model method ($\epsilon_{\alpha} + \epsilon_{\beta}$)

探讨误差较大情况下的规律,在具体分析时将波长指数设定为 1。从图 14 可以看出,当大气气溶胶非均匀分布时,利用近似模型得到的由气溶胶消光系数引起的 NO_2 质量浓度反演误差和通过模拟计算得到的由气溶胶消光系数引起的 NO_2 质量浓度反演误差近似相等,二者仅相差 $3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 左右。然而,在大气非均匀分布时,利用近似模型得到的由气溶胶后向散射系数引起的 NO_2 质量浓度反演误差远大于通过模拟计算得到的由气溶胶后向散射系数引起的 NO_2 质量浓度反演误差,这主要是因为近似模型求解气溶胶后向散射系数引起的 NO_2 质量浓度反演误差是对距离微分,类似于模拟计算取小段的拟合距离,因此得到的由气溶胶后向散射系数引起的 NO_2 质量浓度反演误差偏大。图 15 展示了拟合距离分别为 100、300、500 m 时的利用模拟计算得到的由气溶胶后向散射系数引起的 NO_2 质量浓度反演误差和利用近似模型得到的 NO_2 质量浓度反演误差对比。可以看到,随着拟合距离的减小,模拟计算方法得到的由气溶胶后向散射系数引起的 NO_2 质量浓度反演误差和近似模型得到的气溶胶后向散射系数引起的 NO_2 质量浓度反演误差也逐渐接近。

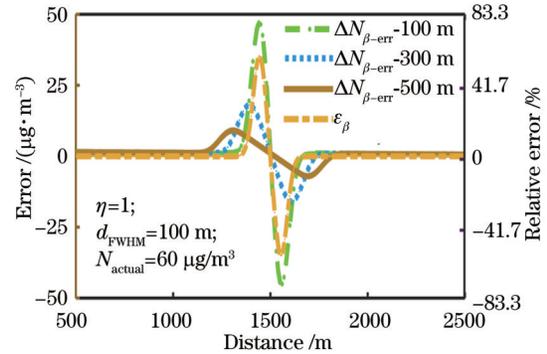


图 15 大气气溶胶非均匀分布时,不同拟合距离下模拟计算法得到的由气溶胶后向散射系数引起的 NO_2 质量浓度误差 ($\Delta N_{\beta\text{-err}}$) 与近似模型法得到的由气溶胶后向散射系数引起的 NO_2 质量浓度误差 (ϵ_{β}) 对比

Fig. 15 Comparison of aerosol backscattering coefficient-induced errors of NO_2 mass concentration obtained by simulated calculation method at different fitting distances ($\Delta N_{\beta\text{-err}}$) and approximate model method (ϵ_{β}), when atmospheric aerosol is inhomogeneously distributed

根据式 (16),近似模型法是通过微分得到气溶胶后向散射系数引起的 NO_2 质量浓度反演误差 ϵ_{β} ,而模拟计算法的气溶胶后向散射系数引起的 NO_2 质量浓度反演误差是通过距离分段拟合获得的。为了进一步对比两种方法的准确度,根据式 (4) 对模拟计算法的比值进行微分,获得气溶胶消光系数和后向散射系数引起的 NO_2 质量浓度反演误差。图 16 为经模拟计算法微分得到的气溶胶引起的 NO_2 质量浓度反演误差和近似模型法得到的气溶胶引起的 NO_2 质量浓度反演误差。

