

基于光学遥感技术获取近地面气溶胶 消光系数的方法研究*

李素文^{1,2} 司福祺² 赵鑫¹

(1. 淮北煤炭师范学院物理与电子信息学院, 淮北 235000; 2. 中国科学院安徽光学精密机械研究所, 合肥 230031)

摘要: 针对我国大气污染特点, 开展基于光学遥感技术的主动差分吸收光谱法(DOAS)反演近地面气溶胶消光系数的方法研究。首先介绍了主动 DOAS 的工作原理, 分析了基于双光路 DOAS 技术解析气溶胶质粒消光信息的实质, 探讨了利用单光路测量气溶胶的可行性, 并利用干净条件下近距离测得光强, 来校正系统, 解决了差分吸收光谱技术中光源绝对光强难以确定的难题。在获取气溶胶消光系数同时, 基于差分思想可以获得痕量气体的大气浓度。论文最后把该方法应用于外场数据的分析中, 成功地反演出气溶胶的消光系数和痕量气体浓度。

关键词: 光学遥感; 气溶胶; 主动 DOAS; 消光系数

中图分类号: TN16 **文献标识码:** A **国家标准学科分类代码:** 510.40

Retrieval method of near ground aerosol extinction coefficient based on remote sensing

Li Suwen^{1,2} Si Fuqi² Zhao Xin¹

(1. The College of Physics and Electronic Information, Huaibei Coal Industry Teachers College, Huaibei 235000, China;
2. Anhui Institute of Optics & Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China)

Abstract: According to the characteristics of atmospheric pollutants in our country, the retrieval method of near ground aerosol extinction coefficient based on remote sensing active differential optical absorption spectroscopy (DOAS) was discussed in this paper. Firstly, the aerosol DOAS system and its principle were introduced, and then measurement method based on double optical path was analyzed. It is necessary and difficulty to determine the absolute source intensity. Here single optical path method was used to measure the aerosol extinction coefficient. The calibration of DOAS system was used in nearer path under clean environment. After that, the aerosol extinction coefficient was obtained. Therefore the difficulty in DOAS system is easily solved. Polluted gases and aerosol could be obtained simultaneously by DOAS. Finally, the method was applied in field campaigns, aerosol particles, and trace gases were successfully evaluated in DOAS system.

Keywords: optical remote sensing; aerosol; active DOAS; extinction coefficient

1 引言

大气复合污染日趋严重, 人们赖以生存的大气圈, 尤其是居住密集的城市大气集聚了大量的有害气体成分和气溶胶颗粒。其中, 大气气溶胶对气候变化、云的形成、能见度的改变、大气微量成分的循环及人类健康有着重要影响。科学家们已通过分析

大气环境监测资料知道, 我国大气污染物已从以二氧化硫为主转变为以颗粒物为主, 距地面几十米的近地面层大气, 是人类和生物的生存空间。这一层空气质量的好坏直接影响着人类的生产和生活。因此, 开展对大气气溶胶进行快速有效测量, 尤其是对近地面大气气溶胶的研究是目前环境领域研究的热点之一^[1]。

本文于 2009 年 5 月收到。

*基金项目: 教育部科学技术研究资助项目(编号: 209057); 安徽省自然科学基金(编号: 090412028); 安徽高校自然科学基金项目(编号: KJ2008A114)。

差分吸收光谱法(DOAS)是利用光线在大气中传输时,各种气体分子和气溶胶在紫外、可见和近红外波段的特征吸收光谱来反演其在大气中浓度和特性的一种光学遥感方法^[2-6]。以氙灯为光源的主动 DOAS 技术是实现近地面大气痕量气体和气溶胶光学、物理特性同时反演的先进遥感技术^[7-8]。DOAS 作为可以同时监测痕量气体浓度以及大气气溶胶的技术,成为各国环境科学家研究的热点之一。然而在利用 DOAS 系统测量气溶胶时,需要绝对光强,目前,基于双光路 DOAS 系统,科学家们提出了不同的方法来校正系统^[8-11]。本文探讨了基于单光路 DOAS 技术获取近地面气溶胶质粒消光信息的可行性,并利用干净条件下近距离测得光强,来校正系统,实现气溶胶的单光路测量,解决差分吸收光谱技术中光源绝对光强难以确定的难题。

