

双差分吸收激光雷达:一种能有效减小气溶胶对臭氧测量影响的方法

王志恩 胡欢陵 周 军

(中国科学院安徽光学精密机械研究所,合肥,230031)

摘 要

文中提出了一种新的激光雷达测量臭氧的方法:双差分吸收方法。理论分析和数值模拟表明这种方法可以有效减小气溶胶消光和后向散射对臭氧测量的影响,从而使激光雷达在气溶胶影响严重地区测量的臭氧精度比传统差分吸收激光雷达大大提高。利用(289,313;277.1,299.1nm)或(268.4,289;277.1,299.1nm)4 波长进行双差分吸收可以用于对流层大气气溶胶含量丰富或分布不均匀地区臭氧的测量。利用(299.1,341.5;308,353nm)4 波长进行双差分吸收可以对火山爆发后平流层臭氧进行较精确的测量。

关键词:双差分吸收,激光雷达,臭氧,气溶胶。

1 引 言

臭氧在大气辐射中起着重要的作用,它可以有效地吸收对动植物包括人类在内有害的紫外辐射。臭氧吸收太阳辐射的能量是平流层和高层大气的重要能量来源。臭氧在对流层气相化学中也起着重要作用。自从 1986 年南极臭氧洞被发现以来,臭氧含量的变化受到了全球的关注。臭氧测量是研究臭氧变化的基础。差分吸收激光雷达(DIAL)测量臭氧分布具有高时空分辨率和测量精度等优点,是测量臭氧分布的一种重要方法^[1-3]。DIAL 测量臭氧分布的基本原理是利用 2 波长的弹性散射回波进行差分吸收。DIAL 系统在分子大气或气溶胶含量较少的情况下可以比较精确地测量臭氧分布。但是当测量路径上的大气气溶胶含量丰富或分布不均匀时,如果 2 波长间隔不能保证足够小的话,差分吸收激光雷达方程中消光和后向散射两项的影响不能忽略^[4]。因此用这种方法测量火山爆发后平流层的臭氧分布或对流层中气溶胶含量丰富或分布不均匀地区的臭氧分布将存在很大的误差。为了克服气溶胶对臭氧测量的这种影响已进行了许多工作。一部分工作主要是基于理论上的订证,也就是利用其它波长的雷达回波或其它测量手段来得到测量路径上大气气溶胶消光和后向散射特性来估计气溶胶的影响^[5-7]。这种方法可以减小大气气溶胶的影响,但由于用来订证的各参数很难精确确定,因此仍存在一定误差。另一种办法是利用实验方法来减小误差,这种方法较好的是 NASA McGee 等提出的 Raman-DIAL 方法^[8]。该方法利用 2 个波长氮分子的 Raman 回波来进行差分,从而消除了气溶胶后向

散射项的影响。但消光的影响仍需要考虑。另外 Raman 散射截面比瑞利散射和米散射截面要小两个量级,因此由信噪比降低所引起的测量误差相应增大。

本文介绍一种新的测量臭氧的方法:双差分吸收激光雷达(Dual-DIAL)方法。这种方法可以有效地减小气溶胶消光和后向散射对测量臭氧分布的影响。本文首先叙述这种方法的基本原理及实验方案,然后给出利用不同气溶胶光学特性和空间分布进行数值实验的结果。

2 基本原理

2.1 DIAL 测量臭氧分布

利用传统的 DIAL 方程^[4],臭氧廓线可以写成下面的形式:

$$N(z) = \frac{1}{2[\delta_{\lambda on}(T) - \delta_{\lambda off}(T)]} \left\{ \frac{d}{dz} \left(-\ln \frac{P_{\lambda on}(z)}{P_{\lambda off}(z)} \right) + B + E \right\} \quad (1)$$

式中

$$B = \frac{d}{dz} \ln \frac{\beta_{\lambda on}(z)}{\beta_{\lambda off}(z)}$$

$$E = -2\{\alpha_{\lambda on}(z) - \alpha_{\lambda off}(z)\}$$

$N(z)$ 是 z 高度上的臭氧数密度; λon 及 λoff 为测量用的二激光波长, λon 对应的臭氧吸收较强, λoff 对应的臭氧吸收较弱; $\delta_{\lambda}(T)$ 是温度 T 时臭氧分子在 λ 波长的吸收截面; $P_{\lambda}(z)$ 是接收到的 λ 波长在 Z 高度的回波功率或光子数; $\beta_{\lambda}(z)$ 是 Z 高度上 λ 波长的体后向散射截面,它等于 Z 高度上分子和气溶胶体后向散射的总和; $\alpha_{\lambda}(z)$ 是 Z 高度上 λ 波长上的消光系数(不包括臭氧的吸收)。