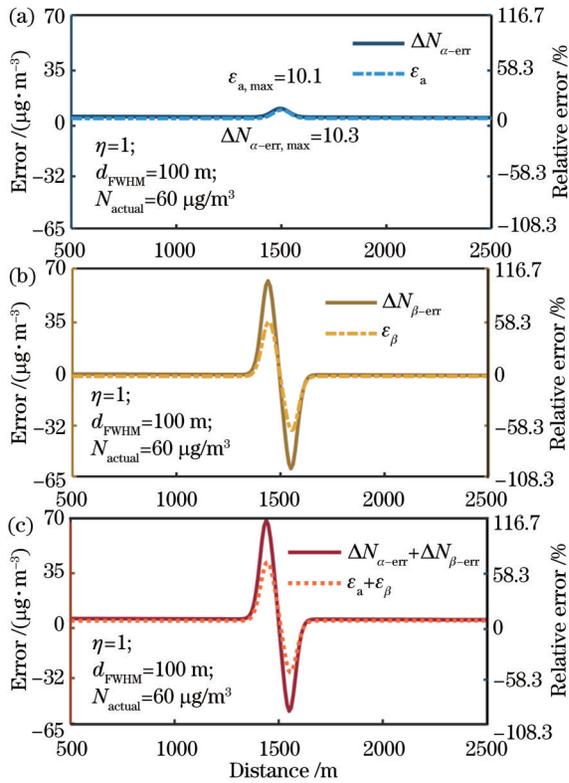


图 16 大气气溶胶非均匀分布时,气溶胶引入的 NO_2 质量浓度反演误差随测量距离的变化。(a) 模拟算法经微分得到的气溶胶消光系数引起的误差 ($\Delta N_{\alpha\text{-err}}$) 与近似模型法得到的气溶胶消光系数引起的误差 (ϵ_a) 的对比; (b) 模拟算法经微分得到的气溶胶后向散射系数引起的误差 ($\Delta N_{\beta\text{-err}}$) 与近似模型法得到的气溶胶后向散射系数引起的误差 (ϵ_β) 的对比; (c) 模拟算法经微分得到的气溶胶引起的总误差 ($\Delta N_{\alpha\text{-err}} + \Delta N_{\beta\text{-err}}$) 与近似模型法得到的气溶胶引起的总误差 ($\epsilon_a + \epsilon_\beta$) 的对比

Fig. 16 Aerosol-induced retrieval error of NO_2 mass concentration varies with detecting distance, when atmospheric aerosol is inhomogeneously distributed. (a) Comparison of aerosol extinction coefficient-induced errors obtained by simulated calculation method of differentiation ($\Delta N_{\alpha\text{-err}}$) and approximate model method (ϵ_a); (b) comparison of aerosol backscattering coefficient-induced errors obtained by simulated calculation method of differentiation ($\Delta N_{\beta\text{-err}}$) and approximate model method (ϵ_β); (c) comparison of total aerosol-induced error obtained by simulated calculation method of differentiation ($\Delta N_{\alpha\text{-err}} + \Delta N_{\beta\text{-err}}$) and approximate model method ($\epsilon_a + \epsilon_\beta$)

从图 16 可以看出,模拟算法经微分得到的气溶胶消光系数引起的 NO_2 质量浓度反演误差十分接近于近似模型得到的气溶胶消光系数引起的 NO_2 质量浓度反演误差,而模拟算法经微分得到的气溶胶后向散射系数引起的 NO_2 质量浓度反演误差要大于近似模型法得到的气溶胶后向散射系数引起的 NO_2 质量浓度反演误差。这样的差别主要是因为近似模型在分析气溶

胶引起的 NO_2 质量浓度反演误差时采用了光谱近似。因此,当大气气溶胶非均匀分布时,用近似模型求解由气溶胶后向散射系数引起的 NO_2 质量浓度反演误差可能并不准确。

图 17 展示了近似模型在分别为 0.5、1、2、3 时得到的气溶胶后向散射系数引起的 NO_2 质量浓度反演误差。由图 17 可知,近似模型得到的气溶胶后向散射系数引起的 NO_2 质量浓度反演误差随着波长指数的增大而减小,这与模拟计算得到的反演误差变化规律一致。

