

文章编号 1004-924X(2018)02-0253-08

## 差分吸收 NO<sub>2</sub> 激光雷达波长漂移和 能量波动对浓度反演的影响

刘秋武<sup>1,2</sup>, 陈亚峰<sup>1,2</sup>, 王 杰<sup>1,2</sup>, 黄 见<sup>1</sup>, 胡顺星<sup>1\*</sup>

(1. 中国科学院 安徽光学精密机械研究所 中国科学院大气光学重点实验室, 安徽 合肥 230031;  
2. 中国科学技术大学, 安徽 合肥 230026)

**摘要:**为评估差分吸收二氧化氮激光雷达中激光器的稳定性对反演浓度的影响,以 NO<sub>2</sub> 的吸收谱和激光雷达方程为基础,分析了波长漂移和能量波动对距离分辨差分吸收激光雷达浓度反演带来的相对误差。采用两台 Nd:YAG 激光器的 354.7 nm 波长分别泵浦两台染料激光器的方式,产生差分吸收探测所需的两个波长  $\lambda_{on}$  (448.10 nm) 和  $\lambda_{off}$  (446.80 nm), 搭建探测大气 NO<sub>2</sub> 实验系统,并就波长漂移和能量波动对 NO<sub>2</sub> 浓度反演影响进行了实验验证。实验结果表明:在没有稳频条件下,当  $\lambda_{on}$  和  $\lambda_{off}$  波长漂移  $\leq 0.005$  nm 时,引起的浓度相对误差为  $\leq 3\%$ ; 能量波动对反演浓度没有影响,但能量降低减小探测距离,当能量下降  $\leq 5\%$  时,探测距离  $\leq 100$  m,实验结果与理论计算基本一致。最后,开展了大气 NO<sub>2</sub> 浓度实验观测,获得实验期间水平及垂直高度 0.5~3 km 内 NO<sub>2</sub> 浓度的分布廓线,系统稳定可靠。本方法为实用化 NO<sub>2</sub> 差分吸收激光雷达的设计及应用提供了理论依据及技术支持。

**关键词:**激光雷达; 差分吸收光谱; 二氧化氮; 波长漂移; 能量波动

**中图分类号:** TN 958. 98 **文献标识码:** A **doi:** 10.3788/OPE.20182602.0253

## Effects of wavelength shift and energy fluctuation on inversion of NO<sub>2</sub> differential absorption lidar

LIU Qiu-wu<sup>1,2</sup>, CHEN Ya-feng<sup>1,2</sup>, WANG Jie<sup>1,2</sup>, HUANG Jian<sup>1</sup>, HU Shun-xing<sup>1\*</sup>

(1. Key Laboratory of Atmospheric Optics, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics,  
Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China;

2. University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China)

\* Corresponding author, E-mail: sxhu@aiofm.ac.cn

**Abstract:** To evaluate the effect of the stability of the laser on the inversion of the NO<sub>2</sub> distribution in differential absorption based on the NO<sub>2</sub> absorption spectrum and the lidar equation. The relative errors caused by wavelength shift and energy fluctuation in the range resolved differential absorption lidar were analyzed. Two Nd:YAG lasers are used to pump into two dye lasers to produce two wavelengths,  $\lambda_{on}$  (448.1 nm) and  $\lambda_{off}$  (446.6 nm), respectively. In the absence of frequency and power stability conditions, the influence of the change of NO<sub>2</sub> absorption cross section caused by wavelength drift on the inversion concentration was analyzed. When the two wavelengths' drift is less than 0.005

收稿日期: 2017-07-15; 修订日期: 2017-09-30.

基金项目: 国家重大科研仪器设备研制专项 (No. 41127901); 国家自然科学基金资助项目 (No. 41575032, No. 41505019)

nm, the total relative error of inversion concentration due to  $\lambda_{on}$  and  $\lambda_{off}$  wavelength drift is less than 3%, and  $\lambda_{on}$  drift is the main factor. Then the influence of energy fluctuation on the inversion concentration is analyzed. The results show that the energy fluctuation has no effect on the inversion concentration, but the energy reduction will increase the statistical error. When the energy fluctuates in a range of 5% or less, detection range decreases about 100 meters. Lastly, the vertical or horizontal  $\text{NO}_2$  profiles were measured at range of 0.5 km to 3.0 km. This method provides theoretical basis and technical support for the design and application of practical  $\text{NO}_2$  differential absorption lidar.

