

DOI: 10.3969/j.issn.1673-6141.2009.05.004

奥运期间北京对流层 NO₂ 柱浓度地基多轴差分吸收光谱仪观测与 OMI 的对比

徐 晋, 谢品华, 司福祺, 李 昂, 窦 科, 刘 宇, 秦 敏, 王曼华,
章 勇, 石 鹏, 刘文清

(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)

摘 要: 利用地基多轴差分吸收光谱仪 (multi axis differential optical absorption spectroscopy, MAX-DOAS) 在 2008 年北京奥运期间对奥运场馆附近上空对流层 NO₂ 进行监测, 并与 OMI 的测量结果进行对比。结果显示: 地基 MAX-DOAS 的 NO₂ 结果比 OMI 结果高, 最高达到了 2.4 倍; 二者在无云条件下得到了比较好的相关性 ($R=0.64$), 但在阴雨天气条件下, 云的存在使得 MAX-DOAS 结果与 OMI 卫星数据产生了很大差别, 其相关系数仅为 0.19, 但与 LP-DOAS 却有很好的 consistency, 相关系数为 0.92。

关键词: 北京奥运; 多轴差分吸收光谱仪; 垂直柱浓度

中图分类号: O433.4 文献标识码: A 文献编号: 1673-6141(2009)05-0347-09

Comparison of OMI and Ground-Based MAX-DOAS Measurements of Tropospheric Nitrogen Dioxide in Beijing During the Olympic Games

XU Jin, XIE Pin-hua, SI Fu-qi, LI Ang, DOU Ke, LIU Yu, QIN Min, WANG Man-hua,
ZHANG Yong, SHI Peng, LIU Wen-qing

(Key Laboratory of Environment Optics and Technology, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics,
Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China)

Abstract: The tropospheric nitrogen dioxide over the Olympic venues in Beijing was measured by ground-based multi axis differential optical absorption spectroscopy (MAX-DOAS) during the Olympic Games in 2008, and was compared with the result of OMI. It showed that the result of MAX-DOAS was higher than that of OMI, the maximum is 2.4 times the result of OMI; both instruments had good accordance ($R=0.64$) when it's clear, and when it was rainy or cloudy there was more different between the results of both instruments for the

收稿日期: 2009-06-15; 修改日期: 2009-08-31

基金项目: 国家自然科学基金 (40805015)、中国科学院知识创新工程重大项目 (kzcx1-yw-06-01)、国家高技术研究发展计划 (2006AA06A303) 资助项目

E-mail: phxie@aiofm.ac.cn

existing of cloud, with a correlation coefficient of 0.19, but the result of MAX-DOAS had better accordance with LP-DOAS, with a correlation coefficient of 0.92.

Key words: Beijing Olympic Games; MAX-DOAS; vertical column density

1 引言

随着全球工业化速度的加快和人口的增多, 大气环境问题日渐突出。NO₂ 是一种棕褐色、有刺激性气味并且具有很强腐蚀作用的气体, 在空气中浓度很低, 属于一种痕量气体。NO₂ 含量虽然很低, 但却在大气的光化学过程中起着重要的作用, 消耗平流层的臭氧, 对环境和人类生活有着非常重要的影响, 测量大气中 NO₂ 的浓度对于控制城市中的大气污染有着极其重要的意义。

当前测量 NO₂ 的方法很多, 包括化学发光点式测量法和分光光度法等, 与点式测量法相比, 空基遥感测量和地基遥感测量能够提供更大尺度的对流层 NO₂ 测量结果。但由于测量方法及观测方式的不同, 其测量结果存在一定的偏差, 从而使得各种测量方法之间的相互对比校验变得非常重要。由于地基测量的高分辨率和灵活性, 地基测量经常用于空基测量结果的校验, 为空基测量提供数据支持。国外研究机构最先进行了相关对比研究。Louisa 等人在英国莱斯特地区对 OMI 数据进行了研究, 将其与安装在莱斯特大学楼顶的一台地基 MAX-DOAS 结果和分布在市区及郊区的 9 个化学发光点式测量结果进行了对比^[1]。Petritoli 等人在意大利波河盆地进行了对 GOME 测量的对流层 NO₂ 的研究, 包括跟波河流域的点式站点的对比和一个安装在奇莫内山顶上的天顶 DOAS 仪器的对比^[2]。在特定的气候环境条件下, GOME 测量的 NO₂ 柱浓度和那些近地面的测量结果在高污染地区显示出较好的相关性。Ordóñez 等人在伦巴第地区也进行了类似研究^[3], 他将 GOME 测量的柱浓度跟 99 个地面站点的结果进行了对比, 得到 GOME 和地基测量的柱浓度一致性很好, 在污染较轻区域的相关系数为 $R=0.78$ 。为了