2 DOAS 系统

DOAS 系统是一个光机电一体化装置,可以连续、自动监测、自动反演待测物质的大气浓度。DOAS 系统结构框图如图 1 所示,主要包括:光源、发射和接收一体的望远镜系统、角反射镜、石英光纤、光谱仪、探测器和 DSP 采集电路、进行数据存储和实时、在线处理的计算机系统^[4, 12]。

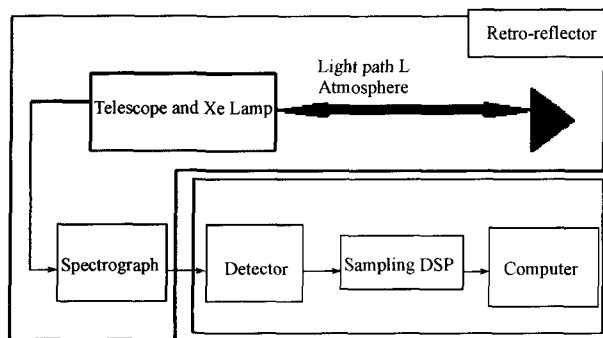


图 1 DOAS 仪器示意图

Fig. 1 Schematic diagram of DOAS instrument

发出光 $I_0(\lambda)$ 和经过大气吸收后反射回来光 $I(\lambda)$ 之间遵循 Lamber-Beer 公式可以表示为^[9-11]:

$$I(\lambda) = kI_0(\lambda) \cdot \exp(-\sigma_e \cdot L) \quad (1)$$

式中: k 是系统的校正吸收, σ_e 是总的消光系数, 包括痕量气体吸收 $\sigma_{\text{gas}}(\lambda)$ 、瑞利散射 $\sigma_{\text{Rayleigh}}(\lambda)$ 和气溶胶消光 $\sigma_{\text{aerosol}}(\lambda)$ 。

$$\sigma_e(\lambda) = \sigma_{\text{gas}}(\lambda) + \sigma_{\text{Rayleigh}}(\lambda) + \sigma_{\text{aerosol}}(\lambda) \quad (2)$$

痕量气体吸收, 其浓度可以通过 DOAS 方法反演出来。对瑞利散射, $\sigma_{\text{Rayleigh}}(\lambda)$, 可以通过公式(3)得到,

$$\sigma_{\text{Rayleigh}}(\lambda) = 8\pi^3(n-1)^2 L / (3\lambda^4 N) \quad (3)$$

式中: N 为空气密度, n 是折射指数, L 为光程。图 2 为 260 nm 到 1 000 nm 范围内的大气消光组成。图 2 表明大气消光主要包括气体吸收, 气溶胶消光和瑞利散射组成^[11]。因此确定了校正系数即可求得气溶胶的消光。

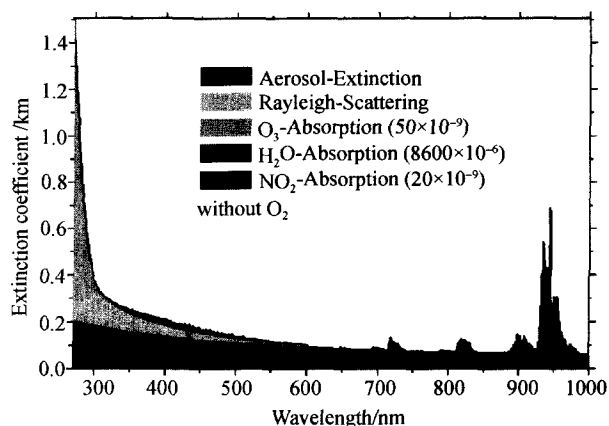


图 2 大气消光系数

Fig. 2 Atmospheric extinction coefficient

3 校正系数获取方法

在利用 DOAS 系统测量痕量气体吸收时, 因为利用的是差分吸收, 因此只要获得相对光强即可, 不需要对系统进行校正。然而在利用 DOAS 系统测量气溶胶时, 因为需要绝对光强, 因此各国的科学家提出不同的方法来校正系统。