**Key words:** lidar; differential absorption spectrum;  $\text{NO}_2$ ; wavelength drift; energy fluctuation

## 1 引言

随着我国经济的发展,以煤炭和石油为主的能源需求持续增长,它们的燃烧污染大气,导致大气污染日趋严重。二氧化氮( $\text{NO}_2$ )是燃料燃烧尾气的主要污染物之一,它是有毒气体,会对人体呼吸系统产生影响,还会引发酸雨。 $\text{NO}_2$ 在臭氧、细微颗粒物的形成过程中起着重要作用,环境监测部门把空气中的  $\text{NO}_2$  含量作为空气质量指数(Air Quality Index, AQI)的一项指标<sup>[1-3]</sup>,对  $\text{NO}_2$  的监测是大气污染防治的重要环节。

目前,测量  $\text{NO}_2$  的方法有抽气式分析仪、差分吸收光谱仪(DOAS)和差分吸收激光雷达(Differential Absorption Lidar, DIAL)<sup>[4-5]</sup>。其中,DIAL 可以对大范围的大气污染进行遥感监测,获得垂直或水平廓线,因此具有传统地基单点测量难以具备的优点。由于  $\text{NO}_2$  的吸收截面小,大气中含量较低,因此探测难度较大。Fredriksson 和 Kölsch 等用 DIAL 测量了硝酸盐化工厂烟囱及周边烟雾等  $\text{NO}_2$  浓度较高区域的廓线<sup>[6-7]</sup>。随着激光技术的发展,Hideto 等提出 Nd:YAG 激光器泵浦染料激光器并用晶体和频方法产生两个 448.20~446.80 nm 的波长来测量大气中的  $\text{NO}_2$ <sup>[8]</sup>。中科院安光所利用拉曼管法产生两个 395.60~396.68 nm 的波长来测量大气中的  $\text{NO}_2$ <sup>[9-11]</sup>。为提高测量精度和系统稳定性,并将 DIAL 应用到大气轮廓同步观测(Atmospheric Profiling Synthetic Observation System, AP-SOS)项目中测量大气中  $\text{SO}_2$  和  $\text{NO}_2$  的浓度分布,安光所从 2012 年开始研发新一代测污雷达<sup>[12-13]</sup>。DIAL 是根据探测目标气体的吸收光谱特性来选择光源的。在  $\text{NO}_2$  探测中,系统采用 Nd:YAG 激光器泵浦染料激光器产生两个

446.80~448.10 nm 的波长作为光源。探测激光谱线越窄、波长和能量越稳定,越有利于提高探测精度,但会增加系统的复杂性和成本。考虑到  $\text{NO}_2$  的吸收光谱是连续谱,为提高性价比,本文首先简要介绍了  $\text{NO}_2$  DIAL 的结构,根据激光器波长和能量的漂移情况,分析在没有稳定装置条件下波长漂移和能量波动对测量结果的影响,最后给出了波长漂移和能量波动对反演浓度影响的实验和探测大气  $\text{NO}_2$  浓度分布的实验结果。

## 2 波长漂移对探测浓度的影响

新一代测污雷达采用差分吸收光谱技术,系统结构如图 1 所示。该系统采用固体激光器泵浦染料激光器方式产生所需波长。固体 Nd:YAG 激光器(Powerlite8010,美国 Continuum 公司)的 1 064 nm 基频光经 3 倍频后得到波长为 354.7 nm 的激光作为染料激光器的泵浦光。染料激光器(NarrowScan,德国 Radiant Dyes Laser 公司)采用乙醇作为溶剂,香豆素 C450 为染料。泵浦光激发染料 C450 发出荧光,在振荡腔内的光栅选频后输出种子光,通过预放染料池预放大后再由主放大染料池放大并输出。在系统触发器 FPGA trigger 电路的控制下,两台染料激光器以 10 Hz 的频率交替输出 448.10 nm 和 446.80 nm 波长的光,能量约为 5 mJ。两束激光经合束、扩束后通过三维扫描头(3D Scanner)发射到大气中。入射到大气中的激光光束与大气中的气溶胶和分子作用后,产生的后向散射回波由望远镜接收后用光纤导出,然后经准直、衰减、滤光后由光电倍增管(Photomultiplier Tube, PMT)转换为电信号,再由数据采集系统(Digitizer)采集并存储在计算机中进行反演。