跟 GOME 测量的 NO₂ 柱浓度进行对比, Schaub 等人测量了苏格兰不同海拔的几个点式测量站的对流层柱浓度。在晴朗天气, 对比显示了很好的一致性, 相关系数为 $R=0.7$ 。这项研究也论证了 GOME 柱浓度比同等条件下的地基柱浓度要低的事实。

本文给出了在北京奥运会期间地基 MAX-DOAS 在奥运场馆附近测量的对流层 NO₂ 柱浓度和 OMI 测量结果的对比。这里将从 2008 年 6 月份到 2008 年 9 月份 OMI 获取的 NO₂ 柱浓度和从安装在奥运场馆附近 (N40°, E116°22'48") 的同步地基 MAX-DOAS 设备获取的 NO₂ 浓度进行了对比。对比结果显示, 二者在无云条件下具有比较好的一致性, 相关系数为 $R=0.64$; 在阴雨天气条件下, 将地基 MAX-DOAS 分别跟 OMI 数据和安装在同一站点的长光程 DOAS(LP-DOAS) 进行了对比, 通过对比发现, 云层的存在使得遥感测量产生了很大的误差, 其相关系数仅为 0.19, 而作为地基测量的 MAX-DOAS 和 LP-DOAS 则具有较好的一致性, 可见地基 MAX-DOAS 在阴雨天气情况下能够提供比 OMI 卫星数据更为准确的近地面 NO₂ 测量结果。

2 基本原理

被动 DOAS 技术是以太阳散射光作为光源, 利用气体分子对光辐射的特征吸收对气体进行定性、定量测量的一种光谱探测技术。光经过气体吸收和散射衰减后的光强和原始光强的定量关系可由 Lambert-Beer 定律给出

$$\ln \left[\frac{I(\lambda)}{I_0(\lambda)} \right] = -\sigma(\lambda) \int_0^L c(s) ds. \quad (1)$$

其中, $I(\lambda)$ 为探测到的经过大气吸收和散射后的太阳光谱强度, $I_0(\lambda)$ 为太阳参考光谱 (通常取正

午时刻天顶观测方向的测量谱为参考光谱), $\sigma(\lambda)$ 是气体在波长 λ 处的吸收截面, L 是入射光穿过大气的路径长度, $c(s)$ 是气体浓度。

由于大气中存在多种气体的吸收、瑞利散射和米散射, 如果定义 j 气体的柱浓度为 $S_j = \int c(s)ds$, 则方程 (1) 可写为

$$\ln \left[\frac{I(\lambda)}{I_0(\lambda)} \right] = - \sum_j \sigma(\lambda) S_j - \sigma_{\text{Ray}}(\lambda) S_{\text{Ray}} - \sigma_{\text{Mie}}(\lambda) S_{\text{Mie}}, \quad (2)$$

式中, σ_j 表示气体 j 的吸收截面。

由于瑞利散射、米散射引起的光强衰减随波长为“慢变化”, 因此, 将测量到的光谱作高通数字滤波, 即可除去光谱中的慢变化 (如瑞利散射和米散射), 再经过低通滤波, 可减少高频噪声的影响, 最终得到差分光学厚度 $\tau(\lambda)$

$$\tau(\lambda) = \ln \frac{I(\lambda)}{I_0(\lambda)} = - \sum_j \sigma_j(\lambda) S_j. \quad (3)$$

