

边界层臭氧差分吸收激光雷达

曹开法, 黄 见, 胡顺星

(中国科学院安徽光学精密机械研究所 中国科学院大气成分与光学重点实验室, 安徽 合肥 230031)

摘 要: 差分吸收激光雷达是测量边界层臭氧空间分布的一种重要工具。研制了一台边界层臭氧差分吸收激光雷达系统, 系统采用 Nd:YAG 四倍频激光 266 nm 泵浦 H₂/D₂ 混合气体产生受激拉曼光作为光源, 采用牛顿型望远镜接收大气回波, 288.9 nm 和 299 nm 的弹性散射信号被分成两路, 被光电倍增管转换为电信号, 然后通过 A/D 采集卡采集保存用以反演大气臭氧分布廓线。给出了系统的探测结果以及和臭氧探空仪地对比验证实验。结果显示该激光雷达可以大大降低几何因子的影响, 提供 0.2~2 km 区间的边界层大气臭氧分布廓线。

关键词: 大气光学; 激光雷达; 差分吸收; 臭氧; 受激拉曼散射

中图分类号: P407.2 **文献标志码:** A **文章编号:** 1007-2276(2015)10-2912-06

Boundary layer ozone differential-absorption lidar

Cao Kaifa, Huang Jian, Hu Shunxing

(Key Laboratory of Atmospheric Composition and Optical Radiation, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics,
Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China)

Abstract: Differential absorption lidar is one of important tools for measurement of spatial distribution of ozone in boundary layer. A boundary layer ozone differential absorption lidar system was developed. The stimulated Raman laser in H₂/D₂ mixtures pumped by the frequency quadrupled Nd:YAG laser at 266 nm was adopted in lidar system. A new Newton telescope received the lidar atmospheric echo. The elastic scattering signals at 288.9 nm and 299 nm were divided into two channels and converted to electrical signals by photomultiplier. Finally the signals were collected by A/D acquisition card for inversion of atmospheric ozone distribution profile. Some ozone data results were given and comparison of ozone profiles between ozone lidar and ozonesonde was displayed. Results show that the influence of the geometrical factor is reduced greatly in the lidar system. Atmospheric ozone profiles from 0.2 km to 2 km can be provided reliably by the lidar system.

Key words: atmospheric optics; lidar; differential absorption; ozone; stimulated Raman scattering

收稿日期: 2015-02-21; 修订日期: 2015-09-27

基金项目: 国家自然科学基金(41205020, 41127901)

作者简介: 曹开法(1982-), 男, 副研究员, 博士, 主要从事激光雷达方面的研究。Email: kfcao@aiofm.ac.cn

0 引言

臭氧是地球大气中重要的微量成分之一^[1],虽然它在大气中含量较低,但是在大气化学中起着很重要的作用。另外臭氧吸收太阳紫外辐射而引起的加热作用,还影响着大气的温度结构,对高层大气温度的分布有着十分重要的影响。目前近地层臭氧浓度的形成和变化已成为大气环境研究的一个前沿课题。众多研究表明^[1-2],高浓度的近地层臭氧会给人类健康、动植物生长和生态环境带来严重的危害。臭氧在对流层光化学、大气环境质量和生态环境等方面起着十分重要的作用^[2]。测量研究臭氧浓度垂直分布变化特征对于了解乃至预警光化学烟雾污染有不可替代的作用^[2]。

激光雷达是探测大气的一种有效手段,被广泛应用于大气气溶胶、空气污染物、大气成分、大气气象参数以及云的研究。激光雷达具有实时性好、时空分辨率高、应用领域广、可重复使用等突出优点^[3-4]。因此设计和研究低成本、方便使用的臭氧差分吸收激光雷达具有重要的现实意义。2001年日本研制了一台采用染料激光器的臭氧差分吸收激光雷达^[5],激光雷达发射光源采用 Nd:YAG 激光器泵浦染料激光器方式。Masahisa Nakazato 等^[6]报导了一台基于 CO₂ 受激拉曼光源差分吸收激光雷达用于探测 1~10 km 之间的大气臭氧廓线。中国科学院安徽光学精密机械研究所研制了一系列环境监测激光雷达^[7-8]可以探测大气臭氧,采用 289 nm 和 299 nm 分时测量方式反演大气臭氧廓线。所报导的激光雷达使用的光源都是采用非同轴发射或者分时探测。非同轴发射和分时探测的光束激光雷达几何因子的差别较大,使几何因子区内测量精度和可靠性大大降低。研制了一台基于受激拉曼光的臭氧差分吸收激光雷达,采用了 H₂/D₂ 混合气体产生差分激光光束的方法及消色差扩束设计,使得差分光束能同轴、同发散角发射到大气中,这样有效降低了差分光束几何因子的不一致性,提高了激光雷达几何因子区的测量精度和可靠性。