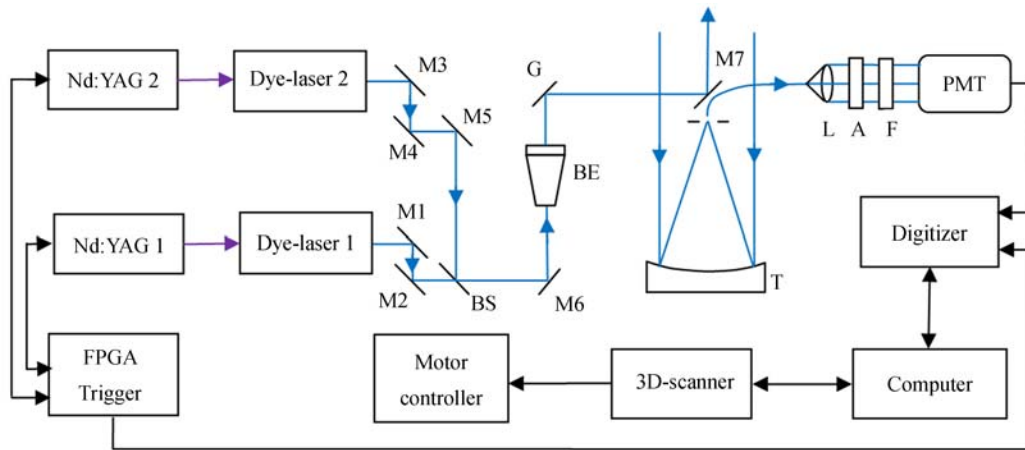


图 1 NO<sub>2</sub> 差分吸收激光雷达系统结构图

Fig. 1 Block diagram of Differential Absorption Lidar(DIAL) system for NO<sub>2</sub> measurement

DIAL 发射的两个波长非常接近,一个位于待测气体的吸收峰,记为  $\lambda_{on}$ ;另一个波长位于待测气体分子的吸收谷或吸收峰外,记为  $\lambda_{off}$ 。设  $P_0$  为发射激光束的功率,  $\eta$  是系统的接收效率,  $\Delta R$  是空间取样距离,  $A$  为望远镜的接收面积,  $N(z)$  是待测气体在距离  $z$  处的分子数密度,  $\sigma(\lambda_{on})$  和  $\sigma(\lambda_{off})$  分别为待测气体分子在波长  $\lambda_{on}$  和  $\lambda_{off}$  处的吸收截面;  $\beta(\lambda_{on}, z)$  和  $\beta(\lambda_{off}, z)$ 、 $\alpha(\lambda_{on}, z)$  和  $\alpha(\lambda_{off}, z)$  分别为波长  $\lambda_{on}$  和  $\lambda_{off}$  在距离  $z$  处的大气后向散射系数和消光系数。由激光雷达方程可得这两个回波分别为<sup>[14-15]</sup>:

$$P_j(R) = P_0 \eta \beta(\lambda_j, R) (A/R^2) \Delta R \cdot \exp\left\{-2 \int_0^R [N(z)\sigma(\lambda_j) + \alpha(\lambda_j, z)] dz\right\}, \quad (1)$$

其中  $j=on, off$ , 即有  $P_{on}(R)$  和  $P_{off}(R)$ , 它们分别为波长  $\lambda_{on}$  和  $\lambda_{off}$  在距离  $R$  处的激光雷达回波信号。

当  $\lambda_{on}$  和  $\lambda_{off}$  相差很小时,这两个波长与气溶胶、大气分子相互作用引起的后向散射系数和消光系数基本相同,可得距离  $R$  到  $R + \Delta R$  之间待测气体分子数密度的平均值  $N(R)$  为:

$$N(R) = \frac{1}{2\Delta R[\sigma(\lambda_{on}) - \sigma(\lambda_{off})]} \times \ln \frac{P(\lambda_{on}, R + \Delta R) P(\lambda_{off}, R)}{P(\lambda_{off}, R + \Delta R) P(\lambda_{on}, R)}. \quad (2)$$