最后将标准拟合参考光谱 (实验室精确测定的气体的标准光谱) 与处理后得到的差分吸收光谱进行最小二乘拟合, 可同时获得多种气体的斜柱浓度 S_j 。

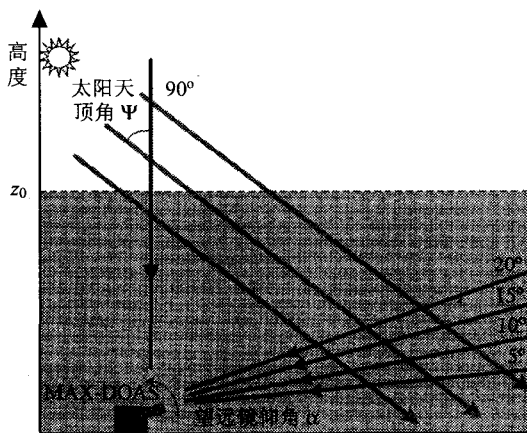


图 1 地基 MAX-DOAS 测量原理

Fig.1 Schematic of ground-based MAX-DOAS principle

地基 MAX-DOAS 在测量时, 每一个循环测量 5 个角度 (5°, 10°, 15°, 20°, 90°) 路径的大气谱,

如图 1 所示, 灰色箭头表示入射太阳光在大气中的传输路径, 黑色箭头表示 MAX-DOAS 在各个角度接收到的经大气吸收散射后的太阳光的传输路径。在进行数据处理时, 选取当圈 90° 方向的测量谱作为参考光谱, 利用 DOAS 方法将所有角度的测量光谱进行拟合, 就得到了对流层 NO₂ 的差分斜柱浓度 ΔSCD , 它仅仅反映对流层 NO₂ 浓度的变化情况。

利用辐射传输模型 SCIATRAN, 计算出了不同角度的大气质量因子 AMF 值, 由公式 [4]

$$VCD = \Delta SCD / \Delta AMF \quad (4)$$

就可计算得到 NO₂ 的垂直柱浓度分布。

3 实验装置

地基 MAX-DOAS 通过改变望远镜指向 (即仰角 α) 可以接收来自不同方向的光线, 这样就可以得出吸收气体的空间分布信息。图 2 为地基 MAX-DOAS 的结构原理图。经过大气吸收散射后的太阳光通过 MAX-DOAS 的接收反射镜进入望远镜, 然后经光纤传送到光谱仪中, 最后被 CCD 接收得到光谱信号。

系统采用光谱仪作为探测器, 光谱范围 290~400 nm, 光谱分辨率 0.5 nm, 同时为保证光谱采集系统工作稳定, 防止由于温度变化造成的光谱漂移给反演带来的误差, 系统采用温度控制系统保证光谱仪工作温度恒定。

4 结果分析

4.1 来自 OMI 的对流层 NO₂ 测量结果

为了对比的同步性, 本文中考虑了在地基 MAX-DOAS 测量期间 (6 月 12 日至 9 月 11 日) 以 (N40°, E116°22'48") 为中心的 OMI 像素中的 NO₂ 数据。图 3 给出了 6 月至 9 月的 OMI 获得的 NO₂ 垂直柱浓度 (VCD) 月均值分布图, 从图中可以看出, 6 月份 NO₂ 的浓度比较高, NO₂ 垂直

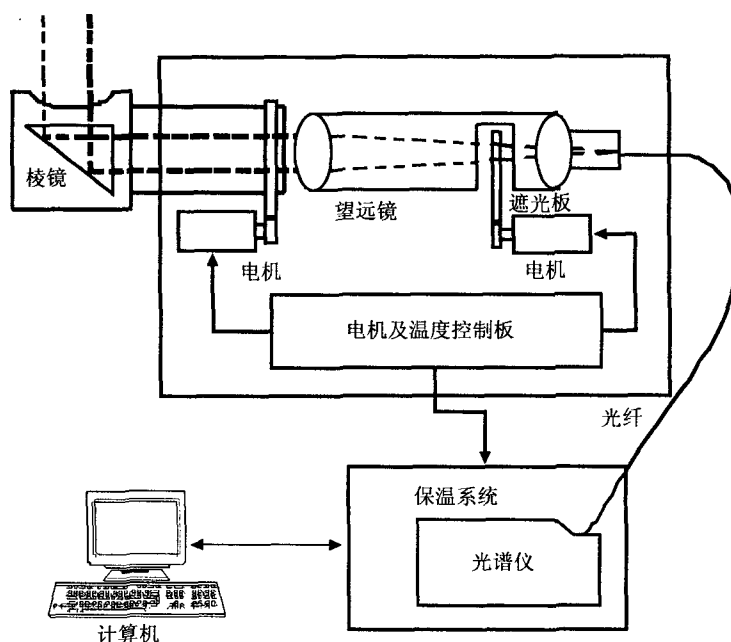
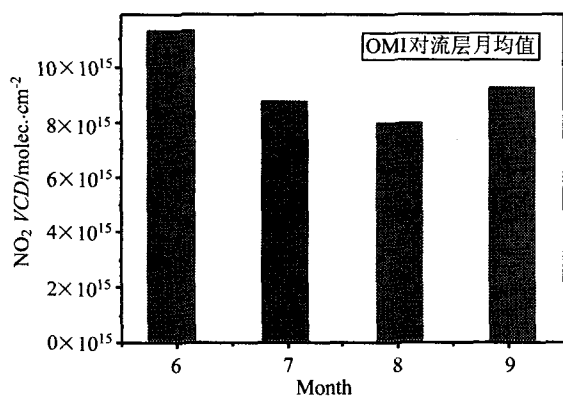