1 探测原理和反演方法

臭氧差分吸收激光雷达采用差分吸收原理测量臭氧浓度的时空分布。两束激光放射系统向同一光

学路径上同时发射和接收两束波长接近的脉冲激光,其中一束激光的波长 λ_{on} 正处污染气体的吸收线上。另一束激光的波长 λ_{off} 位于污染气体的吸收线的边翼或吸收线之外。由激光雷达方程可导出在高度 z 处待测气体分子的数密度 $N(z)$ ^[8-10]:

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

其中

$$\Delta\sigma = \sigma(\lambda_{\text{on}}) - \sigma(\lambda_{\text{off}}) \quad (2)$$

$$B = \frac{1}{2\Delta\sigma\Delta z} \left[\ln \frac{\beta(\lambda_{\text{on}}, z+\Delta z)\beta(\lambda_{\text{off}}, z)}{\beta(\lambda_{\text{off}}, z+\Delta z)\beta(\lambda_{\text{on}}, z)} \right] \quad (3)$$

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

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

式中: $\Delta\sigma$ 为待测气体分子在波长 λ_{on} 和 λ_{off} 处的吸收截面差; Δz 为高度分辨率; $P(\lambda_{\text{on}}, z)$ 和 $P(\lambda_{\text{off}}, z)$ 为波长 λ_{on} 和 λ_{off} 在高度 z 处的激光雷达回波信号; B 、 E_A 和 E_M 分别为大气后向散射作用项、大气气溶胶消光作用项和大气分子消光作用项,统称为修正项; $\beta(\lambda_{\text{on}}, z)$ 、 $\beta(\lambda_{\text{off}}, z)$ 为高度 z 处波长 λ_{on} 和 λ_{off} 大气总的后项散射系数; $\alpha_A(\lambda_{\text{on}}, z)$ 和 $\alpha_A(\lambda_{\text{off}}, z)$ 为高度 z 处波长 λ_{on} 和 λ_{off} 的大气气溶胶的消光系数; $\alpha_M(\lambda_{\text{on}}, z)$ 、 $\alpha_M(\lambda_{\text{off}}, z)$ 为高度 z 处波长 λ_{on} 和 λ_{off} 的大气气溶胶的消光系数。在每次测量中均采用脉冲累计方式提高信号的信噪比,一般可以选择 5 000 个脉冲做累计平均。首先,为了消除大气抖动、白天强背景噪声的影响,对两组信号均采用了扣除背景噪声和小波去噪处理的方法。其次,略去 B 、 E_A 和 E_M 三项对探测浓度产生的影响,由公式(1)计算获得未经修正的污染气体浓度随高度的分布情况。最后,采用不同的修正方法计算获得 B 、 E_A 和 E_M 三项的值对计算结果进行修正。为了提高臭氧测量精度,科研工作者提出了多种气溶胶项的修正方法^[9-10]。采用了 F. Immler 提出的 Klett-DIAL 方法^[10],该方法在不需要任何其他辅助测量的情况下,直接由从激光雷达双波长回波信号中计算和修正 B 、 E_A 和 E_M 项。

2 激光雷达系统设计

2.1 H₂/D₂ 混合气体受激拉曼光源的设计

对于差分吸收激光雷达测量一种污染气体时,通常需要发射两束不同波长的激光。通常两路激光

束分别在不同的拉曼管中产生并发射到大气中,两路光束几何因子的差异对几何因子重叠区的数据反演产生较大的误差。为了降低几何因子的影响,采用 H_2/D_2 混合气体作为拉曼介质,在同一光路上产生需要的差分波长。在拉曼管之后放置了多波长消色差激光扩束器,消除不同波长的色差。拉曼管中充有氙气和氢气两种活性气体以及氦气作为惰性气体。混合气体的压强为 1.2~3.4 MPa,氙气的压强为 0.8~1.2 MPa,氢气的气压为 0.4~1.2 MPa,氦气的压强为 0~1.0 MPa。表 1 显示了 H_2/D_2 混合气体中各级受激拉曼光的波长^[11]。