由式(2)可知,待测气体的浓度  $N(R)$  与待测气体分子在波长  $\lambda_{on}$  和  $\lambda_{off}$  处的吸收截面差、差分距离以及两个波长的回波比有关。为了得到较高的探测灵敏度,  $\lambda_{on}$  和  $\lambda_{off}$  的选择要尽可能使波长间隔小且吸收截面差大,如图 2 所示。

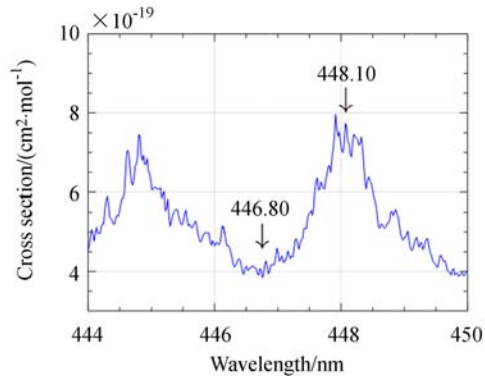


图 2 NO<sub>2</sub> 的吸收截面及  $\lambda_{on}$  和  $\lambda_{off}$  的位置

Fig. 2 Absorption cross section of NO<sub>2</sub> and positions of  $\lambda_{on}$  and  $\lambda_{off}$

当强吸收波长从  $\lambda_{on}$  漂移到  $\lambda_{on} + \Delta\lambda$  时,相对应的吸收截面应为  $\sigma(\lambda_{on} + \Delta\lambda)$ , 则待测气体分子数密度为:

$$N(R) = \frac{1}{2\Delta R[\sigma(\lambda_{on} + \Delta\lambda) - \sigma(\lambda_{off})]} \times \ln \frac{P(\lambda_{on} + \Delta\lambda, R + \Delta R) P(\lambda_{off}, R)}{P(\lambda_{off}, R + \Delta R) P(\lambda_{on} + \Delta\lambda, R)}. \quad (3)$$

但在反演中,仍认为波长没有改变,继续采用  $\sigma(\lambda_{on})$ , 没有对吸收截面做相应的修改。记波长漂移后的反演浓度为  $N'(R)$ , 则有:

$$N'(R) = \frac{1}{2\Delta R[\sigma(\lambda_{on}) - \sigma(\lambda_{off})]} \times \ln \frac{P(\lambda_{on} + \Delta\lambda, R + \Delta R) P(\lambda_{off}, R)}{P(\lambda_{off}, R + \Delta R) P(\lambda_{on} + \Delta\lambda, R)}. \quad (4)$$

由式(3)和式(4)可得因波长漂移而引起的待测气体浓度的相对误差为:

$$\text{Re}(\lambda_{\text{on}}) = \left| \frac{\sigma(\lambda_{\text{on}}) - \sigma(\lambda_{\text{on}} + \Delta\lambda)}{\sigma(\lambda_{\text{on}}) - \sigma(\lambda_{\text{off}})} \right|, \quad (5)$$

由式(5)可知,当强吸收波长  $\lambda_{\text{on}}$  波长没有漂移时 ( $\Delta\lambda=0$ ),相对误差为零;当强吸收波长  $\lambda_{\text{on}}$  漂移到弱吸收波长  $\lambda_{\text{off}}$ 时,相对误差为 100%。图 3 的红曲线是根据  $\text{NO}_2$  吸收截面随波长<sup>[16]</sup>的关系算得的相对误差(彩图见期刊电子版)。由图 3 可知,当强吸收波长  $\lambda_{\text{on}}$  漂移  $\Delta\lambda=0.005 \text{ nm}$  时,待测气体浓度的相对误差为 1%;当漂移  $\Delta\lambda=0.02 \text{ nm}$  时,由于吸收谱线的剧烈变化,待测气体浓度的相对误差为  $\Delta\lambda=14\%$ 。

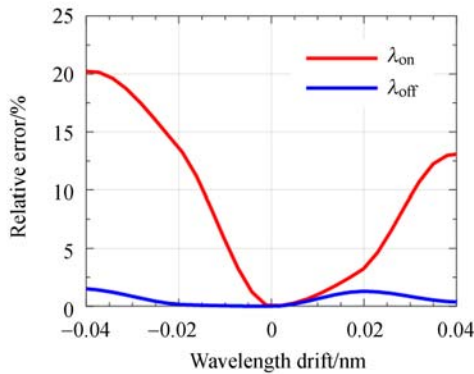


图 3 波长漂移引起的浓度相对误差

Fig. 3 Relative error of  $\text{NO}_2$  concentration introduced by wavelength drift