3.1 双光路测量校正系统

当系统采用的双光路方法进行测量时, 通过在离望远镜不同距离放置角反射器, 转动望远镜测量不同光程的光强, 通过它们的比值可以反演气溶胶消光系数^[9-11]。

对于长光程, 探测器接收的光强 I_l 可表示为:

$$I_l = k_l I_0 \exp(-\sigma_e l_l) \quad (4)$$

与此对应的短光程探测器接收的强度 I_s 为:

$$I_s = k_s I_0 \exp(-\sigma_e l_s) \quad (5)$$

式中: I_0 为光源的强度; I_l 和 I_s 分别为长、短光程; k_l

与 k_s 分别表示长、短光程的校正系统,包括不同距离,不同光学系统的校正。由公式(4)、(5)可以解得大气总的消光系数 σ_e 为:

$$\sigma_e = \ln \left(\frac{I_s \cdot Z_{sl}}{I_l} \right) / (l_l - l_s) \quad (6)$$

式(6)中, Z_{sl} 为总的校正系数。去除痕量气体吸收以及由瑞利散射造成的影响后,如果可以确定总的校正系数 Z_{sl} ,那么气溶胶光学厚度就可以通过公式(6)反演出来。

韩国的 Lee^[9]基于假定干净天气下的消光系数很小,近处与远处的光学厚度一致,对系统进行校准。在干净天气条件下,可以得到 $Z_{sl}=I_l/I_s$ 。德国 Thmoas^[10-11]基于在干净天气下的能见度进行校准,即在干净大气的条件下估算出消光系数。从图2可见,此时瑞利散射在整个散射中占主导作用,通过 Koschmieder 定律可以决定消光系数:

$$\sigma_e(550\text{nm}) = 3.9 / R_S \quad (7)$$

式中: R_S 是能见度。通过测量散射系数和相对湿度可以选取合适的时间去确定校准系数,当粒子的消光系数极低时,对系统进行校准。

总之,两种方法均在干净天气条件下对系统进行校准,得到气溶胶消光系数。在校准系统时, Lee 假定干净天气时消光系数很小时,近处与远处的光学厚度一致;而 Thomas 则是通过干净天气时的能见度对系统进行校准。

3.2 单光路测量

比较式(1)和式(6)得到式(8):

$$\left. \begin{aligned} I &= kI_0 \exp(-\sigma_e l) \Rightarrow \sigma_e = \ln \frac{kI_0}{I} / l \\ \sigma_e &= \ln(Z_{sl} \cdot I_s / I_l) / (l_l - l_s) \end{aligned} \right\} kI_0 = Z_{sl} I_s; l = l_l - l_s \quad (8)$$

从式(8)可以发现双光路方法反演消光吸收的实质就是将放置于近处角反射器的回光作为原始光强,使用两者的光程差作为测量光程来计算气溶胶消光系数的。因此只要光源的波动给系统带来的误差在可接收的范围内,使用单光路测量气溶胶就是可行的。

当系统采用的单光路方法进行测量时,通过在干净天气状况下,并且光程很短的情况下,例如 1m,消光吸收很小,测量放在望远镜 1m 处探测器接收到的光信号即为 $kI_0(\lambda)$,解决了绝对光强难以获取的难题。因此利用式(1),在消除瑞利散射和痕量气体吸收

后即可获得气溶胶的消光系数^[7,14]。

4 实验验证

监测时间是 2007 年 8 月,监测位置在位于北京北四环的健翔桥主干线的北侧(北纬 $36^{\circ}59'08''$,东经 $116^{\circ}22'30''$),其中主动 DOAS 系统的望远镜、采集系统和光谱仪放在北京信息工程学院图书馆的四楼,角反射镜放置在大气所的职工宿舍楼顶,相距 264m。其中光谱仪的分辨率为 0.41nm,波段范围从 243nm 到 279nm。其中 8 月 6 日、7 日强降雨,8 月 8 日晴,这时通过测量放置在望远镜前 1m 处的光强来校正系统。考虑到采集系统的影响以及紫外相应较弱,分析波段从 260nm 到 370nm。

图 3 是采集到的光程为 1m 和光程为 528m 处的两条大气吸收光谱个例,图 4 是基于图 3 中(a)和(b)两个长光程谱获取的消光系数 $\ln(I_0/I)$ 和波长关系(去除了痕量气体消光和瑞利散射)。从图上可以看出,气溶胶消光系数的随着波长的增加而减少,符合 Angstrom 公式, $\tau = \beta \lambda^{-a}$ (这里 τ 表示关系厚度,而光学厚度与消光系数是以光程为常数呈比例变化的),公式中的波长指数 a 是与粒子大小有关的物理量,它随着粒子尺寸的增大而减小,具有反映粒子尺寸大小变化的能力^[13-15]。