表 1 H_2/D_2 混合气体的受激拉曼光的波长分布
(266 nm 激光泵浦)

Tab.1 Wavelengths available of stimulated Raman laser in H_2/D_2 mixtures bumped by 266 nm laser

Hydrogen ($4\ 159\ cm^{-1}$) $Q_m(1)$ vibrational transition	Deuterium ($2\ 986\ cm^{-1}$) $Q_m(0)$ vibrational transition
AS1:239.5 nm	AS1:246.4
Pump laser:266 nm	Pump laser:266 nm
S1:299 nm	S1:288.9 nm
S2:341.6 nm	S2:316.2 nm
S3:397.94 nm	S3:349.39 nm

采用 H_2/D_2 混合气体中的一级受激拉曼光 288.9 nm 和 299 nm 作为臭氧激光雷达的发射波长。由于紫外常用的镜片材料 JGS1 的色散,不同波长的激光经过光学透镜后会产生色差。光学材料的折射率 n 通常采用 Sellmeier 公式:

$$n=1+\frac{B_1\lambda^2}{\lambda^2-C_1}+\frac{B_2\lambda^2}{\lambda^2-C_2}+\frac{B_3\lambda^2}{\lambda^2-C_3} \quad (6)$$

式中: λ 为光的波长; B 和 C 为与材料有关的系数。这些参数决定了光学材料的折射率和色散等参数。如果采用普通的无色差矫正扩束器,经过 Zemax 仿真计算表明,经过扩束后两束激光的发散角分别为 0.35 mrad 和 2.62 mrad (两束激光的传输情况如图 1(a)所示),会导致激光雷达几何因子差别大,甚至也不容易完全接收。为了实现多波长的色差平衡,往往需要选择不同折射率和色散率的透光材料。在

紫外波段,可选的材料很少。除了常用的石英玻璃外,还有紫外玻璃 ZWB 系列和紫外晶体,但是紫外玻璃 ZWB 系列的透过率较低,会引起较大的能量损耗。所以考虑使用 CaF_2 晶体,它在波长为 0.125~0.9 μm 的光波之间具有良好的透光性和较低的折射率,可在紫外、红外光学和不可见光谱范围内的消色差组合镜头中运用。

消色差激光扩束器的基本结构采用伽利略结构。 H_2/D_2 混合气体拉曼管中产生的多波长紫外激光束入射到弯月型 JGS1 负透镜上(采用弯月型的好处是可以减少球差,这样就降低了光束的不均匀性),激光束通过后光束开始发散扩束,然后扩束发散的激光束入射到由 JGS1 和 CaF_2 晶体组成的组合透镜上。多波长受激拉曼光束在组合透镜上被消色差,校正球差和准直光束。受激拉曼光 289 nm 和 299 nm 通过消色差设计后,经过扩束器后的激光光束直径分别为 33.8 mm 和 33.81 mm(如图 1(b)所示),发散角分别为 0.167 mrad 和 0.1675 mrad。这时几何因子的差别大大减少,同时臭氧在过渡区由几何因子导致的探测误差也大大减少。

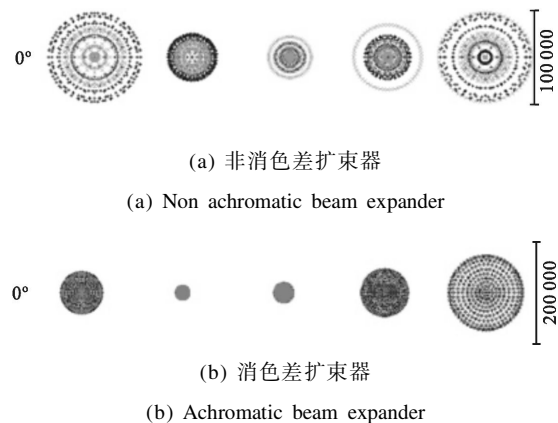


图 1 289 nm 和 299 nm 激光束经过扩束器后光束传输情况
Fig.1 Beam propagations of 289 nm and 299 nm laser after beam expander

2.2 激光雷达系统设计

臭氧差分吸收激光雷达的总体结构示意图如图 2 所示。臭氧差分吸收激光雷达用于探测 0.2~2 km 之间大气臭氧的垂直廓线。系统分为激光发射系统、光学接收和分光系统、光电探测系统以及采集控制系统四个子系统。Nd:YAG 激光器采用美国 Continuum 公司的 Inlite II-20 型激光器,该激光器发