B, E 两项分别代表大气后向散射和消光的贡献。在气溶胶含量较少的情况下, B 接近于 0, 可以忽略, E 可以利用分子的消光进行订证。 O_3 垂直廓线可以利用 DIAL 方程从雷达回波信号中计算出来。在气溶胶含量多或分布不均匀时, B, E 不能忽略, 气溶胶的影响必须考虑。

2.2 双差分吸收测量臭氧分布

若选择两组波长 ($\lambda_{1on}, \lambda_{1off}$), ($\lambda_{2on}, \lambda_{2off}$) 分别进行差分吸收, 则由 DIAL 方程可以分别求出臭氧廓线。由方程(1)对于这两组波长可以分别写出方程(2)和(3)。

$$2[\delta_{\lambda_{1on}}(T) - \delta_{\lambda_{1off}}(T)]N(z) = \frac{d}{dz} \left(-\ln \frac{P_{\lambda_{1on}}(z)}{P_{\lambda_{1off}}(z)} \right) + B_1 + E_1 \quad (2)$$

式中:

$$B_1 = \frac{d}{dz} \ln \frac{\beta_{\lambda_{1on}}(z)}{\beta_{\lambda_{1off}}(z)} \quad E_1 = -2\{\alpha_{\lambda_{1on}}(z) - \alpha_{\lambda_{1off}}(z)\}$$

$$2[\delta_{\lambda_{2on}}(T) - \delta_{\lambda_{2off}}(T)]N(z) = \frac{d}{dz} \left(-\ln \frac{P_{\lambda_{2on}}(z)}{P_{\lambda_{2off}}(z)} \right) + B_2 + E_2 \quad (3)$$

式中: $B_2 = \frac{d}{dz} \ln \frac{\beta_{\lambda_{2on}}(z)}{\beta_{\lambda_{2off}}(z)}$, $E_2 = -2\{\alpha_{\lambda_{2on}}(z) - \alpha_{\lambda_{2off}}(z)\}$

臭氧廓线也可以 4 个波长一起求得。方程(2)减(3)并稍加变换即可将臭氧廓线写成下面形式:

$$N(z) = \frac{1}{2[(\delta_{\lambda_{1on}}(T) - \delta_{\lambda_{1off}}(T)) - (\delta_{\lambda_{2on}}(T) - \delta_{\lambda_{2off}}(T))]} \left[\frac{d}{dz} \left(-\ln \frac{P_{\lambda_{1on}}(z)}{P_{\lambda_{1off}}(z)} \right) - \frac{d}{dz} \left(-\ln \frac{P_{\lambda_{2on}}(z)}{P_{\lambda_{2off}}(z)} \right) + B_1 + E_1 - B_2 - E_2 \right] \quad (4)$$

即:

$$N(z) = \frac{1}{\Delta\delta(T)} \left[\frac{d}{dz} \left(-\ln \frac{P_{\lambda_{1on}}(z)}{P_{\lambda_{1off}}(z)} + \ln \frac{P_{\lambda_{2on}}(z)}{P_{\lambda_{2off}}(z)} \right) + B' + E' \right] \quad (5)$$

式中:

$$\Delta\delta(T) = (\delta_{\lambda_{1on}}(T) - \delta_{\lambda_{1off}}(T)) - (\delta_{\lambda_{2on}}(T) - \delta_{\lambda_{2off}}(T))$$

$$B' = B_1 - B_2 \quad E' = E_1 - E_2$$

如果二组波长的选择能满足下列条件:1. $\lambda_{1on} - \lambda_{1off}$ 与 $\lambda_{2on} - \lambda_{2off}$ 相等或近似相等,2. $\Delta\delta(T)$ 足够大,能保证测量所需的灵敏度 and 空间分辨率,3. 两组波长的间隔不是十分大,则 B_1 与 B_2 , E_1 与 E_2 的大小都很接近。这样 B' 和 E' 就要分别比 B_1 、 B_2 和 E_1 、 E_2 小得多(一般可相差一个量级),以致可以不考虑这两项的影响或仅仅考虑分子消光的影响。利用这种方法可以大大减小气溶胶对臭氧测量的影响。