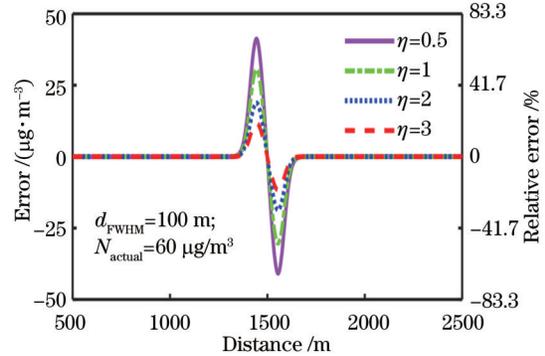


图 17 大气气溶胶非均匀分布时,近似模型法在不同波长指数下得到的气溶胶后向散射系数引起的 NO_2 质量浓度反演误差随测量距离的变化

Fig. 17 Aerosol backscattering coefficient-induced retrieval error of NO_2 mass concentrations obtained by approximate model method varies with detecting distance with different Ångström exponents, when atmospheric aerosol is inhomogeneously distributed

6 结 论

气溶胶消光和后向散射效应的波长依赖性是影响 NO_2 -DIAL 测量结果的重要因素。为了厘清气溶胶消光和后向散射效应引起的 NO_2 质量浓度测量误差,从两种方式(模拟计算和近似模型)入手开展了系统性的研究。

针对宽谱连续波 NO_2 -DIAL 技术的特点,通过仿真不同大气条件下激光雷达信号,以数值计算的方式分析了宽谱 DIAL 气溶胶消光和后向散射效应引起的 NO_2 质量浓度反演误差。研究发现,当大气气溶胶均匀分布、大气气溶胶消光系数为 0.3 km^{-1} 且波长指数为 3 时,气溶胶消光效应引起的误差为 $14.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$,而气溶胶后向散射效应引起的误差仅为 $0.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 。因此,当大气气溶胶均匀分布时, NO_2 质量浓度反演误差主要取决于气溶胶消光系数,后向散射效应产生的 NO_2 质量浓度反演误差占比一般小于 5%,可忽略不计。此外,当气溶胶消光系数不变、波长指数接近 1 时,气溶胶消光效应引起的 NO_2 质量浓度误差将降至 $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 左右。若均匀大气 (0.3 km^{-1}) 中出现气溶胶

团,且非均匀范围内消光系数为 0.66 km^{-1} 和波长指数为 3 时,采用 500 m 拟合距离,非均匀区域的气溶胶消光效应引起误差为 $18.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$,气溶胶后向散射效应引起的误差增至 $3.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 。当波长指数约为 1 时,气溶胶后向散射效应引起的 NO_2 质量浓度反演误差将会增加至 $6.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 。结果表明:气溶胶后向散射效应对 NO_2 质量浓度反演误差的影响在很大程度上取决于大气气溶胶的非均匀分布程度;适当增大分段拟合距离可有效降低气溶胶引起误差,尤其是气溶胶后向散射效应引起的反演误差。综上所述,通过实际的激光雷达信号模拟仿真,模拟计算方法可精确揭示气溶胶消光和后向散射效应引起的 NO_2 质量浓度反演误差。分析结果表明,气溶胶引起的 NO_2 质量浓度反演误差不仅依赖于消光系数和后向散射系数,还依赖于波长指数、拟合距离等。

通过光谱近似得到宽谱 NO_2 -DIAL 气溶胶消光和后向散射效应引起的 NO_2 质量浓度反演误差的近似模型。近似模型与模拟计算的结果表明:两种方式得到的消光效应引起的 NO_2 质量浓度反演误差略有差异,但整体吻合度较高;气溶胶后向散射效应引起的 NO_2 质量浓度反演误差则容易受到计算方式、光谱近似等因素的影响。该模型为实际测量激光雷达信号及气溶胶引起的 NO_2 质量浓度反演误差提供了一种新的分析方法。