同理,当弱吸收波长  $\lambda_{\text{off}}$  漂移时,引入的相对误差为:

$$\text{Re}(\lambda_{\text{off}}) = \left| \frac{\sigma(\lambda_{\text{off}} + \Delta\lambda) - \sigma(\lambda_{\text{off}})}{\sigma(\lambda_{\text{on}}) - \sigma(\lambda_{\text{off}})} \right|. \quad (6)$$

图 3 的蓝曲线是弱吸收波长  $\lambda_{\text{off}}$  漂移时引入的相对误差。当弱吸收波长  $\lambda_{\text{off}}$  漂移  $\Delta\lambda=0.04 \text{ nm}$  时,待测气体浓度的相对误差为 2%,误差变化相对缓慢。由以上分析可知,染料激光器波长漂移引起的测量误差的主要影响因素为强吸收。当两个波长都漂移  $\Delta\lambda=0.005 \text{ nm}$  时,待测气体浓度总的相对误差为 3%。染料激光器的波长漂移通常是由温度变化引起的,例如,本测污雷达所用的 NarrowScan 染料激光器的波长偏移率  $\leq 0.001 \text{ nm}/^\circ\text{C}$ ,其长期波长监测的波长变化  $\Delta\lambda$  在  $\pm 0.005 \text{ nm}$  内,引入的  $\text{NO}_2$  浓度总相对误差为 3%。设良好天气条件下  $\text{NO}_2$  浓度为  $20 \times 10^{-9}$ ,则引起的误差为  $0.6 \times 10^{-9}$ 。相比较于探测窄线宽吸收谱线气体(如  $\text{CO}_2$ ),这样的波长漂移引起的误差是可以接受的,这也是本测污雷达没有配

套稳频装置的原因。当然,在进行更高精度的探测或环境温度变化比较剧烈时,则需要增加稳频装置。

### 3 功率漂移对探测浓度及距离的影响

DIAL 的回波是弹性散射回波,回波功率正比于激光的出射功率。染料激光器输出功率的变化来源于泵浦光  $354.7 \text{ nm}$  的功率波动和染料激光器因染料长时间使用而引起的效率下降。在浓度反演中,为了提高信号的信噪比,通常需要对多个回波信号进行统计平均。假设一组信号的两个波长  $\lambda_{\text{on}}$  和  $\lambda_{\text{off}}$  都是由  $M$  发脉冲回波叠加得到,并假定这段时间内的大气参数不变,即:

$$P_j(R) = \sum_{i=1}^M c_i(\lambda_j) P_0 \eta \beta(\lambda_j, R) (A/R^2) \cdot \exp\left[-2 \int_0^R [N(z) \sigma(\lambda_j) + \alpha(\lambda_j, z)] dz\right], \quad (7)$$

其中  $j=\text{on}, \text{off}$ ,  $c_i(\lambda_{\text{on}}) P_0$  和  $c_i(\lambda_{\text{off}}) P_0$  分别是波长  $\lambda_{\text{on}}$  和  $\lambda_{\text{off}}$  各发脉冲的激光输出功率 ( $i=1, 2, \dots, M$ ),即为  $P_0$  的  $c_i(\lambda_{\text{on}})$  和  $c_i(\lambda_{\text{off}})$  倍。于是,待测气体的分子数密度为:

$$N(R) = \frac{1}{2[\sigma(\lambda_{\text{on}}) - \sigma(\lambda_{\text{off}})]} \cdot \frac{d}{dR} \left[ \ln \frac{\sum_{i=1}^M c_i(\lambda_{\text{off}})}{\sum_{i=1}^M c_i(\lambda_{\text{on}})} + \ln \frac{p_{\text{on}}(R)}{p_{\text{off}}(R)} \right] = \frac{1}{2[\sigma(\lambda_{\text{on}}) - \sigma(\lambda_{\text{off}})]} \frac{d}{dR} \left[ \ln \frac{p_{\text{on}}(R)}{p_{\text{off}}(R)} \right]. \quad (8)$$