3 实验方案

表 1 可以利用的紫外光源

激光器	波长(nm)
KrF	248.4
SRS H ₂	277.1(S ₁), 313.2(S ₂), 360.1(S ₃)
SRS D ₂	268.4(S ₁), 291.8(S ₂), 319.3(S ₃)
Nd:YAG	
三倍频	355
四倍频	266
SRS(266) H ₂	299.1(S ₁), 341.5(S ₂), 397.5(S ₃)
SRS(266) D ₂	289.02(S ₁), 316.2(S ₂), 349.2(S ₃)
SRS(266) HD	294.2
XeCl	308
SRS H ₂	353
SRS D ₂	339
XeF	351
XeBr	282

由上面的理论分析可见,实现双差分方法的关键在于找到合适的波长组合。激光技术的发展,为激光雷达提供了丰富的紫外激光光源。表 1 给出了现在已处于实用阶段的紫外激光光源^[7,9]。表中 SRS 是指受激喇曼散射, S_1 , S_2 , S_3 分别代表第一阶、第二阶和第三阶斯托克斯线。根据表 1 所提供的波长和实现双差分所需的条件,可以选出下面几种组合:

A: 289, 313, 277.1, 299.1nm;

B: 268.4, 289, 277.1, 299.1nm;

C: 299.1, 341.5, 308, 353. nm.

A, B 两组的 $\Delta\delta(T)$ 分别约为 $2.759 \times 10^{-18} \text{cm}^2$, $2.691 \times 10^{-18} \text{cm}^2$ 完全能满足对流层测量

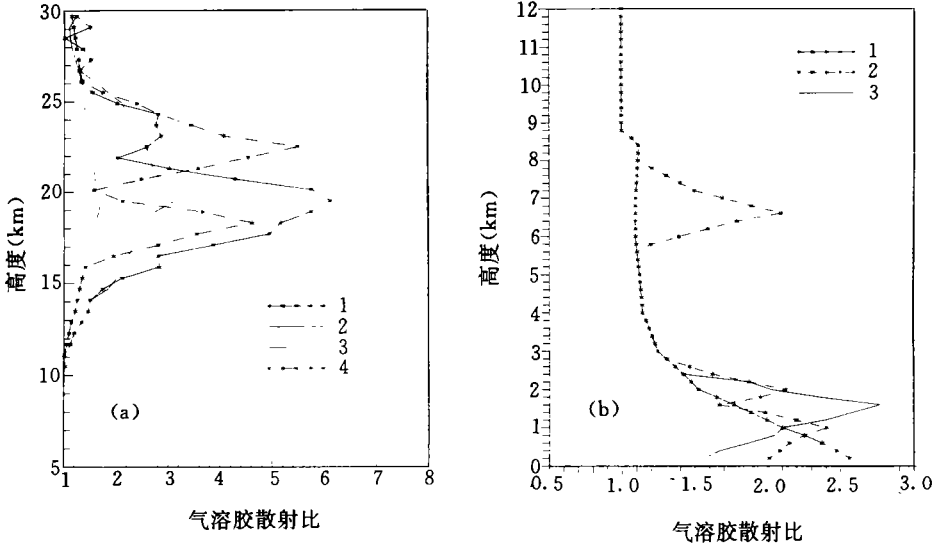


图 1 气溶胶散射比廓线(532nm)

(a 为平流层气溶胶, b 为对流层气溶胶; 图中各条曲线分别表示不同的气溶胶分布)

精度的需要^[7], 可以用于对流层臭氧的测量; C 组的 $\Delta\delta(T)$ 为 $2.63 \times 10^{-19} \text{cm}^2$, 可以用于平流层(小于 30km)臭氧的测量。