图2 地基 MAX-DOAS 结构原理图

Fig.2 Schematic diagram of ground-based MAX-DOAS

柱浓度约为 1.1×10^{16} molec./ cm^2 ; 而在 6 月底为了保障奥运会期间的空气质量, 北京市政府对部分大型工业企业实施了减排停产等措施, 从 7 月份开始 NO_2 浓度降低, 约为 8.5×10^{15} molec./ cm^2 , 比 6 月份降低了 23%; 而从 7 月 20 日开始北京市政府采取了交通单双号限行的限车措施, 使得 8 月份北京市 NO_2 含量继续降低, 约为 7.8×10^{15} molec./ cm^2 ; 而在 9 月份, NO_2 浓度又开始升高,

图3 OMI 测量的对流层 NO_2 月均值Fig.3 Monthly average of NO_2 from OMI

月平均值约为 9×10^{15} molec./ cm^2 , 比 8 月份奥运期间升高了大约 15%。

4.2 来自地基 MAX-DOAS 的 NO_2 结果

为了服务于 2008 北京奥运大气监测, 从 6 月 12 日开始, 利用安装在北京市区及郊区的 9 台地基 MAX-DOAS 对北京市区及郊区上空对流层大气进行了为期 3 个月的连续监测。如图 4 所示为安装在奥运场馆附近的一台地基 MAX-DOAS 对流层 NO_2 的测量结果, 为了跟卫星对比, 仅考虑 OMI 卫星过顶期间的 12:00~14:00 期间 NO_2 浓度的平均值。

4.3 地基 MAX-DOAS 测量结果跟 OMI 的结果对比

4.3.1 不同空间分辨率的对比

星载监测设备由于其大区域、多覆盖的优点, 可以获得常规监测手段无法获得的重要参数, 观测大气中痕量气体的长期变化趋势, 同时也可以实现对污染热点区域, 特别是对一些重工业区域污染的监测。但是, 空基测量的往往受其空间分

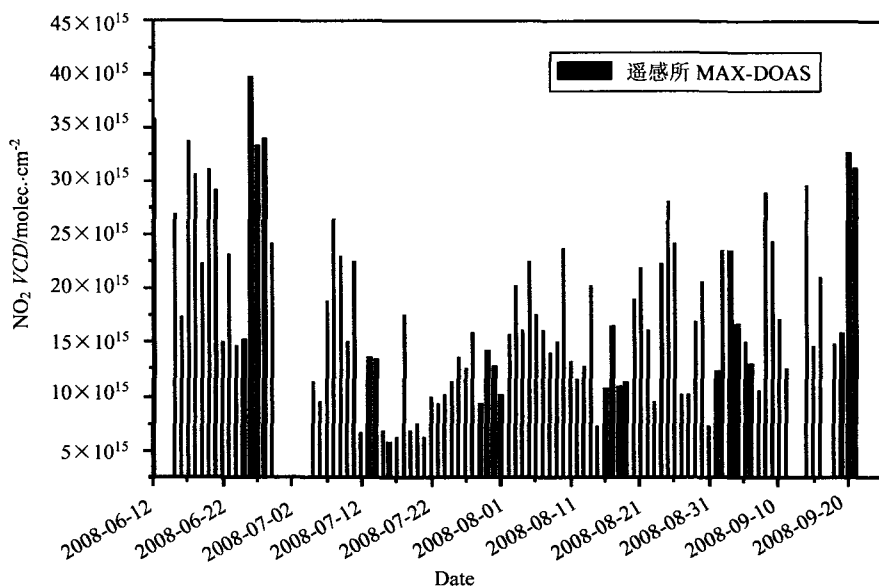


图 4 安装在奥运场馆附近的地基 MAX-DOAS 测量结果

Fig.4 Result of ground-based MAX-DOAS near the Olympic stadium and gymnasium

分辨率的限制。OMI 设备绕地飞行速度约为 7 km/s, 最大观测视场角约为 114°, 在全球观测模式下其视场达到 13×2600 km²; 而在天底观测位置, 其视场最小也为 13×24 km²[5]。而我们安装在奥运场馆附近的地基 MAX-DOAS 设备, 其观测视场跟卫星像素相比非常小, 其测量结果仅反映奥运场馆区域的污染情况。跟 OMI 设备相比, 地基 MAX-DOAS 具有更高的空间分辨率, 能够更精确地给出监测地区的污染分布情况。