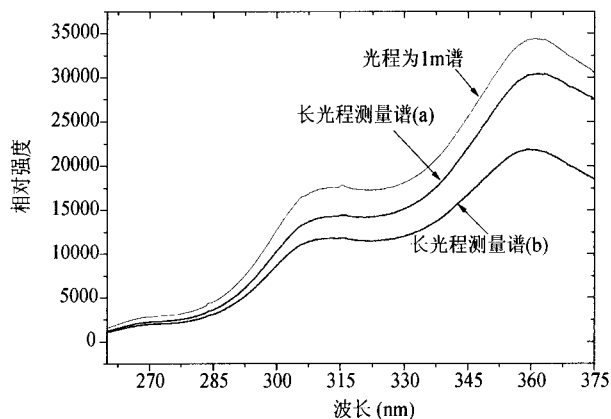


图3 DOAS 仪器测量不同光程的大气吸收谱
Fig. 3 Atmospheric absorption spectrum of differential optical path measured by DOAS instrument

在获取气溶胶消光系数同时,基于差分思想可以获取痕量气体的大气浓度,图5是获取痕量气体差分吸收光学密度谱,基于最小二乘拟合获取该条谱中痕量气体 SO_2 、 HCHO 、 O_3 、 NO_2 和 HONO 的浓

度, 分别为 32×10^{-9} 、 23×10^{-9} 、 16×10^{-9} 、 37×10^{-9} 和 0.9×10^{-9} 。

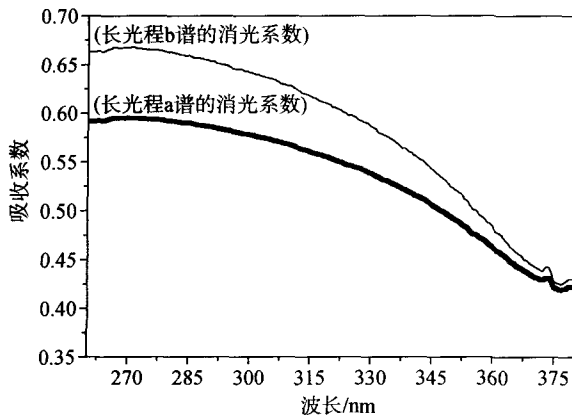


图 4 气溶胶颗粒的消光系数

Fig. 4 Extinction coefficient of aerosol particles

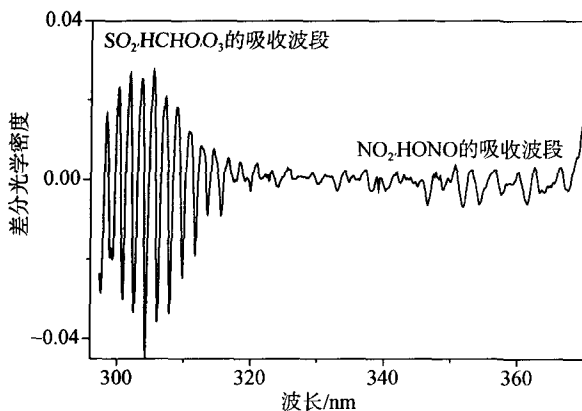


图 5 痕量气体的差分光学密度谱

Fig. 5 Differential optical density of trace gases

5 结 论

论文分析了利用差分吸收光谱系统反演气溶胶参数的双光路方法, 研究了利用单光路测量气溶胶的可行性, 并利用干净条件下近距离测得光强, 来校正系统, 解决了差分吸收光谱技术中光源绝对光强获取的难题。并把单光路测量气溶胶的方法应用于实际外场实验中, 标明该方法的可行性, 为近地面的气溶胶测量提供了一种全天候、实时的监测方法。对于研究大气污染、气溶胶特性, 以及大气气相/粒子非均相化学反应具有重要意义。该研究还拓展了 DOAS 技术应用空间, 使得 DOAS 系统在大气监测中将发挥更加重要的作用。

参考文献:

- [1] SI F Q, KUZE H, YOSHII Y, et al. Measurement of regional distribution of atmospheric NO_2 and aerosol particles with flashlight long-path optical monitoring [J]. *Atmospheric Environment*, 2005, 39(27): 4959-4968.
- [2] STUTZ J, PLATT U. Numerical analysis and estimation of the statistical error of differential optical absorption spectroscopy measurement with least-squares methods [J]. *Applied Optics*, 1996, 35: 6041-6053.
- [3] XIE P H, LIU W Q, FU Q, et al. Intercomparison of NO_x , SO_2 , O_3 and aromatic hydrocarbons measured by a commercial DOAS system and traditional point monitoring techniques [J]. *Advances in Atmospheric Sciences*, 2004, 21(2): 211-219.
- [4] LI S W, LIU W Q, XIE P H. Measurement of nighttime nitrate radical in the atmosphere with long path differential optical absorption spectroscopy [J]. *Advances in Atmospheric Sciences*, 2007, 24(5): 875-880.
- [5] 彭夫敏, 谢品华, 张英华, 等. 分辨率对大气中痕量污染气体的 DOAS 测量性能影响研究, *光学学报*, 2008, 28(9): 1643-1648.
PENG F M, XIE P H, ZHANG Y H, et al. Effect of Spectral resolution on measurement of trace gases in atmosphere by differential optical absorption spectroscopy [J]. *Acta Optica Sinica*, 2008, 28(9): 1643-1648.
- [6] 汤光华, 许传龙, 邵礼堂, 等. 差分吸收光谱法在线测量烟气浓度实验研究 [J]. *仪器仪表学报*, 2008, 29(2): 244-249.
TANG G H, XU CH L, SHAO L T, et al. Experimental study on in-situ measurement of flue gas concentration based on DOAS [J]. *Chinese Journal of Scientific Instrument*, 2008, 29(2): 244-249.
- [7] 郝楠, 周斌, 陈立民. 利用差分吸收光谱法测量亚硝酸和反演气溶胶参数 [J]. *物理学报*, 2006, 55(3): 1529-1534.
HAO N, ZHOU B, CHEN L M. Measurement of nitrous acid and retrieval of aerosol parameters with differential optical absorption spectroscopy [J]. *Acta Phys. Sinica*, 2006, 55(3): 1529-1534.
- [8] SI F Q, LIU J G, XIE P H, et al. Determination of aerosol optical thickness and atmospheric visibility by differential optical absorption spectroscopy [J]. *Acta Optica Sinica*, 2006, 26(7): 961-964.
- [9] LEE J S, KIM Y J. Extinction measurement using a differential optical absorption spectrometer system [J]. *J. of the Korean Physical Society*, 2003, 42(6): 731-734.
- [10] MÜLLER T, MÜLLER D, DUBOIS R. Particle extinction measured at ambient conditions with differential optical absorption spectroscopy. 1. System setup and characterization [J]. *Applied Optics*, 2005, 44(9): 1657-1666.
- [11] MÜLLER T, MÜLLER D, DUBOIS R. Particle extinc-

- tion measured at ambient conditions with differential optical absorption spectroscopy. 2. Closure study[J]. *Applied Optics*, 2006, 45(10): 2295-2305.
- [12] 李素文, 谢品华, 刘文清, 等. 发光二极管在差分吸收光谱系统中的应用研究[J]. *物理学报*, 2008, 57(3): 646-650.
- LI S W, XIE P H, LIU W Q, et al. A study of applicability of light emitting diodes in differential optical absorption spectroscopy measurements [J]. *Acta Phys. Sinica*, 2008, 57(3): 646-650.
- [13] BOX M A, LO SY. Approximate determination of aerosol size distributions[J]. *Journal of Applied Meteorology*, 1976, 15: 1068-1076.
- [14] NOTHOLT J, RAES F. Test of in situ measurements of atmospheric aerosol and traces gases by long path transmission spectroscopy. *Journal of aerosol science* [J]. 1990, 21: S193-S196.
- [15] SI F Q, LIU J Q. Determination of aerosol extinction coefficient and mass extinction efficiency by DOAS with a flashlight source [J]. *Chinese Physics*. 2005, 14(11): 2360-2364.

作者简介:

李素文: 女, 1968 年出生, 2008 年在中国科学院合肥物质科学研究院获得博士学位, 现为淮北煤炭师范学院教授。主要研究方向为光电信息处理。

E-mail: suwen_li@yahoo.cn

Li Suwen: female, born in 1968, received PhD from Hefei Institute of Physical Science, Chinese Academy of Sciences, in 2008. She is a professor of Huaibei Coal Industry Teachers College. Her current research interests are optical and electronic information processing.