由式(8)可知,在距离分辨差分吸收激光雷达反演中,由于激光输入功率的变化与距离无关,其反演浓度的差分形式仍然与式(2)相同。虽然,输入功率的波动并不影响 DIAL 的反演浓度分布,但如果波动太大,输入功率下降的通道探测长度将变短。设  $\lambda_{\text{on}}$  波长激光器的输出功率从原来的  $P_0$  下降为  $cP_0$  ( $c < 1$ ),在相同的回波功率条件下,探测距离从  $R_1$  减少至  $R_2$ ,由激光雷达方程可得:

$$R_2 = \sqrt{c} \frac{\beta(R_2)}{\beta(R_1)} R_1 \cdot \exp\left[\int_{R_2}^{R_1} [N(z) \sigma(\lambda_{\text{on}}) + \alpha(\lambda_{\text{on}}, z)] dz\right]. \quad (9)$$

在水平探测时,假设  $\beta(R_1) = \beta(R_2)$ ,  $\alpha(\lambda_{\text{on}}, R) = \alpha$ ,式(9)简化为:

$$R_2 = \sqrt{cR_1 \cdot \exp[\alpha(R_1 - R_2)] \cdot \exp\left[\int_{R_2}^{R_1} N(z)\sigma(\lambda_{on})dz\right]} \quad (10)$$

式(10)是一个非线性方程,设大气消光系数为  $0.6 \text{ km}^{-1}$ , NO<sub>2</sub> 水平分布均匀,浓度为  $29 \times 10^{-9}$ , 波长  $\lambda_{on} = 448.10 \text{ nm}$  时的吸收截面为  $7.229 \times 10^{-23} \text{ m}^2/\text{mol}$ , 并设功率系数分别为  $c = 0.60, 0.80$  和  $0.95$ , 得到的距离变化如图 4 所示。其中,  $R_1$  是激光器输出功率为  $P_0$  时的传播距离,  $R_2$  与  $R_1$  分别为输出功率改变为  $cP_0$  时在相同回波功率条件下 ( $P_{on}(R_1) = P_{on}(R_2)$ ) 的传播距离。

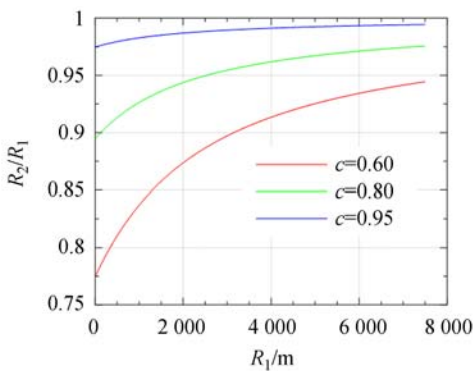


图 4 不同发射功率下的传播距离

Fig. 4 Ratio of  $R_2$  to  $R_1$  as a function of transmission distance at different laser powers

由图 4 可知,在相同回波功率条件下,激光器输出功率越小,传播距离越短,如输出功率为  $P_0$  时,  $R_1 = 4000 \text{ m}$  对应的输出功率为  $0.60P_0, 0.80P_0$  和  $0.95P_0$  时的传播距离  $R_2$  分别为  $3600, 3800$  和  $3950 \text{ m}$ 。当输出功率波动  $\leq 5\%$  时,在传播距离的远端,距离的改变量小于  $100 \text{ m}$ 。

#### 4 实验及结果分析

实验研究了波长漂移和能量波动对反演浓度和探测距离的影响,然后通过一个实例验证了系统对大气 NO<sub>2</sub> 的探测能力。

##### 4.1 波长漂移和能量波动对反演浓度的影响

实验观测前,先对激光器预热,打开染料泵让染料循环  $30 \text{ min}$  后出光。从 Nd:YAG 激光器开始调整、优化光路,使染料激光器在光斑均匀的前提下输出能量最大。调整  $\lambda_{on}$  与  $\lambda_{off}$  两束光路使其合成一束,然后由扩束镜扩束至  $24$  倍后由反射镜导入接收望远镜的次镜 M7,再经三维扫描头

射向大气。用示波器观测经望远镜接收、后继光路分光并由 PMT 转换的回波信号,调整导向镜使回波信号的探测距离尽可能远,并通过调整 Nd:YAG 激光器的泵浦能量,使染料激光器的输出能量在  $5 \text{ mJ}$  附近。