参 考 文 献

- [1] Anand J S, Monks P S, Leigh R J. An improved retrieval of tropospheric NO_2 from space over polluted regions using an Earth radiance reference[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2015, 8(3): 1519-1535.
- [2] Ionov D V, Timofeyev Y M, Sinyakov V P, et al. Ground-based validation of EOS-Aura OMI NO_2 vertical column data in the midlatitude mountain ranges of Tien Shan (Kyrgyzstan) and Alps (France) [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2008, 113(D15): D15S08.
- [3] Valks P, Pinardi G, Richter A, et al. Operational total and tropospheric NO_2 column retrieval for GOME-2[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2011, 4(7): 1491-1514.
- [4] Zien A W, Richter A, Hilboll A, et al. Systematic analysis of tropospheric NO_2 long-range transport events detected in GOME-2 satellite data[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2014, 14(14): 7367-7396.
- [5] Wenig M O, Cede A M, Bucsela E J, et al. Validation of OMI tropospheric NO_2 column densities using direct-Sun mode Brewer measurements at NASA Goddard Space Flight Center [J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2008, 113 (D16): D16S45.
- [6] Rothe K W, Brinkmann U, Walther H. Applications of tunable dye lasers to air pollution detection: measurements of atmospheric NO_2 concentrations by differential absorption[J]. *Applied Physics*, 1974, 3(2): 115-119.
- [7] Fredriksson K A, Hertz H M. Evaluation of the DIAL technique for studies on NO_2 using a mobile lidar system[J]. *Applied Optics*, 1984, 23(9): 1403-1411.
- [8] Galle B, Sunesson A, Wendt W. NO_2 -Mapping using laser-radar techniques[J]. *Atmospheric Environment (1967)*, 1988, 22 (3): 569-573.
- [9] Schotland R M. Errors in the lidar measurement of atmospheric gases by differential absorption[J]. *Journal of Applied Meteorology*, 1974, 13(1): 71-77.
- [10] Mei L, Zhao G Y, Svanberg S. Differential absorption lidar system employed for background atomic mercury vertical profiling in South China[J]. *Optics and Lasers in Engineering*, 2014, 55: 128-135.
- [11] Amediek A, Fix A, Wirth M, et al. Development of an OPO system at $1.57 \mu\text{m}$ for integrated path DIAL measurement of atmospheric carbon dioxide[J]. *Applied Physics B*, 2008, 92(2): 295-302.
- [12] Koch G J, Beyon J Y, Gibert F, et al. Side-line tunable laser transmitter for differential absorption lidar measurements of CO_2 : design and application to atmospheric measurements[J]. *Applied Optics*, 2008, 47(7): 944-956.
- [13] Molina L T, Molina M J. Absolute absorption cross sections of ozone in the 185- to 350-nm wavelength range[J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 1986, 91(D13): 14501-14508.
- [14] Kovalev V A, McElroy J L. Differential absorption lidar measurement of vertical ozone profiles in the troposphere that contains aerosol layers with strong backscattering gradients: a simplified version[J]. *Applied Optics*, 1994, 33(36): 8393-8401.
- [15] Cheng Y A, Zhang Z, Kong Z, et al. Evaluation of systematic errors for the continuous-wave NO_2 differential absorption lidar employing a multimode laser diode[J]. *Applied Optics*, 2020, 59 (29): 9087-9097.
- [16] Vandaele A C, Hermans C, Simon P C, et al. Measurements of the NO_2 absorption cross-section from 42000 cm^{-1} to 10000 cm^{-1} (238-1000 nm) at 220 K and 294 K[J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 1998, 59(3/4/5): 171-184.
- [17] Pelon J, Mégie G. Ozone monitoring in the troposphere and lower stratosphere: evaluation and operation of a ground-based lidar station[J]. *Journal of Geophysical Research: Oceans*, 1982, 87(C7): 4947-4955.
- [18] Browell E V, Ismail S, Shipley S T. Ultraviolet DIAL measurements of O_3 profiles in regions of spatially inhomogeneous aerosols[J]. *Applied Optics*, 1985, 24(17): 2827-2836.
- [19] 王志恩, 胡欢陵, 周军. 双差分吸收激光雷达:一种能有效减小气溶胶对臭氧测量影响的方法[J]. *气象学报*, 1996, 54(4): 437-446.
Wang Z E, Hu H L, Zhou J. Dual differential absorption lidar: a new method to reduce effectively the effect of aerosols on ozone measurement[J]. *Acta Meteorologica Sinica*, 1996, 54(4): 437-446.
- [20] 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.
- [21] 谢银海, 曹念文, 杨思鹏, 等. 激光雷达实测气溶胶对臭氧探测的误差分析[J]. *气象水文海洋仪器*, 2022, 39(4): 6-9.
Xie Y H, Cao N W, Yang S P, et al. Error analysis of ozone detection by aerosol measured by lidar[J]. *Meteorological, Hydrological and Marine Instruments*, 2022, 39(4): 6-9.
- [22] Cao N W, Fujii T, Fukuchi T, et al. Estimation of differential absorption lidar measurement error for NO_2 profiling in the lower troposphere[J]. *Optical Engineering*, 2002, 41(1): 218-224.
- [23] Cao N, Fukuchi T, Fujii T, et al. Error analysis for NO_2 DIAL measurement in the troposphere[J]. *Applied Physics B*, 2006, 82 (1): 141-148.
- [24] Liu Q W, Chen Y F, Wang J, et al. Measurement of atmospheric NO_2 profile using three-wavelength dual-differential absorption lidar[J]. *Proceedings of the SPIE*, 2017, 10605: 106053L.
- [25] Mei L, Guan P, Kong Z. Remote sensing of atmospheric NO_2