图 5(a) 给出了从 6 月 10 日到 9 月 14 日期间安装在奥运场馆附近的一台地基 MAX-DOAS 测量结果与 OMI 提供的对流层 NO₂ 结果之间的对比情况。从图中可以看出, 地基 MAX-DOAS 的测量结果要比 OMI 结果高, 最高高约 2.4 倍, 这主要是由于二者不同的空间分辨率造成的: 地基 MAX-DOAS 的测量区域相对较小, 而 OMI 的空间分辨率为 13×24 km²(即 312 km²), OMI 给出的对流层 NO₂ 结果是较大区域上空平均的结果, 不仅覆盖了浓度较高的市区贡献, 还包括了浓度较低的郊区上空对流层贡献 [1], 从而使得 OMI 结果要比地基 MAX-DOAS 结果偏低。因此, 选取处于同

一个 OMI 像素中的遥感所 (N40°, E116°22'48'')、首钢 (N39°54', E116°10'12'') 和云岗镇 (N39°9'54'', E39°47'24'') 三个站点测量的平均值与 OMI 结果进行对比, 如图 5(b) 所示。可以看出, 经过三站点平均以后的 NO₂ 结果与 OMI 结果更为接近, 但由于站点数量较少且遥感所和首钢两个站点位于污染区, 其测量结果月均值仍然比 OMI 结果高约 1.5~1.8 倍, 如表 1。

将整个监测时段 OMI 和地基 MAX-DOAS 测量结果的月均值进行对比, 如表 1 所示, 从结果可以看出, 奥运场馆地基 MAX-DOAS 测量结果要比 OMI 结果高得多, 最高达到 OMI 结果的 2.4 倍, 最低也有 1.45 倍; 而经过三个站点平均以后, 其 8、9 月份的结果与 OMI 更为接近了。

4.3.2 不同天气条件下的对比

云对遥感测量有很大影响, 因此在多云、阴雨天气情况下, 遥感测量方法往往会产生很大的偏差。搭载于 NASA 卫星上的 OMI 设备在对近地面大气进行监测时, 云的存在会降低近地面边界层 NO₂ 的吸收信号, 从而降低了 OMI 设备对地面测量的灵敏度; 而且, 云层具有很高的反射率,

