

文章编号: 1001-4322(2013)03-0553-04

对流层低层臭氧的差分吸收激光雷达测量*

苑克娥, 张世国, 胡顺星, 曹开法, 胡欢陵, 徐之海, 徐慧玲

(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, 合肥 230031)

摘 要: 利用紫外差分吸收(DIAL)激光雷达对北京南郊对流层低层臭氧垂直分布进行了测量,将探测结果与探空气球同时测量的结果进行了对比,取得了较为一致的分布趋势。选择北京南郊地区晴好天气探测的结果进行了统计分析,结果表明:近地面层内随高度增加,臭氧体积混合比逐渐减小;距地面 0.5~1.5 km 内平均臭氧体积混合比具有明显的日变化趋势,最大值出现在午后 14 点左右,相对太阳辐射最强时刻具有明显的滞后性;日平均最大体积混合比低于 4×10^{-8} , 体积混合比起伏小于 $\pm 3.2 \times 10^{-9}$ 。

关键词: 大气臭氧; 紫外差分吸收激光雷达; 低对流层; 日变化; 柱含量

中图分类号: TN958.98 文献标志码: A doi:10.3788/HPLPB20132503.0553

臭氧是地球大气中一种特别值得关注的痕量气体,尽管在大气中的总含量非常少,还不到 10^{-9} ,但对地球辐射总量的收支平衡起着重要的作用^[1-2]。离地面 20~30 km 的平流层的“臭氧层”能吸收太阳中的紫外辐射,将这些波长较短且有致病危险的辐射转换为热能,影响大气的热结构和热平衡;对流层臭氧吸收红外辐射,是一种温室气体,同时对许多大气污染物的转化起重要作用;臭氧含量过高时不仅危害人类的健康,同时对动植物的生长也会产生危害^[3]。近年来平流层的臭氧逐年减少,而对流层的臭氧含量增加的趋势更是引起了人类的广泛关注。各种探测臭氧体积混合比的方法也纷纷应运而生^[4-6],归纳起来主要有地面空气采样分析法、臭氧探空法、卫星被动遥感及激光雷达主动遥感探测法等,后三者可以实现臭氧垂直廓线的探测。但探空气球探测法成本较高,且实时性较差,卫星探测在对流层低层受限于空间分辨率较低的问题,激光雷达技术因其空分辨率高、快速实时、动态范围大等优势^[7]成为探测大气臭氧分布的一种行之有效的有效的手段。本文分析了紫外差分吸收(DIAL)技术探测臭氧垂直分布的基本原理,利用 AML-2 车载激光雷达对北京南郊对流层低层臭氧体积混合比的变化进行了测量分析。

1 DIAL 技术探测对流层低层臭氧廓线的原理

DIAL 技术是根据待测臭氧对不同波长的激光吸收特性的差异,同时向大气中同一光路发射波长相近的两束激光,分别为 λ_{on} 和 λ_{off} , λ_{on} 的激光被臭氧气体强烈吸收,而 λ_{off} 的激光被吸收很少或者没有被吸收。由于所选两束激光波长相近,其他大气成分对这两束光的消光差异一般可以忽略。这样根据两激光束在不同高度上的回波差异就可确定待测臭氧气体的体积混合比值。

波长为 λ_i 的激光入射到大气中,探测器接收到的距离为 z 处的米散射回波信号的表达式为

$$P(\lambda_i, z) = \frac{C\beta(\lambda_i, z)}{z^2} \exp\left\{-2 \int_0^z \alpha(\lambda_i, z) + N(z)\delta(\lambda_i) dz\right\} \quad (\lambda_i = \lambda_{on}, \lambda_{off}) \quad (1)$$

式中: $P(\lambda_i, z)$ 为接收到的高度 z 处大气后向散射回波光功率; C 为激光雷达常数; $\beta(\lambda_i, z)$, $\alpha(\lambda_i, z)$ 分别为除臭氧外的大气总的体后向散射系数和消光系数,主要包括大气分子和气溶胶两项的贡献, $\delta(\lambda_i)$ 为臭氧对波长 λ_i 的吸收截面。

分别代入 λ_{on} 和 λ_{off} 容易推知臭氧数密度满足

$$N(z) = \frac{1}{2\Delta\delta} \frac{d}{dz} \left\{ -\ln \frac{P(\lambda_{on}, z)}{P(\lambda_{off}, z)} \right\} + B - E_r - E_m \quad (2)$$

