车载被动 DOAS 的污染气体柱浓度分布重构方法

胡肇焜^{1,2},李 昂^{1*},谢品华^{1,2,3},吴丰成¹,徐 晋¹,杨 雷^{1,2},黄业园^{1,2}

1. 中国科学院安徽光学精密机械研究所,中国科学院环境光学与技术重点实验室,安徽 合肥 230031

2. 中国科学技术大学科学岛分院, 安徽 合肥 230026

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

摘 要 大气污染的综合防治需要从不同尺度的区域出发,充分研究区域的环境特点,需要对空气质量有 作用的多种因素进行全面系统的分析,获取大气污染物浓度时空分布是了解区域污染特征的重要途径。获 取高空间分辨的大气污染物柱浓度分布情况是掌握区域污染程度的重要前提。由大气扩散模型,排放源周 边的大气污染物的柱浓度服从高斯分布。将车载被动差分光学吸收光谱(DOAS)获取的对流层污染气体垂直 柱浓度空间分布信息结合序贯高斯模拟方法重构了高空间分辨率的区域污染物柱浓度分布及其误差分布。 分别选取工业园区(钢铁企业)、城市区域(北京市怀柔城区、北京市通州城区)等典型区块进行走航观测,获 取观测路径上的 NO₂ 和 HCHO 柱浓度,结合地理信息网格化车载观测数据,利用序贯高斯模拟获取了观测 区域的 NO₂ 和 HCHO 柱浓度分布以及污染物柱浓度误差分布,重点分析了该方法在排放特征不同的区域 柱浓度分布模拟重构的可行性及重构结果的不确定性。某钢铁企业、怀柔城区、通州城区内污染源依次减 少, 气态污染物分布的结构复杂性依次降低。由半方差分析结果, 某钢铁企业由于 NO₂ 排放源多, 污染物柱 浓度空间依赖性略弱,城市区域污染物柱浓度表现出强烈的空间相关性,并且整体呈现出了区域污染源越 复杂, 空间相关性的范围越小的特点。基于立体监测数据获取了观测区域百米空间分辨的污染物垂直柱浓 度分布及误差分布,在不依赖下垫面数据、源清单数据或人口分布数据的基础上基于实测数据低成本地获 取了重点工业区或城市区域气态污染物的分布细节,同已有的卫星遥感等方法获取污染气体垂直柱浓度分 布相比, 空间分辨率提高了 2~3 个数量级, 同时通过柱浓度误差分布定量评估了模拟重构的准确性。针对 不同排放特征的重点区域大气污染状况,提供了新的准确性可评价的实测手段,该方法对了解区域污染状 况、污染控制对策及控制效果的评估具有重要作用。

关键词 大气污染;大气光学;差分吸收光谱;序贯高斯模拟 中图分类号:O433.5 文献标识码:A DOI: 10. 3964/j. issn. 1000-0593(2019)09-2670-07

引 言

大气污染物在生成、传输及转化过程中呈现出复杂的相 互作用,就空气质量整体来看,局地上空的大气污染物也可 以通过扩散及传输的作用影响相邻区域甚至全球的空气质量 以及气候变化^[1-2]。对污染形成机制的研究、污染控制对策 及控制效果的评估,都依赖于对研究区域内大气污染物分布 特征的识别及定量表征^[3]。

目前获取大气污染物浓度分布信息主要依赖于大气数值

模拟^[4-5]、土地利用回归模型^[5-6]、卫星遥测反演^[7-8]、国控站 点数据插值等方式。大气数值模拟需要精确的下垫面、气象 场和污染源等复杂输入;土地利用回归模型驱动要素不易确 定,变量选取缺乏规范;基于监测站点的空间模拟依赖监测 站点数据密度及质量,易放大极端浓度值变化;卫星遥感反 演难以获取任意时间点结果,且空间分辨率较低。由 Platt 等 提出的差分吸收光谱(DOAS)技术^[9]为 SO₂, NO₂ 和 HCHO 等大气痕量气体的提供了一种快速监测方法^[10],其中车载 被动 DOAS 遥测系统由于其结构简单、能够实时机动地提供 走航路径上污染气体对流层柱浓度等优点得到了快速发展,