射基频光 1 064 nm, 激光能量为 250 mJ, 脉冲宽度为 5~7 ns, 激光线宽为 1 cm^{-1} 。激光束的发散角小于 0.5 mrad, 激光指向性小于 0.05 mrad。基频激光通过二倍频晶体倍频转换为 532 nm 激光, 再经过四倍频晶体转换为 266 nm 激光。笔者采用角度相位匹配来得到二次谐波。角度相位匹配是利用晶体的双折射来补偿正常色散而达到相位匹配的一种方法, 由于这种匹配对激光入射角度和温度要求比较高, 一般需将晶体固定在高精度的镜架上并放置在温控盒内。266 nm 激光的出光能量约 20 mJ, 266 nm 激光被聚焦透镜聚焦到装有高压混合气体的拉曼管中, 产生拉曼频移光 288.9 nm 和 299 nm 激光, 这两个波长激光经消色差扩束器准直后垂直发射到大气中。发射到大气中的激光与大气气溶胶发生 Mie 散射, 与大气分子发生 Rayleigh 散射, 其后向散射光被接收望远镜所接收。望远镜是直径为 300 mm 的近牛顿式望远镜, 放置在其焦平面处的小孔光阑的作用是限制接收视场角在 0.2~1.7 mrad 之间。望远镜接收后的光经光纤、准直镜后准直成平行光, 经分束片分成两路信号光分别经干涉滤光片后, 通过光电倍增管进行光电转换, 最后由采集卡采集数据保存在计算机中。整个系统在计算机的控制下, 保证激光发射、回波信号接收、数据采集及数据处理的协调和一致性。

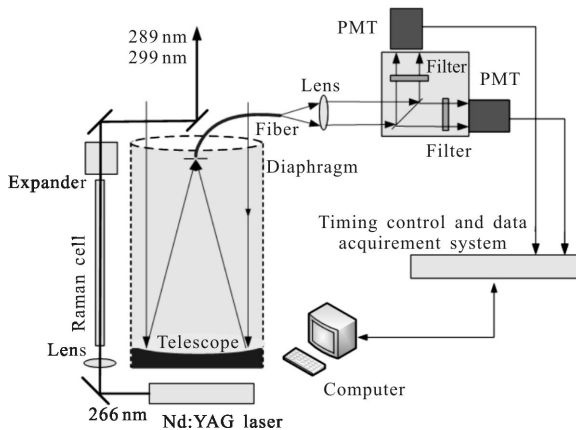


图 2 基于 H_2/D_2 混合气体受激拉曼光的臭氧差分吸收激光雷达系统结果框图

Fig.2 Schematic of ozone differential absorption lidar based on H_2/D_2 mixtures SRS laser

3 测量结果分析及数据对比

激光雷达接收的光信号以光电转换和采集的方

法转换为数字信号存储在计算机中, 称为原始信号。原始信号包含了激光雷达光信号、天空背景光噪声以及各种电子学噪声等。实际上可以把激光雷达接收到的回波信号分成两块: 即激光雷达接收到的后向散射回波信号与这个背景噪声。后向散射回波信号是有用的信号, 用以反演激光雷达测量的物理量; 背景噪声是想要消除或减少的。原始信号处理就是要保留有用的后向散射回波信号, 消除或降低背景噪声。臭氧差分吸收激光雷达系统选取原始信号在 8~15 km 区间内的平均值作为背景信号, 然后在整个测量区间内将此背景值减去, 再采用小波去噪的方法对信号进行预处理。激光雷达的原始信号经过扣除背景和消除噪声后, 就可以通过上述反演算法得到需要的臭氧廓线。