上面的各组波长都只要 2 种激光器通过受激喇曼散射就能得到, 因此从所需的激光波长来讲这种方法是可行的。计算机控制技术和数据采集技术的发展使多波长、多通道接收成为可能^[3]。从硬件来讲, 4 波长双差分吸收测量臭氧的分布也是可行的。象一般的多波长激光雷达系统一样, 同时测量相应的 4 个波长的弹性散射回波, 利用方程(5)就可以较精确地测量出臭氧的分布而大气气溶胶对测量结果的影响可以忽略。

4 数值实验

为了说明这种方法的优点, 下面通过数值实验对双差分吸收激光雷达和差分吸收激光雷达的测量误差进行比较分析。双差分吸收激光雷达中的测量误差可以利用类似 Schotland 的方法进行估计^[4]。测量误差主要来自两方面: 光子计数的统计误差(ϵ_1); 忽略瑞利散射和米散射波长依赖性带来的误差(ϵ_2)。前者 ϵ_1 可以写成:

$$\epsilon_1 = \frac{1}{2\Delta\delta N(z)\Delta Z} \left\{ \sum_{ij} \left[\frac{P_{ij}(z) + P_{bj}}{P_{ij}(z)^2} + \frac{P_{ij}(z + \Delta z) + P_{bj}}{P_{ij}(z + \Delta z)^2} \right] \right\}^{1/2} \quad (6)$$

$i = 1, 2; j = on, off$

式中的 P_b 包括天空背景信号和光电倍增管的热噪音。

后者 ϵ_2 可以分成消光(ϵ_{2E}) 和后向散射(ϵ_{2B}) 两部分。即

$$\epsilon_2 = \epsilon_{2B} + \epsilon_{2E} \quad (7)$$

其中:

$$\epsilon_{2B} = \frac{1}{2\Delta\delta N(z)\Delta Z} \left\{ \ln \frac{\beta_{\lambda_{1on}}(z + \Delta z)}{\beta_{\lambda_{1on}}(z)} - \ln \frac{\beta_{\lambda_{1off}}(z + \Delta z)}{\beta_{\lambda_{1off}}(z)} \right. \\ \left. - \ln \frac{\beta_{\lambda_{2on}}(z + \Delta z)}{\beta_{\lambda_{2on}}(z)} + \ln \frac{\beta_{\lambda_{2off}}(z + \Delta z)}{\beta_{\lambda_{2off}}(z)} \right\}$$

$$\epsilon_{2E} = \frac{E'}{2\Delta\delta N(z)} = \epsilon_{2Eaer} + \epsilon_{2Emol}$$

ϵ_{2Eaer} 和 ϵ_{2Emol} 分别是气溶胶和分子消光的贡献。

表 2 用于平流层臭氧测量模拟的双差分激光雷达系统参数

波长(nm):	299.1	341.5	308	353
脉冲能量(mJ):	30	20	200	50
背景(晚上测量):	忽略			
接收望远镜直径(cm):	100			
接收光学效率:	30%			
PMT 量子效率:	20%			
测量的激光脉冲数:	200000			
测量结果的空间分辨率 ΔR :	1km(≤ 25 km), 2km(> 25 km)			
光子计数的积分厚度 ΔZ (m):	300	500	1000	

下面计算不同气溶胶光学特性和空间分布情况下的测量误差 ϵ_1 和 $\epsilon'_2 = \epsilon_{2B} + \epsilon_{2Eaer}$ 。计算中分子大气利用 Elterman 模式, 臭氧高度分布利用 1976 年美国标准大气模式。气溶胶光学性质假设如下: 消光波长指数 $\sigma(\alpha_{\lambda_1} = \alpha_{\lambda_2}(\lambda_1/\lambda_2)^{-\sigma})$ 从 -0.5 到 2; 后向散射波长指数 $\zeta(\beta_{\lambda_1} = \beta_{\lambda_2}(\lambda_1/\lambda_2)^{-\zeta})$ 从 -1.0 到 2; 气溶胶消光后向散射比 (532nm) S 从 20 到 80; 以及不同的气溶胶散射比 $R(R = (\text{分子后向散射系数} + \text{气溶胶后向散射系数}) / \text{分子后向散射系数})$ 的高度分布 (见图 1)。