收稿日期: 2018-01-08,修订日期: 2018-05-25

基金项目:国家重点研发计划项目(2016YFC0208203, 2016YFC0201507, 2017YFC0209902),国家自然科学基金项目(41775029),安徽省 科技重大专项(16030801120)资助

作者简介:胡肇焜,1989年生,中国科学院安徽光学精密机械研究所助理研究员 e-mail: zkhu@aiofm.ac.cn * 通讯联系人 e-mail: angli@aiofm.ac.cn

已经实际运用到了大气环境污染分布监测^[11]、各类污染源 排放监测^[12-13]及重大活动空气质量保障^[14-15]等多个方面,但 采样式的监测无法获取完整的区域污染物浓度分布情况。序 贯高斯模拟可以实现区域污染物浓度分布重构,同时对模拟 结果的准确性进行定量分析。该方法^[16]近年来在土壤、地质 和水文等领域已有广泛应用^[17],在大气领域的应用鲜有报 道。

基于车载被动 DOAS 系统对钢铁企业、北京市怀柔及通 州城区进行了重点区块化的走航观测。开展车载被动 DOAS 系统立体监测同序贯高斯结合模拟重构化工园区及城市区域 大气污染物柱浓度分布的研究,重点分析了该方法在排放特 征不同的区域,基于车载立体监测数据模拟重构的可行性及 结果的不确定性,实现了不同尺度范围的基于外场实测数据 的高空间分辨污染气体浓度分布信息获取。

1 实验部分

1.1 DOAS 原理与车载设备

车载被动 DOAS 系统基于 Lambert-Beer 定律。以太阳 天顶散射光为光源,利用痕量气体对太阳光的特征性指纹吸 收,可同时获取多种气体的整层垂直柱浓度。参考谱 $I_0(\lambda)$ 和测量谱 $I(\lambda)$ 的关系可用式(1)表示

$$\ln\left(\frac{I(\lambda)}{I'_{0}(\lambda)}\right) = -\sum_{j} \sigma'_{j}(\lambda) \operatorname{SCD}_{j}$$
(1)

式(1)中 SCD_{*j*} = $\int c_j(s) ds$ 为斜柱浓度(slant column density,

SCD),通过将差分光学厚度与反演波段内有吸收气体的特征吸收截面进行最小二乘法拟合获得目标气体的对流层斜柱

浓度 SCD。结合大气辐射传输模型,可以将 SCD 转换为污染 气体的垂直柱浓度^[12.14](vertical column density, VCD)。

车载被动 DOAS 系统如图 1 所示,主要由小型光谱仪等 部件组成^[12]。系统采用分辨率约为 0.6 nm 的微型紫外光谱 仪,波长范围为 290~420 nm。

1.2 基于序贯高斯模拟的柱浓度分布重建算法

经典大气扩散模型认为,排放源周边的大气污染物的柱 浓度满足高斯分布模型^[18],运用被动 DOAS 技术获取的污 染物柱浓度数据属于连续性变量。序贯高斯模拟重构方法是 贝叶斯理论的一种拓展应用,是条件模拟方法中应用最为广 泛、理论最为成熟的方法之一,特别适用于对连续性变量的 模拟^[16]。本研究选择序贯高斯方法对观测路径上的柱浓度 进行网格化以及模拟重建,针对不同观测区域分别构造格点 大小为 200 m×200 m的概率空间,在该概率空间中确定一 个依赖任意维随机变量 *x* 的统计量 VCD(*x*),要求柱浓度数 学期望等于所要求的值 VCD, *F*(*x*)为 VCD 的概率密度函 数。对于连续的统计量 VCD(*x*),其变异函数由式(2)确认

$$\gamma(h) = \frac{1}{2N(h)} \sum_{i=1}^{N(h)} \left[\operatorname{VCD}(x_i) - \operatorname{VCD}(x_{i+h}) \right]^2 \qquad (2)$$