图 3 为 2011 年 12 月 08 日的白天测量结果, 当时天气晴朗。从图中可以看出臭氧浓度逐渐增加, 主要是由于太阳辐射引起的光化学反应占了主导因素。图 4 为 2011 年 04 月 29 日激光雷达测量得到的大气臭氧时空变化图, 当天的天气是晴间多云, 微风。从图中可以清楚地看出臭氧在一天内的变化情况。从 7 点 30 分开始到 15 点之前, 在 0.2~2 km 高度内臭氧的值变化较小, 约为 50 ppb ($1 \text{ ppb} = 10^{-9}$)。15 点 30 分以后臭氧迅速增加到 90 ppb, 一直到 21 点以后臭氧的浓度下降到 70 ppb 左右。可以看出这天臭氧浓度相对较大, 主要是在晴朗、无风的天气条件下, 强辐射条件下生成的臭氧无法扩散, 仅通过与其他气体的化学反应过程慢慢耗散。图 5 为 2011 年 11 月 10 日~11 日激光雷达测量得到的 28 h 连续的大气臭氧时空变化图。从图中可以看出 0 点到 8 点臭氧浓度较低, 同时空间分布有明显的结构特征, 0.3~1.2 km 区间约为 20 ppb, 1.2 km 以上小于 10 ppb。8 点左右是全天低值点, 臭氧浓度为 10 ppb 左右。8 点以后随着太阳辐射逐渐加强, 大气臭氧浓度开始增加, 到 14 点达到全天最大值 60 ppb。同图 4 比较, 太阳辐射在冬天较小, 同在晴天的天气条件下, 臭氧浓度也明显小于 4 月份。14 点以后臭氧逐渐降低, 但是 0.5~0.9 km 之间存在一个臭氧层直到 19 点后才下降, 这有可能是受到上层空间臭氧输入的影响。为了验证臭氧差分吸收激光雷达的数据的可靠性, 2011 年 12 月 08 日 19 点在合肥科学岛进行了一次对比实验。

图6 为臭氧差分吸收激光雷达与臭氧探空仪的臭氧廓线数据对比。可以看出此时臭氧廓线呈高度递增趋势，两者的数值和趋势随高度的变化基本完全一致。最大差别小于 10 ppb, 平均差别小于 5 ppb。激光雷达和气球探空的测量数据不是同一路径上的，两者之间的微小差别是合理的。说明该臭氧差分吸收激光雷达的测量数据具有较好的可靠性。

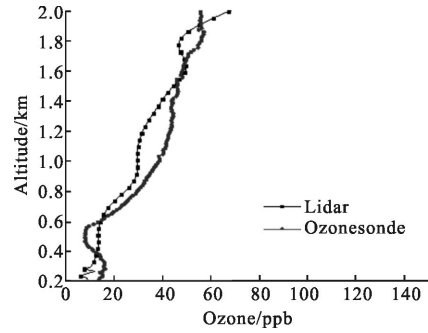


图 6 臭氧激光雷达与臭氧探空仪的臭氧廓线数据对比
Fig.6 Comparison of ozone profiles between ozone lidar and ozonesonde

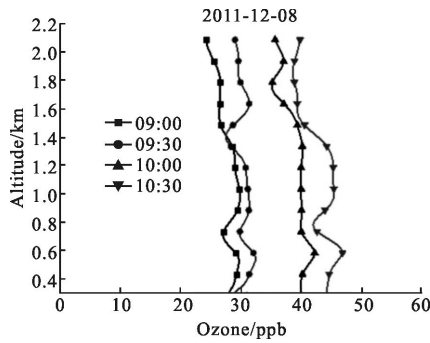


图 3 臭氧差分吸收激光雷达的测量结果

Fig.3 Measurement result of ozone differential absorption lidar

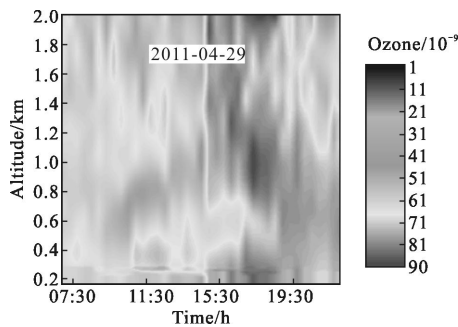


图 4 2011 年 04 月 29 日激光雷达测量得到的大气臭氧时空变化图

Fig.4 Spatial and temporal distribution of atmospheric ozone on April 29, 2011

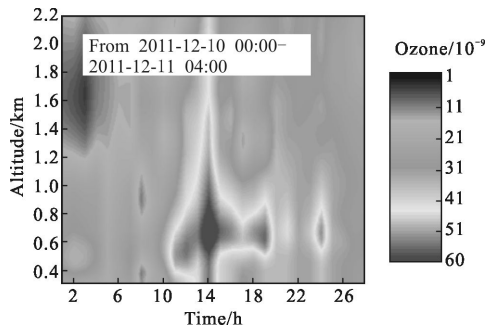


图 5 28 小时连续的大气臭氧时空变化图

Fig.5 28 hours spatial and temporal distribution of atmospheric ozone

4 结论

差分吸收激光雷达测量臭氧受到几何因子结构的影响，导致几何因子区臭氧数据的可靠性和准确性大大降低。采用 H₂/D₂ 混合气体产生受激拉曼光的方法和消色差扩束器的设计，研制了高精度和实时可靠的臭氧监测激光雷达。该激光雷达有效消除了激光雷达几何因子的影响，可以反演 0.2~2 km 之间的臭氧廓线，对于分析边界层臭氧的分布以及时空变换规律十分重要。激光雷达与臭氧探空仪的对比显示：两者之间的数值和趋势随高度的变化基本一致，说明该臭氧差分吸收激光雷达的测量数据具有较好的可靠性。