式中: $\Delta\delta$ 表示 λ_{on} , λ_{off} 对臭氧的吸收截面差; B , E_r , E_m 分别为大气后向散射、气溶胶和分子消光影响的修正项,其表达式分别为

$$B = \frac{1}{2\Delta\delta} \frac{d}{dz} \left\{ \ln \frac{\beta(\lambda_{on}, z)}{\beta(\lambda_{off}, z)} \right\} \quad (3)$$

* 收稿日期:2012-05-29; 修订日期:2012-09-29

基金项目:国家自然科学基金项目(41005015);科技部基础性工作专项重点项目(2007FY110700)

作者简介:苑克娥(1979—),女,副研究员,博士,主要从事激光雷达大气探测和激光大气传输特性研究;keyuan@aiofm.ac.cn。

$$E_r = \frac{1}{\Delta\delta} [\alpha_r(\lambda_{on}, z) - \alpha_r(\lambda_{off}, z)], \quad E_m = \frac{1}{\Delta\delta} [\alpha_m(\lambda_{on}, z) - \alpha_m(\lambda_{off}, z)] \quad (4)$$

式中: α_r 和 α_m 分别为大气气溶胶和大气分子的消光系数。

由中国科学院安徽光学精密机械研究所自行研制的 AML-2 车载测污激光雷达^[8-9]采用 Nd:YAG 四倍频激光泵浦甲烷和氢气,分别获得的一级 Stokes 频移波长 288.38 nm 和 299.05 nm 分别作为臭氧探测 λ_{on} 和 λ_{off} 波长,臭氧对这两个波长的吸收截面分别为 $1.701 \times 10^{-18} \text{ cm}^2$ 和 $4.336 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$,可以实现对流层内臭氧体积混合比的高精度测量。

2 对北京南郊对流层低层臭氧分布的探测

2009 年 11~12 月,在北京南郊进行了为期一个月的实验探测,此次实验站点选择在东经 $116^\circ 28'$,北纬 $39^\circ 48'$ 。经测量初步得到了对流层低层臭氧分布的时间空间变化特征,统计得到了近地面 0.5~1.5 km 高度范围内臭氧体积混合比平度值的日变化,并对结果进行了讨论分析。

2.1 与臭氧探空仪测量结果的对比

首先为了验证 AML-2 车载差分吸收雷达对臭氧垂直分布测量结果的可靠性,我们选择同一时间臭氧探空仪探测的结果进行了对比,图 1 为 2009 年 3 月 31 日和 4 月 1 日两次对比的结果,其中实线代表 DIAL 雷达测量的结果,虚线为臭氧探空仪测量的结果,可以看出二者测量的臭氧无论在数值还是随高度的变化趋势上都具有较好的一致性,这反应了 AML-2 激光雷达测量臭氧垂直分布数据的可靠性。由于雷达与探空气球测量的并不是同一路径上的臭氧分布,两者结果呈现微小差异是合理的。