- by employing the continuous-wave differential absorption lidar technique[J]. *Optics Express*, 2017, 25(20): A953-A962.
- [26] Liu Q W, Chen Y F, Huang J, et al. Correction algorithm of atmospheric NO₂ concentration caused by heavy aerosol load in differential absorption Lidar[C]//Sixth Symposium on Novel Photoelectronic Detection Technology and Application, 2019, Beijing, China: SPIE 11455.
- [27] 王向川, 饶瑞中. 大气气溶胶和云雾粒子的激光雷达比[J]. *中国激光*, 2005, 32(10): 1321-1324.
- Wang X C, Rao R Z. Lidar ratios for atmospheric aerosol and cloud particles[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2005, 32(10): 1321-1324.
- [28] 张朝阳, 苏林, 陈良富. 中国典型地区气溶胶激光雷达比反演与分析[J]. *中国激光*, 2013, 40(5): 0513002.
- Zhang Z Y, Su L, Chen L F. Retrieval and analysis of aerosol lidar ratio at several typical regions in China[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2013, 40(5): 0513002.

Influence of Aerosol Optical Properties on Retrieval Results of NO₂ Mass Concentration in Broadband Differential Absorption Lidar

Cheng Yuan, Yu Jiheng, Gong Zhenfeng, Mei Liang*

School of Optoelectronic Engineering and Instrumentation Science, Dalian University of Technology, Dalian 116024, Liaoning, China

Abstract

Objective Accurate monitoring of nitrogen dioxide (NO₂), a significant atmospheric pollutant, is essential for effective environmental management. Differential absorption lidar (DIAL) technology has emerged as a robust approach to address this challenge. However, the wavelength dependency of aerosol optical properties has a substantial impact on NO₂-DIAL measurements. Previous studies mostly focus on the narrow-band NO₂-DIAL technique without considering the spectral width of the emitted laser pulse. Therefore, the influence of aerosol optical properties on the retrieved NO₂ mass concentration of the broad-band DIAL technique remains unclear. We aim to investigate aerosol-induced NO₂ mass concentration errors under various atmospheric conditions through simulation studies and an approximation method for the broadband NO₂-DIAL technique. We hope that this research can offer valuable insights into comprehending the influence of aerosol optical properties on broadband NO₂-DIAL techniques.