其中 N(h)是观测区域内距离 h 内包含的格点的数量, VCD (x_i) 和 VCD (x_{i+h}) 分别是位置 x_i 和 x_{i+h} 处的污染气体柱浓 度。重建结果由反映最小抽样尺度下变量的变异性及测量误 差的块金值 (C_0) 、结构方差(C)、基台值 $(C_0 + C)$ 和变程 $(A_0)等参数来描述。块金系数[C_0/(C_0 + C)]表示空间依赖$ 性,系数小于 0.25,说明其具有强烈的空间相关性;系数大于 0.75,说明其空间相关性很弱^[16]。



图 1 议储衣且小忌图 Fig. 1 Schematic view of experiment setup

对于观测区域内任意的一个格点 x_i,通过网格格点确定 一条随机路径,由变异函数确定搜索椭球,以椭球范围内的 测量值和已模拟值作为邻域约束信息,由格点邻域信息及半 方差分析变异函数获取的均值和方差计算得出该点的概率密 度函数。从已有的概率密度函数中随机选取一个数值,并将 新的模拟值添加到已有的柱浓度概率密度数据集中。使用不 同的随机路径重复这些顺序步骤,序贯地求出 VCD(x)空间 分布的多重实现,最终获取该格点柱浓的概率值。更多次的 模拟以及更合适的车载观测路径,可以获取更精确的结果。 在本研究中,按区域范围内格点数目该过程分别被重复了 500~1 000 次。

1.3 实验区域

为研究工业园区和城市区域污染气体空间分布,选取上

海某钢铁企业、北京市怀柔城区、北京市通州城区为代表性区 域,作为车载被动 DOAS 走航的实验地点,在晴朗无云并且 风场稳定的条件下开展了观测实验。三个观测区域中上海某 钢铁企业区域是典型的工业污染源区域,北京市怀柔城区观 测区域内包含人口密集的核心生活区,京密高速以及企业集 中的雁栖湖经济开发区。北京市通州区观测区域内无明显工 业区,主要为人口集中区域,并存在部分交通拥堵路段。

表 1 观测区域基本概况 Table 1 Basic survey of observation area

项目	观测时间	区域基本情况		
某钢铁企业	2014年11月27日10:00-14:00	区域内包括冶铁高炉、炼钢电炉等装置,同时还包含了露天煤储等区域		
怀柔城区	2014年11月7日9:00-14:00	区域内包括人口集中区以及雁栖经济开发区		
通州城区	2015年8月11日9:00-15:00	区域内主要为人口集中区		

2 结果与讨论

2.1 污染气体柱浓度反演

根据上述车载被动 DOAS 原理,选取正午时刻位于上风向的测量光谱作为参考光谱。NO2选择 338~380 nm 波段反演,HCHO选择 337.3~362 nm 波段反演,以上波段分别涵盖了 NO2及 HCHO 强吸收峰,同时在该波段内其他参与拟

合的截面对目标气体拟合干扰较小。

图 2 为 2014 年 11 月 26 日 13:42:41 的采集的光谱反演 NO₂ 及 HCHO 的过程,图 2(a)中显示的是测量光谱经过 DOAS 方法处理后得到 NO₂ VCD= 6.35×10^{16} molecular · cm⁻²;其中 g 为最终拟合后的剩余结构,剩余结构峰值为 2.28×10⁻³。

2.2 观测数据的预处理

通过车载被动 DOAS 系统,采集天顶散射光,同时结合



图 2 光谱拟合示例 Fig. 2 Example for fitting



(a): 原始获取的观测数据; (b): 等距离平面坐标转化并网格化数据

Fig. 3 Example for griding

(a): Original acquired observation data; (b): Equal distance plane coordinate transformation and grid data

系统的地理位置信息,获取了观测路径上污染物柱浓度分布 信息。实际测量过程中受光强以及车速变化的影响,系统光 谱采集频率会发生改变,为统一测量值的空间分辨率,在获 取走航路径上的柱浓度信息后[图 3(a)],需要将观测路径上 具有经纬度信息的柱浓度数据进行等距离坐标系转换,并通 过 matlab 软件网格化数据[图 3(b)]。 表 2 示意了各区域观测数据格点化后的描述性统计结 果。观测区域 NO₂ 和 HCHO 柱浓度均值反应了区域大气的 污染程度,而最高值的坐标反应了污染源位置。峰度和偏斜 度结果表明各观测区域网格化的观测数据并不严格符合正态 分布,在计算区域半变异函数前,需要对观测数据进行对数 转换^[19]。