这也提高了仪器对云层以上气体的灵敏度^[1]。

虽然 OMI 提供了修正云层结构的方法—转动拉曼散射法和氧二聚体法,但它们都只是模型

计算的结果,无法准确去除云层结构的影响。对于地基 MAX-DOAS 设备,它的测量同样受到云层的干扰,但由于其测量位置在地面,在有云存在

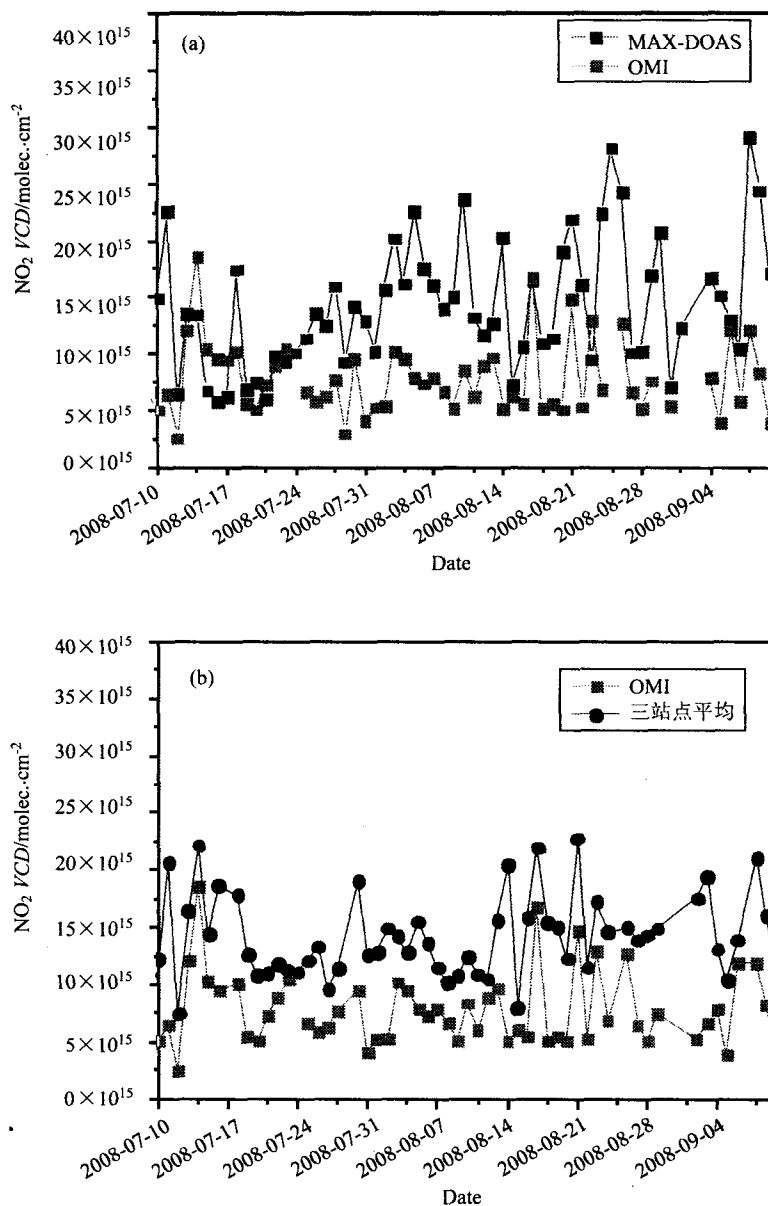


图 5 MAX-DOAS 结果与 OMI 结果的对比 (a) 奥运场馆附近一台 MAX-DOAS 结果与 OMI 结果的对比, (b) 处于 OMI 同一个像素中的三个站点 (遥感所站点、首钢站点和云岗镇站点)NO₂ 的均值与 OMI 结果的对比

Fig.5 Comparison between the results of OMI and MAX-DOAS,(a) is the result of comparison between OMI and MAX-DOAS near the Olympic venues,(b) is comparison between OMI and the average of three sites, Insitute of Remote Sensing Applications, Shougang and Yungang Town, which are in the same pixel of OMI

的情况下仍然能够测量到近地面边界层的 NO₂ 分布。二者相比, 在阴雨天的情况下, 卫星数据受影响最大的是云层下面的近地面边界层信号, 而

地基 MAX-DOAS 损失的则是云层上方的信号, 而对流层 NO₂ 主要集中在近地面边界层, 从而会导致在云层存在的情况下 OMI 测量结果通常要

表 1 OMI 测量的 NO₂ 月均值与地基 MAX-DOAS 的对比

Table 1 Comparison of monthly average between OMI and MAX-DOAS

	OMI(molec./cm ²)	MAX-DOAS(molec./cm ²)	三站点平均 (molec./cm ²)
7 月	8.54×10 ¹⁵	12.46×10 ¹⁵	13.13×10 ¹⁵
8 月	7.81×10 ¹⁵	15.91×10 ¹⁵	14.36×10 ¹⁵
9 月	9.05×10 ¹⁵	19.91×10 ¹⁵	15.36×10 ¹⁵

比地基 MAX-DOAS 结果产生更大的偏差。

分别选取阴雨天气时的测量数据和晴天时的测量数据, 取其平均值进行对比, 如图 6 所示, 从图中可以看出, 在阴雨天气情况下二者差异较大, 地基 MAX-DOAS 测量结果约为 OMI 结果的 2.4 倍; 而在晴天情况下, 由于没有了云的干扰, 二者测量结果比较接近, 地基 MAX-DOAS 结果比 OMI 结果高 30%。可见, 在阴雨天气情况下, 地基 MAX-DOAS 数据和 OMI 数据都产生了很大偏差。

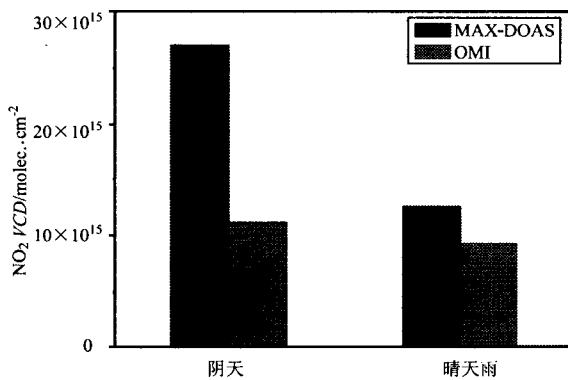


图 6 不同天气条件下 OMI 结果和地基 MAX-DOAS 结果的对比

Fig.6 Comparison between the results of OMI and MAX-DOAS under different weather conditions