在 NO<sub>2</sub> 浓度反演中,为了提高回波的信噪比,一条廓线通常需要累加多个脉冲数来实现,如本激光雷达通常是  $10 \text{ min}$   $6000$  发脉冲。然而,累加时间过长,由于大气的波动,探测路径上的 NO<sub>2</sub> 浓度可能发生变化。为了比较波长漂移对反演浓度的影响,选择能见度较好的天气进行水平探测。在染料激光器中设置 5 对波长,第一对波长为正常探测使用的波长 ( $\lambda_{on}, \lambda_{off}$ ) = ( $448.10 \text{ nm}, 446.80 \text{ nm}$ ); 第二对波长 ( $448.13 \text{ nm}, 446.80 \text{ nm}$ ),  $\lambda_{on}$  略微偏离原来的正常值,  $\lambda_{off}$  不变; 第三对波长 ( $447.3 \text{ nm}, 446.80 \text{ nm}$ ),  $\lambda_{on}$  位于正常值的  $\lambda_{on}$  和  $\lambda_{off}$  的中间,  $\lambda_{off}$  不变; 第四对波长为 ( $448.10 \text{ nm}, 446.82 \text{ nm}$ ),  $\lambda_{on}$  为正常值,  $\lambda_{off}$  略微偏离原来的正常值; 第 5 对波长为 ( $448.13 \text{ nm}, 446.82 \text{ nm}$ ),  $\lambda_{on}$  和  $\lambda_{off}$  略微偏离原来的正常值; 每对波长测量  $1 \text{ min}$  ( $600$  个脉冲)。

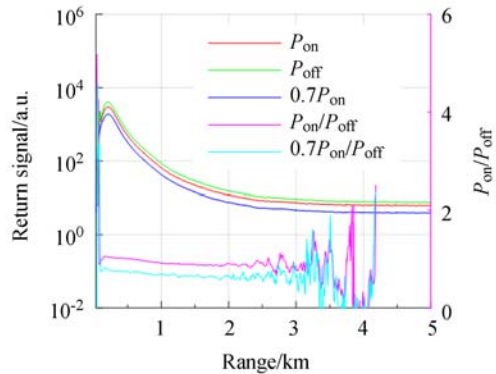


图 5 回波和回波比值

Fig. 5 Laser return signals and ratio

图 5 中的  $P_{on}$  和  $P_{off}$  是第一对波长的回波,  $P_{on}/P_{off}$  是回波比值,可以看出,探测有效距离大约为  $0.5 \sim 3.0 \text{ km}$ , 此后因信噪比不足信号波动较大。若大气是水平均匀分布的,理想的回波比值  $p_{on}(R)/p_{off}(R)$  近似为一条随距离增大而向下倾斜的直线,倾斜程度正比于 NO<sub>2</sub> 浓度。实际大气中 NO<sub>2</sub> 在较大范围内不可能是均匀的,选择处于雷达充满区、信噪比较高并近似直线的  $1.5 \sim 2.0 \text{ km}$  区间信号比值的斜率作为比较依据。5 对波长的测量结果如表 1 所示。

表 1 斜率随波长的变化

Tab. 1 Slope changing with on and off wavelength

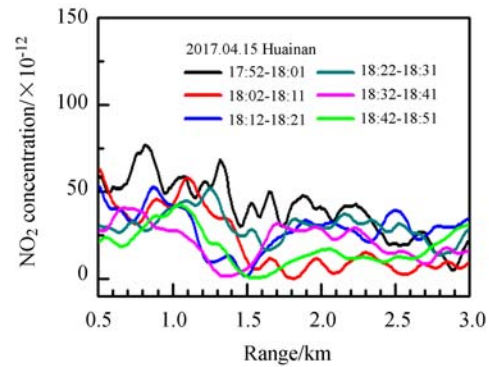
$n$	$\lambda_{on}/\text{nm}$	$\lambda_{off}/\text{nm}$	Slope/ $10^{-5}$
1	448.10	446.80	-3.09
2	448.13	446.80	-3.02
3	447.30	446.80	-0.63
4	448.10	446.82	-3.08
5	448.13	446.82	-3.01