4.1 平流层臭氧的测量

C 组波长是由 XeCl 激光器和 YAG 激光器通过喇曼散射得到, 可以用于平流层臭氧的探测。图 2 给出 ϵ_1 的计算结果, 所用的参数见表 2, 所用的气溶胶分布为图 1a 的曲线 1。图 3. a, b 给出了双差分吸收和传统差分吸收测量臭氧时忽略气溶胶影响所造成的测量误差 (ϵ'_2) 的一个计算结果。图中带点实线为 299.1-341.5 差分吸收, 带点虚线为 308-353 差分吸收, 实线为 C 组波长的双差分吸收。所用的气溶胶分布为图 1a 中的曲线 1。图 3a 中 $\sigma = 1.0, \zeta = 0.5, S = 45$; b 中 $\sigma = 1.0, \zeta = 1.5, S = 45$ 。由图 2 可见 C 组波长能保证 ϵ_1 小于 10%。 ϵ'_2 计算结果表明: 火山爆发后利用 C 组波长双差分吸收测量平流层臭氧时, 气溶胶的影响要比传统的差分吸收方法小 5-10 倍; σ 的变化对测量结果影响不大; 对于图 1a 所示的气溶胶分布, 只要

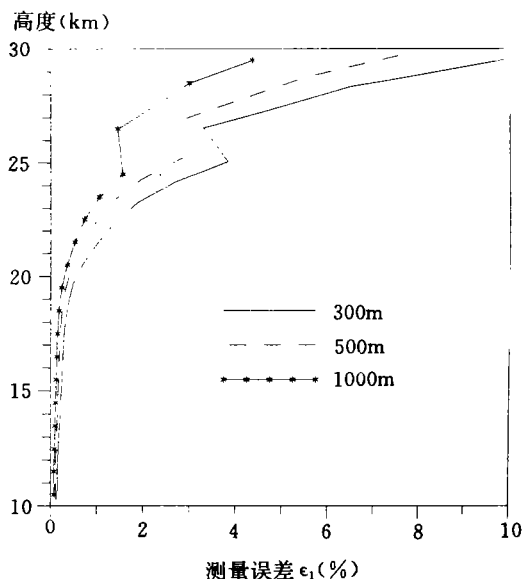


图 2 双差分吸收测量平流层臭氧时测量误差 ϵ_1 的高度分布

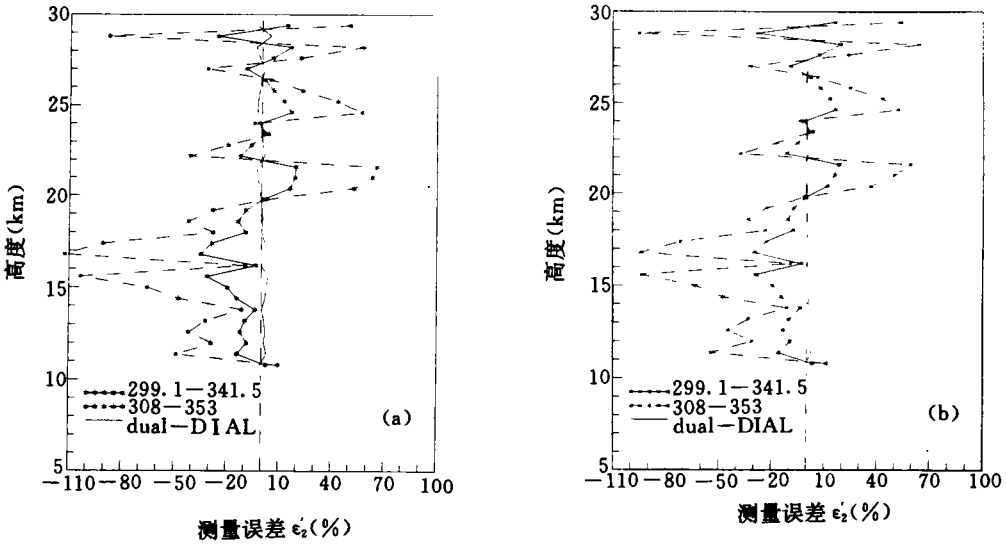


图 3 忽略气溶胶影响所造成的平流层臭氧测量误差 $\epsilon_2 = \epsilon_{2B} + \epsilon_{2Eaer}$
 (a 中 $\sigma = 1.0, \zeta = 0.5, S = 45$, b 中 $\sigma = 1.0, \zeta = 1.5, S = 45$;
 带点线为传统的差分吸收, 不带点实线为双差分吸收)