Methods We carry out research based on the broadband NO₂-DIAL technique (Fig. 1) employing the Scheimpflug principle. The broadband NO₂-DIAL system utilizes image sensors as detectors and high-power laser diodes as light sources (wavelength is 450 nm, power is 1.6 W), with an emission spectral typically ranging from 1–2 nm (full width at half maximum). Two different methods (the simulation method and the approximation method) have been adopted to elucidate the influence of atmospheric aerosols on the broadband NO₂-DIAL technique. The broadband DIAL equation has been established, based on which simulated atmospheric lidar signals can be obtained with measured laser spectra and different atmospheric parameters, e. g. , aerosol extinction coefficient, backscattering coefficient and Ångström exponent (Fig. 5). Therefore, the NO₂ mass concentration containing the aerosol-induced retrieval errors can be acquired through segmented fitting for the simulated atmospheric lidar signals (Fig. 6). As a result, the NO₂ mass concentration errors introduced by the aerosol extinction effect and the aerosol backscattering effect under various atmospheric conditions can be obtained through numerical calculation. Besides, the aerosol-induced NO₂ mass concentration errors can also be mathematically derived based on spectral approximation—the approximation method. Meanwhile, cross-validations between the aerosol-induced NO₂ mass concentration errors obtained from these two methods have also been carried out.

Results and Discussions Several conclusions can be drawn according to simulation studies. When the atmospheric condition is homogeneous, for an extinction coefficient of 0.3 km⁻¹ and an Ångström exponent of 3, the aerosol-induced retrieval error of the NO₂ mass concentration is 14.7 μg/m³, while the error introduced by the aerosol backscattering effect is only about 0.6 μg/m³ (Fig. 7). Therefore, when atmospheric aerosols are homogeneously distributed, the inversion error of NO₂ mass concentration mainly depends on the aerosol extinction coefficient. The proportion of the NO₂ mass concentration inversion error generated by the backscattering effect is generally less than 5%, which can be ignored. Besides, if the Ångström exponent approaches 1, the NO₂ mass concentration error introduced by the aerosol extinction effect will decrease to 5 μg/m³ (Fig. 9). If aerosol plumes appear in a homogeneous atmosphere (0.3 km⁻¹), for the extinction coefficient of 0.66 km⁻¹ within the inhomogeneous range and an Ångström exponent of 3, the NO₂ mass concentration error resulted from the aerosol extinction coefficient in the inhomogeneous region is 18.9 μg/m³. However,

the error introduced by the aerosol backscattering effect increases to $3.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ with a fitting distance of 500 m (Fig. 11). Under typical weather conditions with a relatively small Ångström exponent of 1, the NO_2 mass concentration error introduced by the aerosol backscattering effect will increase to $6.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (Fig. 12). The simulation results indicate that the inversion error of aerosol backscattering effect on NO_2 mass concentration largely depends on the non-uniformity of atmospheric aerosol distribution, the fitting range, etc. Meanwhile, increasing the fitting range can greatly reduce the NO_2 mass concentration error introduced by the aerosol, especially for the backscattering effects. Comparison studies between the approximation method and the simulation method reveal that the NO_2 mass concentration retrieval error introduced by the extinction effect is almost the same, while the backscattering coefficient-induced errors may be quite different (Figs. 13 and 14).

Conclusions We evaluate the measurement errors of NO_2 mass concentration caused by aerosol extinction and backscattering effects under various atmospheric conditions by two different methods (the simulation method and the approximation method) for the broadband NO_2 -DIAL technique. In the case of a homogeneous atmosphere, the NO_2 mass concentration error is primarily determined by the aerosol extinction coefficient, while the contribution from aerosol backscattering effects can be neglected. However, if the atmosphere is inhomogeneous, the NO_2 mass concentration error caused by the aerosol backscattering effect is significantly influenced by the inhomogeneous distribution of aerosol. It should be mentioned that the backscattering coefficient-induced NO_2 mass concentration error is inversely proportional to the Ångström exponent in this case. In addition, we also derive an approximation model for NO_2 mass concentration inversion errors caused by the extinction and backscattering coefficients based on spectral approximation. The comparison between the approximation method and the simulation method shows that the NO_2 mass concentration inversion error generated by the extinction coefficients obtained by the two methods are generally in good agreement with small discrepancies. The inversion error caused by the aerosol backscattering coefficient may be affected by factors such as the computation method, the fitting range, and the spectral approximation. The approximation model provides an important tool for evaluating NO_2 mass concentration errors in practical DIAL measurements.

Key words atmospheric optics; broad-band differential absorption lidar; Scheimpflug principle; nitrogen dioxide; aerosol optical properties