选取 9 个阴雨天气条件下的 MAX-DOAS 测量结果, 同时选取 LP-DOAS 在同一时间段的数

据进行对比, 由于 LP-DOAS 测量的是高度为 20 m 左右大气的 NO₂ 平均浓度, 显然不受云层的干扰。对比结果显示, 在阴雨天气下, 云层的存在使得 OMI 数据跟地基 MAX-DOAS 结果产生了很大偏差, 但 LP-DOAS 却跟 MAX-DOAS 变化趋势比较一致, 如图 7, 其中 MAX-DOAS 和 OMI 测量结果的单位为 molec./cm², LP-DOAS 测量结果的单位为 ppb。

分别取 OMI 数据和地基 MAX-DOAS 数据、LP-DOAS 数据和地基 MAX-DOAS 数据进行相关性对比 (如图 8) 发现, OMI 数据与地基 MAX-DOAS 数据相关性较差, 相关系数仅为 $R=0.19$, 而 LP-DOAS 数据与地基 MAX-DOAS 数据则具有较好的相关性, 相关系数达到了 $R=0.92$ 。由此可见, 在阴雨情况下, 云层的存在使得 OMI 测量结果无法准确测量到近地面层的 NO₂ 浓度, 从而造成较大的误差, 而地基 MAX-DOAS 则能够得到比较准确的近地面层 NO₂ 浓度信息。

4.3.3 一致性对比

为了去除云的干扰, 选取奥运期间 7 个无云天气下的测量结果进行对比, 图 9(a) 所示为 MAX-DOAS 测量结果跟 OMI 测量结果在无云条件下的对比图。从图中看出, 二者趋势比较一致。将二者结果进行相关性对比, 得到相关系数为 0.64, 如图 9(b)。

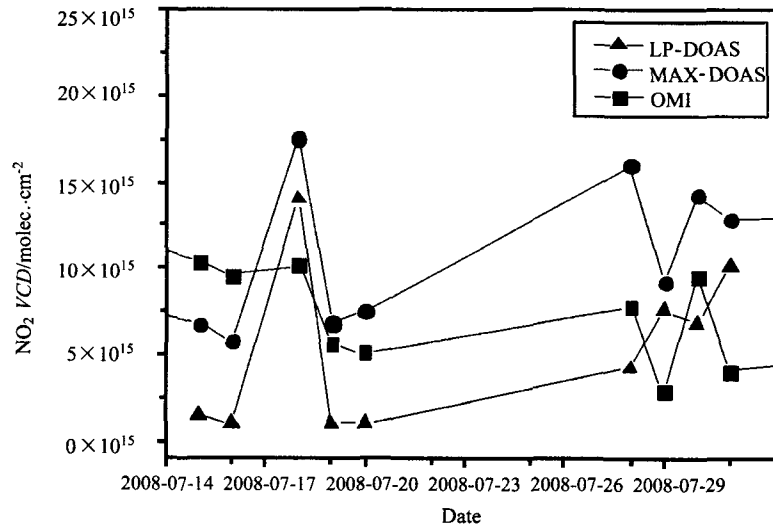


图 7 三种设备的结果在阴雨天气下测量结果的对比

Fig.7 Comparison of results from three instruments under rainy or cloudy conditions

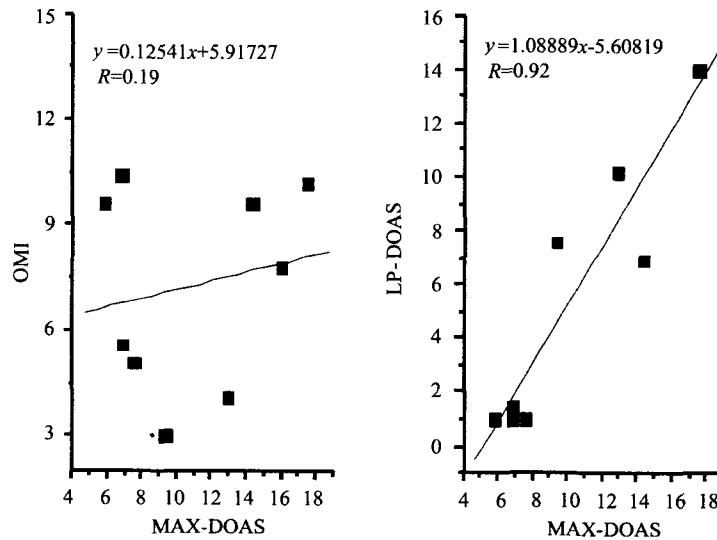


图 8 阴雨天气情况下地基 MAX-DOAS 分别与 OMI、LP-DOAS 的相关性

Fig.8 Correlations between OMI and MAX-DOAS, LP-DOAS and MAX-DOAS under rainy or cloudy conditions