参考文献：

[1] Li Zou, Lin Weili, Xu Xiaobin, et al. Characteristics of the surface ozone at regional atmospheric background [J]. *Resources and Environment in the Yangtze Basin*, 2015, 24(8): 1412-1417. (in Chinese)
李邹, 林伟立, 徐晓斌, 等. 香格里拉区域大气本底站地面臭氧浓度的变化特征 [J]. *长江流域资源与环境*, 2015, 24(8): 1412-1417.

[2] Xu Hui, Zhang Han, Xing Zhenyu, et al. Pollution characteristics and ozone formation potential of ambient VOCs in winter and spring in Xiamen [J]. *Environmental Science*, 2015, 36(10): 11-17. (in Chinese)
徐慧, 张晗, 邢振雨, 等. 厦门冬春季大气 VOCs 的污染特征及臭氧生成潜势[J]. *环境科学*, 2015, 36(10): 11-17.

[3] Hu Shunxing, Hu Huanling, Wu Yonghua, et al. Analysis of effects of photon overlap on lidar measurement of ozone[J]. *Chinese Journal of Quantum Electronics*, 2002, 19 (6):

- 550–554. (in Chinese)
- 胡顺星, 胡欢陵, 吴永华, 等. 光子并合作用对激光雷达测量臭氧的影响分析[J]. 量子电子学报, 2002, 19(6): 550–554.
- [4] Yang Lujun, Zhang Yinchao, Liu Xiaoqing, et al. Optical properties of aerosol detected by mobile lidar system [J]. *Chinese Journal of Quantum Electronics*, 2004, 21(1): 88–91. (in Chinese)
- 杨陆军, 张寅超, 刘小勤, 等. 车载测污激光雷达测量大气气溶胶光学特性[J]. 量子电子学报, 2004, 21(1): 88–91.
- [5] Nakane H, Hayashida S, Sasano Y, et al. Vertical profiles of temperature and ozone observed during DYANA campaign with NIES ozone lidar system at Tsukuba [J]. *J Geomeg Geoelectra*, 1992, 44(11): 1071–1083.
- [6] Wang Lihua, Melanie B Follette-Cook, Newchurch M J, et al. Evaluation of lightning-induced tropospheric ozone enhancements observed by ozone lidar and simulated by WRF/Chem[J]. *Atmospheric Environment*, 2015, 115: 185–191
- [7] Sullivan J T, McGee T J, Sumnicht G K, et al. A mobile differential absorption lidar to measure sub-hourly fluctuation of tropospheric ozone profiles in the Baltimore-Washington D.C. region[J]. *Atmos Meas Tech*, 2014, 7: 3529–3548.
- [8] Fan Guangqiang, Zhang Tianshu, Fu Yibin, et al. Temporal and spatial distribution characteristics of ozone based on differential absorption lidar [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2014, 41(10): 1014003. (in Chinese)
- 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.
- [9] Edward V Browell, Syed Ismail, Scott T Shipley. Ultraviolet DIAL measurements of O₃ profiles in regions of spatially inhomogeneous aerosols[J]. *Appl Opt*, 1985, 24(17): 2827–2836.
- [10] Immler F. A new algorithm for simultaneous ozone and aerosol retrieval from tropospheric DIAL measurements [J]. *Appl Phys B*, 2003, 76: 593–596.
- [11] Cao Kaifa, Huang Jian, Hu Shunxing. Investigation of stimulated Raman scattering characteristics in D₂, H₂ and D₂/H₂ mixtures[J]. *Acta Optica Sinica*, 2015, 35(3): 0319001. (in Chinese)
- 曹开法, 黄见, 胡顺星. H₂、D₂ 及 H₂/D₂ 混合气体受激拉曼特性研究[J]. 光学学报, 2015, 35(3): 0319001.