表 2 观测区域格点后数据描述性统计结果 Table 2 Descriptive statistical results of observational data

项目	最低值/ (molecular・cm ⁻²)	最高值/ (molecular・cm ⁻²)	均值/ (molecular • cm ⁻²)	标准偏差/ (molecular • cm ⁻²)	变异 系数	峰度	偏斜度
某钢铁企业 NO ₂	1.75×10^{14}	6.35 $\times 10^{16}$	2.58 $\times 10^{16}$	1.03×10^{16}	0.40	0.24	0.17
某钢铁企业 HCHO	1.94×10^{16}	4.3 $\times 10^{16}$	2.93 $\times 10^{16}$	4. 51×10^{15}	0.15	0.16	0.24
怀柔城区 NO ₂	3.04×10^{15}	4.63 $\times 10^{16}$	2.09 $\times 10^{16}$	9.62 $\times 10^{15}$	0.46	-0.73	0.12
怀柔城区 HCHO	$1.25 imes 10^{16}$	3.78 $\times 10^{16}$	2.35 $\times 10^{16}$	5.99 $\times 10^{15}$	0.26	-0.61	0.34
通州城区 NO ₂	1.69×10^{16}	4.23 $\times 10^{16}$	2.57 $\times 10^{16}$	5.37 $ imes$ 10 ¹⁵	0.21	-0.36	0.69
通州城区 HCHO	3. 49×10^{15}	3. 16×10^{16}	1.09×10^{16}	6.08 $\times 10^{15}$	0.59	0.85	1.29

2.3 序贯高斯模拟的可行性分析

半方差分析通过评价区域污染气体空间依赖性,为序贯 高斯模拟提供可行性分析的同时,可以为序贯高斯模拟提供 基础的输入参数。根据污染气体自身的扩散特点,柱浓度应 具有较强的空间相关性。使用交叉验证从球型、指数或高斯 等常用模型中选择拟合残差最小的拟合模型计算各向同性半 变异函数(结果如图 5)。除某钢铁企业由于 NO₂ 排放源多, 污染物柱浓度空间依赖性略弱,块金系数 0.26,为中等空间 相关,其他区域污染气体分布块金系数均小于 0.25,表现出 强烈的空间相关。

变程值表示了在特定观测尺度下,空间相关性的作用范围,代表变量空间自相关变异的使用尺度范围。某钢铁企业、怀柔城区、通州城区内污染源依次减少,气态污染物分布的结构复杂性依次降低。在变异系数接近的前提下,呈现出了区域污染源越复杂,变程数值越小的特点。在 200 m×200 m空间尺度下,各区域内气态污染物分布的变程均在1 km左右。







2.4 污染物柱浓度分布重建结果分析

在 200 m×200 m 的空间分辨率下,根据半方差分析结 果,分别对三个区域的 NO₂ 与 HCHO 柱浓度分布进行了 500 次实现的序贯高斯模拟。某化工园区、怀柔城区及通州 城区的 NO₂ 和 HCHO 模拟结果见图。图 5(a) 为各区域污染 气体柱浓度分布,图 5(b) 为各格点 500 次实现的标准偏差 (Std Dev, Standard Deviation)分布图。





某钢铁企业污染物柱浓度整体偏高,高值区主要集中在 冶铁高炉、烧结和石灰烧焙等区域,由于甲醛是非甲烷可挥 发性有机化合物氧化反应的最主要中间产物,在分布上 HCHO 的 VCD 高值区域较 NO₂ 覆盖了更广的范围。观测路 径覆盖范围内污染物 VCD 的标准偏差处于极低的水平,以 NO₂ 为例,均值在 1.73×10¹⁵ molecular•cm⁻²;距离观测路 径最远的东北及西南角,标准偏差数值较高,NO₂ 的 VCD 标准偏差最高值达到 7.2×10¹⁵ molecular • cm⁻²,所有实现 的标准偏差反应了序贯高斯模拟值的准确程度。