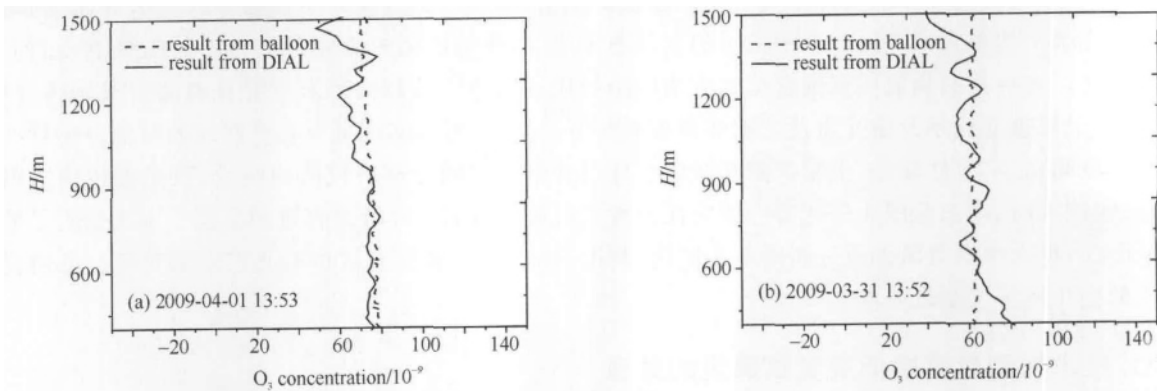


Fig. 1 Comparison of results from ozone radiosonde balloon and AML-2 UV DIAL

图 1 AML-2 激光雷达与臭氧探空仪测量结果的对比

2.2 对流层低层臭氧体积混合比的时空演化结果

选择晴好天气状况进行 AML-2 雷达探测臭氧垂直分布实验探测,信号采集的空间分辨率为 15 m,每组测量累积时间约为 5 min,间隔 30 min 进行下一组测量。图 2 展示了 11 月 14 日和 12 月 1 日两天的实验结果,从空间上来看,近地面臭氧体积混合比低层大于高层,600 m 以上臭氧体积混合比随高度的变化不很明显,基本趋于平稳,大气垂直能见度低导致 12 月 1 日激光雷达的有效探测距离比 11 月 14 日要低。从时间上来看,

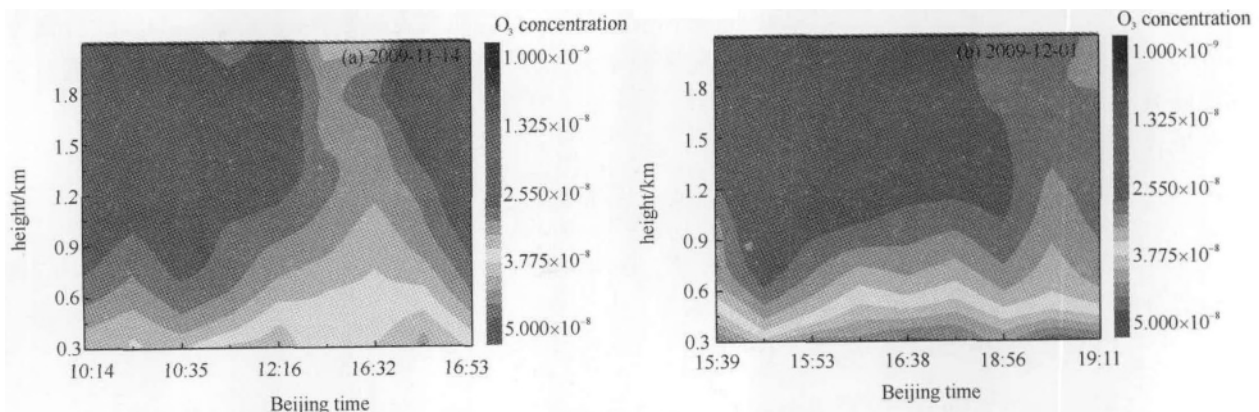


Fig. 2 Spatial and temporal profile change of ozone in low troposphere in southern suburb of Beijing

图 2 近地面臭氧体积混合比时空变化

在每一高度上,臭氧体积混合比在白天随时间先变大后减小,午后达到体积混合比最大值,对比图 2(a),(b)不难发现,在同一时刻、同一高度近地面臭氧体积混合比 11 月 14 日明显小于 12 月 1 日的数值,分析原因在于前者地面温度明显低于后者,地面温度高说明 12 月 1 日太阳辐射较强,大气湍流运动剧烈,光化学反应效率高,而光化学反应的产物正是近地面臭氧的主要来源之一,图 3 给出的是 11 月 14 日和 12 月 1 日两天近地面气温随时间的变化对比结果,白天最高气温分别为 3.4 °C 和 8.3 °C,由图 2 和图 3 还可以看出,一天中臭氧体积混合比的最大值出现在地面温度最高的时刻,相对太阳辐射最强时刻具有明显的滞后性。

2.3 近地面层内臭氧平均体积混合比的日变化趋势

选择晴好天气条件下 15 天的数据(11 月 13~21 日和 12 月 1~6 日共 15 天的数据),统计 0.5~1.5 km 范围内臭氧体积混合比的平均值,低于 0.5 km 的高度受限于雷达几何因子的影响,而高于 1.5 km 的高度受到信噪比的限制。将测量结果按小时进行平均,得到了臭氧体积混合比小时平均值的日变化趋势和起伏方差,结果如图 4 所示,实验数据在 18 至 19 点之间空缺。可以看出白天臭氧体积混合比具有明显的日变化趋势,随时间先是逐渐上升,午后 14 时左右达到最大值,而后随时间逐渐下降,一天中最大值小于 4×10^{-8} ,最大起伏小于 $\pm 3.2 \times 10^{-9}$,根据国家 GB-3095-2012《环境空气质量标准》文件,本次实验统计结果低于近地面臭氧体积混合比小时平均值一级标准限值。图 5 给出了与图 4 相对应的 15 天近地面大气温度的日变化平均值及其起伏方差,对比可以看出,近地面臭氧体积混合比与大气温度具有一致的变化趋势,一天中臭氧体积混合比的最大值出现在地面温度最高值的 14 时左右。