ζ 在 0.5—2 范围内都能保证气溶胶引起的误差小于 5%。如果将 353nm 换成 351nm, 则 ζ 在 -1—2 范围内都能使误差小于 5%。

4.2 对流层臭氧的测量

A, B 组波长都可以由 YAG 激光器和 KrF 激光器通过喇曼散射得到, 可以用于对流层臭氧的测量。图 4 给出 ϵ_1 的计算结果, 所用的参数见表 3。图 5, 6 给出了两种情况下的计算结果, 所用的气溶胶高度分布为图 1b 曲线 2。图 5a, b 中带点实线为 277.1—299 差分吸收, 带点虚线为 289—313 差分吸收, 实线为 A 组波长的双差分吸收; 图 5a 中 $\sigma = 0.5, \zeta = 0.0, S = 55$, 图 5b 中 $\sigma = 1.5, \zeta = 2.0, S = 55$ 。图 6a, b 中带点实线为 268.4—289. 差分吸收, 带点虚线为 277.1—299.1 差分吸收, 实线为 B 组波长的双差分吸收; 图 6a 中 $\sigma = 0.5, \zeta = 0.0, S = 55$, 图 6b 中 $\sigma = 1.5, \zeta = 2.0, S = 55$ 。由图 4 可见: A 组波长能保证 1—12km 范围内的 ϵ_1 小于 10%; B 组波长能保证 1—6km 范围内的 ϵ_1 小于 10%。 ϵ_2 计算结果表明: A, B 两组波长用于对流层臭氧测量时, 双差分方法中气溶胶带来的误差要比传统的差分方法小一个量级左右; 在给定的几种气溶胶分布的情况下(见图 1b), 只要 σ 小于 1.5 时, 气溶胶的影响都在 5% 以下。

A 组波长不仅可以有效地减小大气气溶胶对测量对流层臭氧的影响, 还可以减小 SO_2 和 NO_2 对测量对流层臭氧的影响^[7, 10]。当 O_3, NO_2, SO_2 的浓度相等时, SO_2 对双差分方法的影响不到 2%, NO_2 对双差分方法的影响不到 0.5%。在 B 组波长中 SO_2 的影响增大, 但 NO_2 的影响不大。

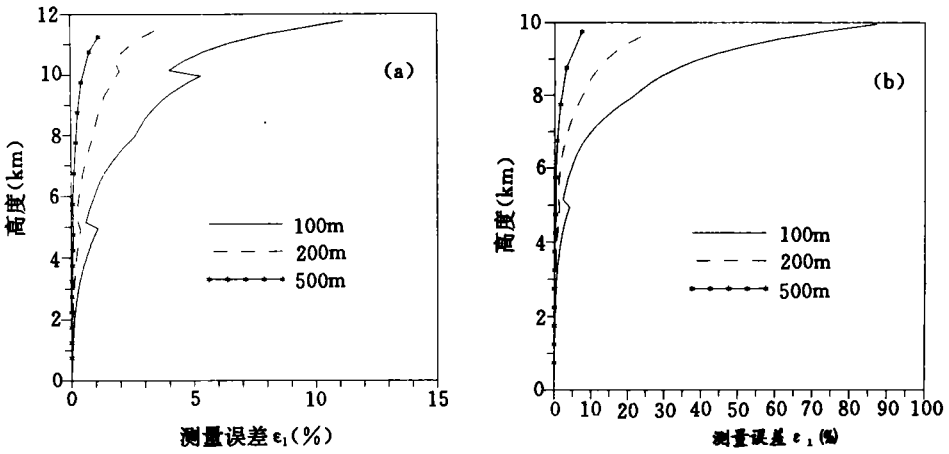


图 4 双差分吸收测量对流层臭氧时测量误差 ϵ_1 的高度分布
(a 为 A 组波长, b 为 B 组波长)