怀柔城区的 NO₂ 的 VCD 高值集中在区域的东部及东南 部,分别为城区人口集中生活区及交通枢纽,主要来自交通 排放;HCHO 的 VCD 高值区域分别为北部的雁栖经济开发 区及东部的人口集中区,开发区内包装印刷和喷涂等企业及 人口集中区内汽车怠速排放的非甲烷可挥发性有机化合物氧 化后二次生成 HCHO, 抬高了部分位置 HCHO 的 VCD。通 州城区范围内无工业区,污染气体主要来自交通排放。该区 域交通繁忙地段 NO₂ 的 VCD 相对较高,城区最繁华的十字 路口位置由于汽车怠速,导致该位置同时存在 HCHO 的 VCD高值。由于污染源单一,气态污染物分布的结构复杂性 低,两城区污染气体 VCD 的标准偏差整体低于某钢铁企业, 怀柔城区及通州城区内 HCHO 的 VCD 的标准偏差均值分别 为 3.4×10¹⁵ 及 2.6×10¹⁵ molecular•cm⁻²。 污染状况的重要前提,通过将车载被动 DOAS 技术与序贯高 斯模拟技术结合,分析了在排放特征不同的区域该方法的可 行性,重点解决了卫星遥测无法实现的高空间分辨的大气污 染物柱浓度分布信息的获取问题,为不同排放特征的重点区 域大气污染状况提供新的准确性可评价的实测手段。但由于 需要在尽量短的时间内完成观测,目前该方法仅可获取小区 域的大气污染物柱浓度分布信息,未来可以组建多车联合观 测,快速实现城市区域或更大区域污染物浓度分布重构,同 时针对未知排放特征的区域诸如"散乱污"企业集中区提供了 新的监测思路。

3 结 论

获取高空间分辨的大气污染物浓度分布信息是了解区域

References

- [1] ZHOU Xiu-ji(周秀骥). Atmospheric Ozone Change in China and Its Influence on Climate and Environment(中国地区大气臭氧变化及其 对气候环境的影响). Beijing: Meteorology Press(北京: 气象出版社), 1996. 4.
- [2] Seinfeld J H, Pandis S N, Pandis S N. Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change. New York: Wiley, 1986. 14.
- [3] Huang J P, Zhou C H, Lee X H, et al. Atmospheric Environment, 2013, 77: 558.
- [4] Woody M C, Wong H W, West J J, et al. Atmospheric Environment 2016, 147: 384.
- [5] Wang M, Sampson P D, Hu J L, et al. Environmental Science & Technology, 2016, 50(10): 5111.
- [6] Anand J S, Monks P S. Atmospheric Chemistry & Physics, 2017, 17(13): 1.
- [7] Lip, Xiao Z M, Chen K, et al. Environmental Science & Technology, 2016, 39: 183.
- [8] Kaskaoutis D G, Nastos P T, Kosmopoulos P G, et al. Atmospheric Research, 2010, 98(1): 28.
- [9] Platt U, Perner D. Journal of Geophysical Research Atmospheres, 1980, 85(NC12): 7453.
- [10] MOU Fu-sheng, LI Ang, XIE Pin-hua, et al(牟福生,李 昂,谢品华,等). Spectroscopy and Spectral Analysis(光谱学与光谱分析), 2017, 37(4): 1042.
- [11] Wu F C, Xie P H, Li A, et al. Atmospheric Chemistry & Physics, 2018, 18: 1535.
- [12] LI Ang, XIE Pin-hua, LIU Wen-qing, et al(李 昂, 谢品华, 刘文清, 等). Acta Optica Sinica(光学学报), 2007, 27(9): 1537.
- [13] DONG Wei, HU Zhao-kun, LI Ang, et al(董 威,胡肇焜,李 昂,等). Chinese Journal of Quantum Electronics(量子电子学报), 2015, 32(5): 627.
- [14] Wu F C, Xie P H, Li A, et al. Atmospheric Measurement Techniques, 2013, 6(9): 2277.
- [15] Li A, Zhang J, Xie P H, et al. Science China Chemistry, 2015, 58(9): 1367.
- [16] Goovaerts P. Geostatistics for Natural Resources Evaluation. New York: Oxford University Press, 1997. 20.
- [17] Delbari M, Afrasiab P, Loiskandl W. Catena, 2009, 79(2): 163.
- [18] Zhang S, Shao M, Li D. Geoderma, 2017, 295: 119.
- [19] Seinfeld J H, Pandis S N. American Geophysical Union, 2006, 68(46): 1595.