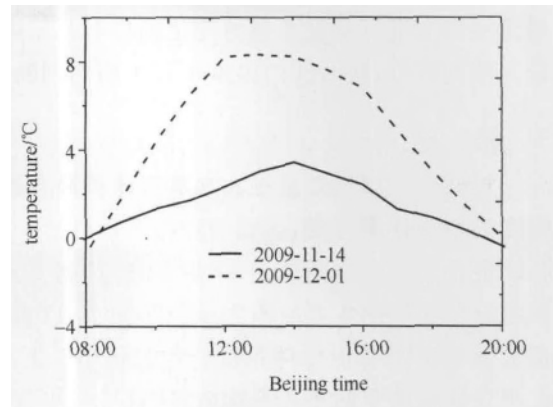


Fig. 3 Atmospheric temperature

daily variation near ground

图 3 地面气温日变化对比

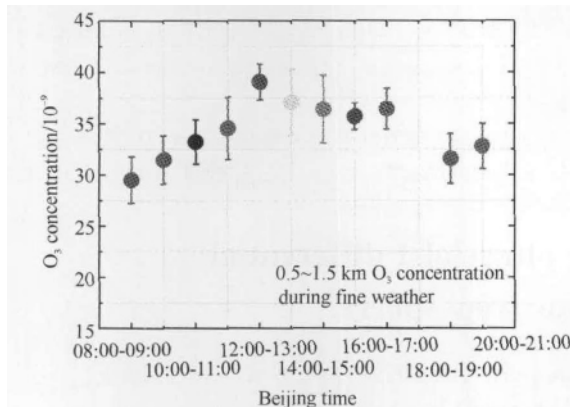


Fig. 4 Diurnal variation of averaged ozone concentration in vertical range of 0.5 to 1.5 km (results of 15 days)

图 4 臭氧体积混合比在 0.5~1.5 km 范围内平均值的日变化(共 15 天的数据)

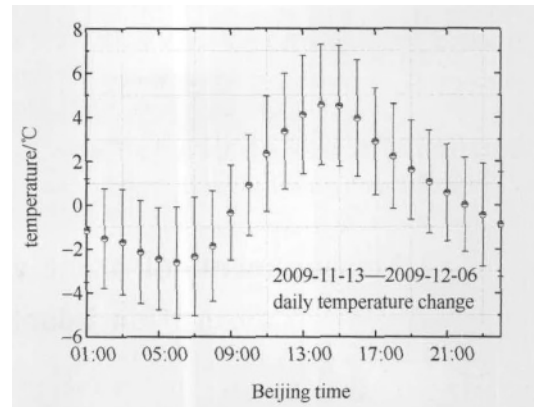


Fig. 5 Diurnal variation of atmospheric temperature during experiment period (results of the same 15 days as in Fig. 4)

图 5 整个实验期间近地面大气温度日变化统计(相应图 4 中 15 天的数据)

表 1 列出的是 0.5~1.5 km 高度范围内臭氧体积混合比柱含量小时平均值及统计方差(表中 1 DU = $2.688 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$),结果显示臭氧在该区域的柱含量满足日变化趋势,最大值出现在午后 14 时左右。统计低

表 1 0.5~1.5 km 高度范围内臭氧体积混合比柱含量小时平均值

Table 1 Hourly average of concentration of ozone column from 0.5 to 1.5 km

Beijing time	O ₃ column concentration (0.5~1.5 km)/DU	standard deviation /DU	Beijing time	O ₃ column concentration (0.5~1.5 km)/DU	standard deviation /DU
09:00—10:00	3.249	0.249	15:00—16:00	4.007	0.362
10:00—11:00	3.465	0.260	16:00—17:00	3.931	0.143
11:00—12:00	3.656	0.237	17:00—18:00	4.011	0.218
12:00—13:00	3.803	0.334	19:00—20:00	3.478	0.267
13:00—14:00	4.299	0.193	20:00—21:00	3.613	0.242
14:00—15:00	4.080	0.350			

对流层内大气臭氧柱含量的变化趋势有利于进一步研究该区域大气臭氧的源与汇,详细的研究需要大量而且较完整的数据,短时间内很难得到正确的判断,这将是今后工作的一个重点内容之一。