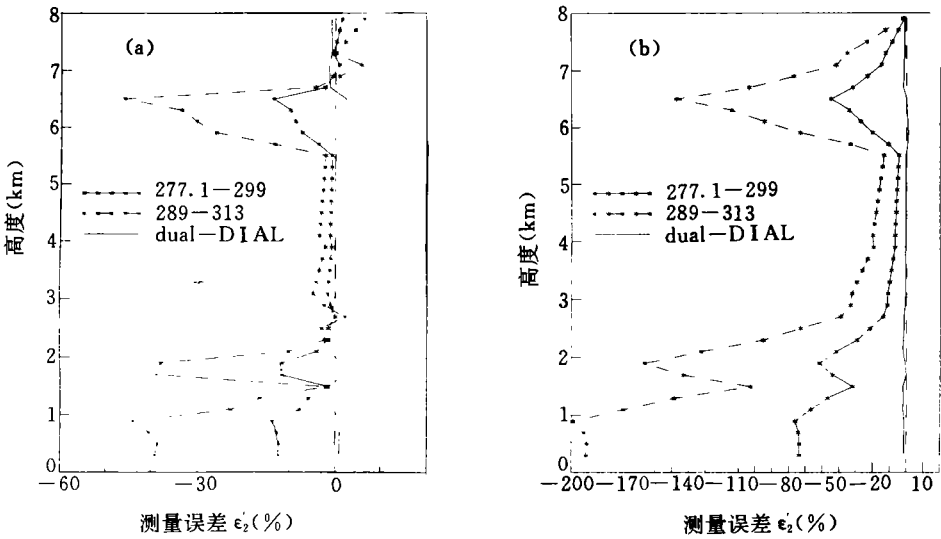


图 5 A 组波长忽略气溶胶影响所造成的对流层臭氧测量误差 ϵ_2
(a 中 $\sigma = 0.5, \zeta = 0.0, S = 55$; b 中 $\sigma = 1.5, \zeta = 2.0, S = 55$;
带点线为传统的差分吸收, 不带点实线为双差分吸收)

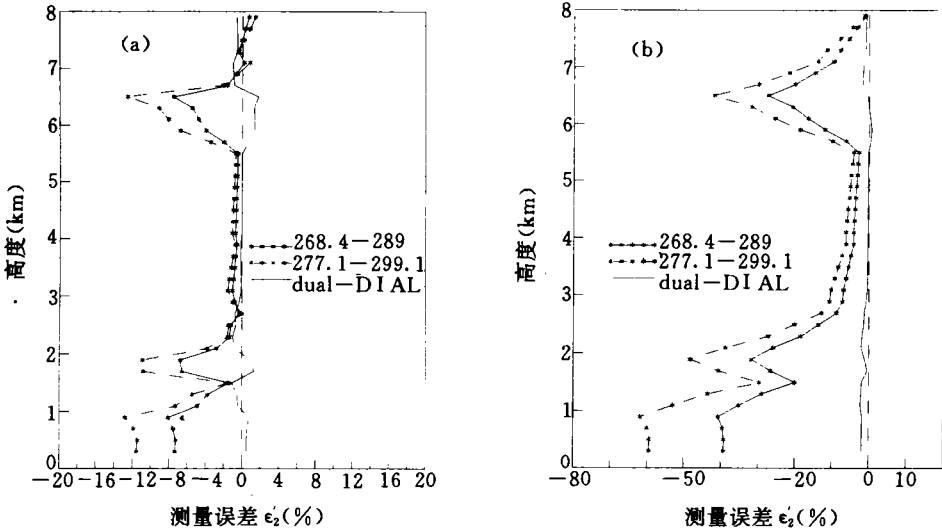


图 6 B 组波长忽略气溶胶影响所造成的对流层臭氧测量误差 e_2

(a 中 $\sigma = 0.5, \zeta = 0.0, S = 55$; b 中 $\sigma = 1.5, \zeta = 2.0, S = 55$;

带点线为传统的差分吸收, 不带点实线为双差分吸收)

表 3 用于对流层臭氧测量模拟的双差分激光雷达系统参数

波长(nm):	268.4	277.1	289	299.1	313
脉冲能量(mJ):	40	50	30	30	30
背景(晚上):	忽略				
接收望远镜直径(cm):	100				
接收系统光学效率:	30%				
光电倍增管量子效率:	20%				
测量脉冲数:	20000				
空间分辨率 ΔR :	$\Delta Z(\leq 5\text{km}), 2\Delta Z(5-10\text{km}), 3\Delta Z(>10\text{km})$				
测量的积分厚度 $\Delta Z(\text{m})$:	100	200	500		