5 结论

本文主要将在 2008 年北京奥运期间地基 MAX-DOAS 得到的奥运场馆上空对流层 NO_2 的测量结果与 OMI 提供的对流层 NO_2 结果进行了对比分析, 通过对比得到以下结论

1) 由于地基 MAX-DOAS 空间分辨率更高,

其在市区测量结果比 OMI 结果高;

2) 在阴雨等天气条件下, 云的存在使得地基 MAX-DOAS 结果和 OMI 结果产生较大偏差, 而地基 MAX-DOAS 结果与 LP-DOAS 结果具有较好的一致性;

3) 在无云天气条件下, 地基 MAX-DOAS 结

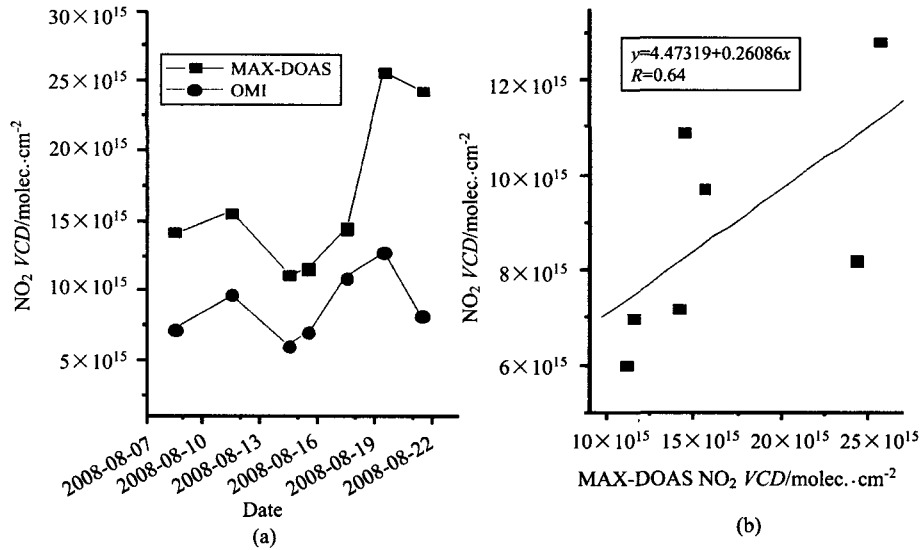


图 9 无云条件下地基 MAX-DOAS 数据与 OMI 数据的对比

Fig.9 Comparison between OMI and ground-based MAX-DOAS under clear conditions

参考文献:

[1] Kramer L J, Lergh R J, Remedios J J, et al. Comparison of OMI and ground-based *in situ* and MAX-DOAS measurements of tropospheric nitrogen dioxide in an urban area [J]. *J. Geophys. Res.*, 2008, **113**: D16S39.1- D16S39.12.

[2] Petritoli A, Bonasoni P, Giovanelli G, et al. First comparison between ground-based and satellite-borne measurements of tropospheric nitrogen dioxide in the Po basin [J]. *J. Geophys. Res.*, 2004, **109**: D15307.1-D15307.17.

[3] Ordóñez C, Richter A, Steinbacher M, et al. Comparison of 7 years of satellite-borne and ground-based tropospheric NO₂ measurements around Milan, Italy [J]. *J. Geophys. Res.*, 2006, **111**: D05310.1-D05310.12.

[4] Hönninger G, von Friedeburg C, Platt U. Multi axis differential optical absorption spectroscopy (MAX-DOAS) [J]. *Atmos. Chem. Phys.*, 2004, **4**: 231-254.

[5] de Vries J, van den Oord G H J, Hilsenrath E, et al. Ozone Monitoring Instrument(OMI) [C]. *Proc. SPIE*, 2001, **4480**: 315-325.

[6] Dobber M, Dirksen R, Voors R, et al. Ground-based zenith sky abundances and *in situ* gas cross sections for ozone and nitrogen dioxide with the Earth Observing System Aura Ozone Monitoring Instrument [J]. *Applied Optics*, **44**(14): 2846-2856.

[7] Laan E, de Winter D, de Vries J, et al. Towards the use of the Ozone Monitoring Instrument (OMI) [C]. *Proc. SPIE*, 2001, **4540**: 270-277.

作者简介: 徐 晋 (1981-), 男, 山东临沂人, 中科院安光所博士研究生, 研究方向为环境光谱探测技术研究。