3 结 论

对北京南郊低对流层大气臭氧体积混合比垂直分布的激光雷达实验探测表明,空间上臭氧体积混合比随高度的增加逐渐降低,达到一定高度后趋于平稳,时间上臭氧具有明显的日变化趋势,白天随时间的变化,臭氧体积混合比先是逐渐变大,午后 14 时达到一天中最大值,随后随时间逐渐减小,光化学反应效率是导致臭氧体积混合比起伏的主要原因之一。2009 年 11 月至 12 月 0.5~1.5 km 高度内臭氧体积混合比的平均值一天中最大值小于 4×10^{-8} ,体积混合比起伏小于 $\pm 3.2 \times 10^{-9}$,并进一步统计了近地面 0.5~1.5 km 高度内臭氧体积混合比柱含量的小时平均值,这对进一步分析低对流层臭氧的源与汇及环境污染等领域具有重要意义。

参考文献:

- [1] Han Z W, Sakurai T, Ueda T H, et al. MICS-Asia II: Model intercomparison and evaluation of ozone and relevant species[J]. *Atmospheric Environment*, 2008, **42**(15): 3491-3509.
- [2] 王贵勤. 大气臭氧研究[M]. 北京: 科学出版社, 1985. (Wang Guiqin. Study of atmospheric ozone. Beijing: Science Press, 1985)
- [3] 王庚辰. 大气臭氧层和臭氧洞[M]. 北京: 气象出版社, 2003. (Wang Gengchen. Atmospheric ozone layer and ozone hole. Beijing: China Meteorological Press, 2003)
- [4] Munro R, Siddans R, Reburn W J, et al. Direct measurement of tropospheric ozone from space[J]. *Nature*, 1998, **392**: 168-171.
- [5] 王庚辰,孔琴心,陈洪滨,等. 北京上空大气臭氧垂直分布的特征[J]. 地球科学进展, 2004, **15**(16): 743-748. (Wang Gengchen, Kong Qin-xin, Chen Hongbin, et al. Characteristics of ozone vertical distribution in the atmospheric over Beijing. *Advances in Earth Science*, 2004, **15**(16): 743-748)
- [6] Sophie G, Allen I, David P, et al. Ozone differential absorption lidar algorithm intercomparison[J]. *Appl Opt*, 1999, **38**(20): 6225-6236.
- [7] Zhou Jun, Yu Guming, Jin Chuanjia, et al. Lidar observations of Asian dust over Hefei, China, in spring 2000[J]. *J Geophys Res*, 2002, **107**(D15): AAC5.
- [8] 屈凯峰,张寅超,陶宗明,等. 车载测污激光雷达探测近地面层臭氧[J]. 量子电子学报, 2006, **23**(3): 365-368. (Qu Kaifeng, Zhang Yinchao, Tao Zongming, et al. Measurement of surface ozone with mobile lidar system. *Chinese Journal of Quantum Electronics*, 2006, **23**(3): 365-368)
- [9] 胡顺星,胡欢陵,张寅超,等. 差分吸收激光雷达测量环境 SO₂[J]. 中国激光, 2004, **31**(9): 1121-1126. (Hu Shunxing, Hu Huanling, Zhang Yinchao, et al. Differential absorption lidar for environmental SO₂ measurements. *Chinese Journal of Lasers*, 2004, **31**(9): 1121-1126)

Measurements of ozone using ultraviolet differential absorption lidar in low troposphere

Yuan Ke'e, Zhang Shiguo, Hu Shunxing, Cao Kaifa, Hu Huanling, Xu Zhihai, Xu Huiling
(Key Laboratory of Atmospheric Composition and Optical Radiation, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China)

Abstract: Ultraviolet differential absorption lidar (UV DIAL) is a powerful instrument for measuring O₃ vertical distribution in the troposphere. Using self-manufactured AML-2, O₃ concentration distribution in the low troposphere in southern suburb of Beijing was surveyed in November, 2009. Partial results were compared with those from a radiosonde balloon, and they show the same distribution trend. Experiment data during fine weather were selected and analyzed in detail. The results indicate that, O₃ concentration decreases while the height increases in the low troposphere; the average O₃ concentration has obvious diurnal variations from ground level 500 meters to 1.5 kilometers; the maximum appears at about 2 p. m. and is less than 4×10^{-8} with a maximum variance of 3.2×10^{-9} .

Key words: atmospheric ozone; ultraviolet differential absorption lidar; low troposphere; diurnal variation; column concentration