Study on Concentration Distribution Reconstruction Method of Pollution Gas Column

- HU Zhao-kun^{1,2}, LI Ang^{1*}, XIE Pin-hua^{1,2,3}, WU Feng-cheng¹, XU Jin¹, YANG Lei^{1,2}, HUANG Ye-yuan^{1,2}
- Key Laboratory of Environment Optics and Technology, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China
- 2. Science Island Branch of Graduate School, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China
- CAS Center for Excellence in Regional Atmospheric Environment, Institute of Urban Environment, Chinese Academy of Sciences, Xiamen 361021, China

Abstract The comprehensive prevention and control of atmospheric pollution need to proceed from different scale areas. It is necessary to fully study the environmental characteristics of the area and conduct a comprehensive and systematic analysis of various factors that have an effect on the air quality. Obtaining the spatio-temporal distribution of atmospheric pollutant concentrations is important for understanding the characteristics of regional pollution way. Getting high spatial resolution of atmospheric pollutant concentration distribution is an important prerequisite for grasping the degree of regional pollution. From the atmospheric diffusion model, the column concentration of atmospheric pollutants around the emission source obeys the Gaussian distribution. In this paper, the spatial distribution of the vertical column concentration of the contaminated gas in the troposphere obtained by the mobile passive differential optical absorption spectroscopy (DOAS) is combined with the sequential Gaussian simulation method to reconstruct the spatial distribution of the pollutant column concentration and its error distribution in high spatial resolution. The typical blocks such as industrial parks (steel companies) and urban areas (Huairou, Beijing and Tongzhou, Beijing) were selected to conduct the navigation and observation to obtain the concentration of NO₂ and HCHO on the observation path respectively. Combined with the geographic information gridded on-board observation Data, the concentration distribution of NO2 and HCHO columns in the observation area and the error distribution of the concentration of pollutant column were obtained by using sequential Gaussian simulation. The feasibility and reconstruction results of the simulation of column concentration distribution in the area with different emission characteristics were analyzed emphatically. The pollution sources in a steel enterprise, Huairou and Tongzhou area decreased in turn, and the structural complexity of distribution of gaseous pollutants decreased in turn. According to the results of semi-variance analysis, due to the large amount of NO2 emission sources, the space dependence of pollutant column concentration is slightly weak in an iron and steel enterprise. The concentration of pollutant column in urban area shows a strong spatial correlation, and it shows as a whole that the more complex pollutant source in the area, the smaller the scope of the spatial correlation. Based on the three-dimensional monitoring data, the spatial distribution of the vertical column concentration and the error distribution of the pollutants in the hundred meters of the observation area were obtained. Based on the measured data and without dependency on the underlying surface data, source inventory data or population distribution data, the distribution of gaseous pollutants in key industrial areas or urban areas is improved by $2 \sim 3$ orders of magnitude compared with the existing methods such as satellite remote sensing to obtain the vertical column concentration distribution of polluting gases. Meanwhile, through the column concentration error distribution, we quantitatively assessed the accuracy of simulation reconstruction. Based on the situation of air pollution in key areas with different emission characteristics, a new measurable measure of accuracy is provided. This method plays an important role in understanding regional pollution status, pollution control strategies and assessment of control effect.

Keywords Air pollution; Atmospheric optics; Differential optical absorption spectroscopy; Sequential Gaussian Simulation

(Received Jan. 8, 2018; accepted May 25, 2018)

* Corresponding author