5 结 论

由上面的理论和数值模拟计算结果可以得到下列结论:

1. 文中给出了适于平流层和对流层臭氧测量的双差分吸收激光雷达所需的工作波长。所选择工作波长的适用性和多波长测量的可行性说明了双差分吸收激光雷达测量臭氧的可行性。

2. 双差分吸收激光雷达技术可以有效地克服气溶胶对平流层和对流层臭氧测量的潜在影响。与传统的差分吸收方法相比, 双差分方法中气溶胶的影响可以减小近一个量级。

3. 利用 A 组(289, 313; 277, 299.1nm)或 B 组(268.4, 289; 277.1, 299.1nm)波长进行双差分吸收可以用于对流层大气气溶胶含量丰富或分布不均匀地区臭氧的测量。另外 A 组波长的双差分吸收还能在污染地区对臭氧进行较精确的测量。

4. 利用 C 组(299.1, 341.5; 308, 353nm)波长进行双差分吸收可以对火山爆发后平流层臭氧进行较精确的测量。

5. 利用这种双差分吸收方法建立的激光雷达系统可以为研究臭氧变化、臭氧动力学过程以及臭氧与气溶胶的相互作用提供高精度的实验数据。

参考文献

- [1] Uchino O and Tabata I. Mobile lidar for simultaneous measurements of ozone, aerosols, and temperature in the stratosphere. *Appl Opt.* 1991. 30: 2005—2012.
- [2] McDermind I S. et al. Ground-based laser DIAL system for long-term measurements of stratospheric ozone. *Appl Opt.* 1990. 29: 3603—3611.
- [3] McDermind I S. et al. Differential absorption lidar systems for tropospheric and stratospheric ozone measurements. *Opt Eng.* 1991. 30: 22—30.
- [4] Schotland R M. Errors in the lidar measurement of atmospheric gases by differential absorption. *J Appl Meteorol.* 1974. 13: 71—77.
- [5] Browell E V. et al. Ultraviolet DIAL measurements of O₃ profiles in regions of spatially inhomogeneous aerosols. *Appl Opt.* 1985. 24: 2827—2836.
- [6] Steinbrecht W and Carswell A I. Correcting for interference of Mt. pinatubo aerosols on DIAL measurements of stratospheric ozone. 16th ILRC. conference abstracts. 1992. 27—30.
- [7] Papayannis A. et al. Multiwavelength lidar for ozone measurements in the troposphere and the Lower stratosphere. *Appl Opt.* 1990. 29: 467—476.
- [8] McGee T J. et al. Raman DIAL measurements of stratospheric ozone in the presence of volcanic aerosols. *Geophys Res Lett.* 1993. 20: 955—985.
- [9] Uchino O. et al. Applications of excimer laser to laser-radar observations of the upper atmosphere. *IEEE J Quantum Electron.* 1979. QE-15: 1094—1107.
- [10] Weitkamp C. et al. Signal and reference wavelength for the elimination of SO₂ cross sensitivity in remote measurements of tropospheric ozone with lidar. *Laser und Optoelektronik.* 1992. 24: 46—52.

DUAL DIFFERENTIAL ABSORPTION LIDAR: A NEW METHOD TO REDUCE EFFECTIVELY THE EFFECT OF AEROSOLS ON OZONE MEASUREMENT

Wang Zhien Hu Huanling Zhou Jun

(Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Hefei, 230031)

Abstract

The present paper describes the new method of ozone measurement, dual differential absorption lidar (dual-DIAL). Theoretical analysis and numerical simulation show that this method can effectively reduce the effect of aerosol extinction and backscattering on lidar ozone measurement. The accuracy of ozone measurement with this method is higher than conventional DIAL at the region where aerosol effect is heavy. The dual-DIAL with (289. 313; 277. 1, 299. 1nm) wavelengths or (268. 4, 289; 277. 1, 299. 1nm) wavelengths can be used for ozone measurement in the region, where aerosol loading is high or distribution inhomogeneous in the troposphere. The dual-DIAL with (299. 1, 341. 5; 308, 353nm) wavelengths can be used for the measurement of stratospheric ozone after the volcanic eruption.

Key Words: Dual differential absorption, Lidar, Ozone, Aerosols.