由表 1 可知,第 2、第 4 和第 5 对波长略为偏离原来的正常值,其斜率与第一对波长较为接近;第 3 对波长因  $\lambda_{on}$  波长严重偏离了正常值,其斜率小于正常值。长期对 Narrowscan 染料激光器波长进行监测,得到的波长漂移量  $\leq 0.005$  nm,比第 2、第 4 和第 5 对波长的偏移量还要小,引入的误差不大于 3%。为验证能量波动对反演浓度的影响,降低  $\lambda_{on}$  泵浦能量,使染料激光器的输出能量从 5 mJ 下降到 3.5 mJ,  $\lambda_{off}$  激光器的能量不变,波长均为正常设定值(448.10 nm, 446.80 nm),探测时间为 1 min。图 5 中的  $0.7 P_{on}$  是其回波,  $0.7 P_{on}/P_{off}$  是信号比值。由图可知,降低能量后回波的幅度和传播距离均小于原值。 $0.7 P_{on}/P_{off}$  比值曲线的 2.5 km 后的波动大于  $P_{on}/P_{off}$ ,但两条比值曲线的倾斜程度基本一致,在信噪比较好的 1.4~1.8 km 区间,近似为直线,其斜率均为  $-3.08 \times 10^{-5}$ 。由此可知,能量下降使有效反演距离缩短,但不影响反演浓度。

#### 4.2 用差分吸收激光雷达探测大气 NO<sub>2</sub> 浓度实验及结果分析

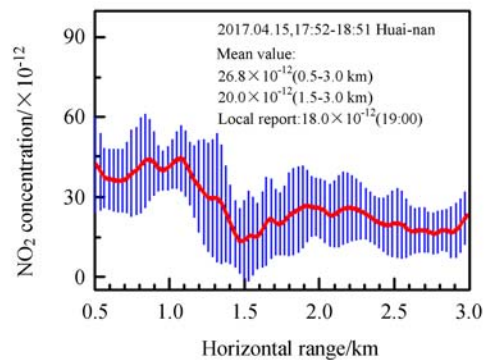
采用本单位研制的 DIAL,在 2017 年 4 月 15 日晚上对淮南大气科学研究院上空的 NO<sub>2</sub> 进行了水平浓度观测实验。DIAL 的工作波长处于可见光波段,为了减小背景辐射的影响,实验选择在夜间进行。同时,为了提高信噪比,每组信号  $\lambda_{on}$  比  $\lambda_{off}$  两个波长各 6 000 个脉冲(对应的采集时间为 10 min)平均而成。对采集到的数据进行扣除背景、平滑滤波、几何因子修正并反演大气 NO<sub>2</sub> 的浓度廓线。测量误差考虑 4 个方面<sup>[17-19]</sup>:(1)与温度和压强有关的 NO<sub>2</sub> 吸收截面的不确定性,通常小于 3%;(2)统计误差,主要包含大气抖动、PMT 和采集卡的电子噪声、激光能量波动和波长漂移引起的误差;(3)仪器误差, on 与 off 波长的两束光合束并与接收望远镜共轴引起的误差,通

常小于  $2 \times 10^{-9}$ ;(4)气溶胶的后向散射和消光引起的误差。在 450 nm 附近其他气体的吸收截面远小于 NO<sub>2</sub>,可不考虑其他气体对 NO<sub>2</sub> 的干扰。修正后的总测量误差小于  $5 \times 10^{-9}$ 。



(a) 水平廓线

(a) Horizontal distribution



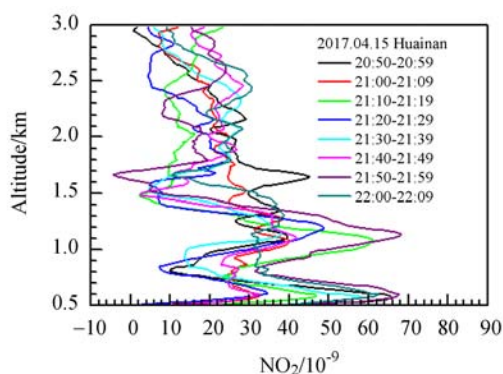
(b) 平均值水平廓线

(b) Mean value of horizontal distribution

图 6 NO<sub>2</sub> 浓度的水平探测廓线Fig. 6 Horizontal profile of NO<sub>2</sub> concentration

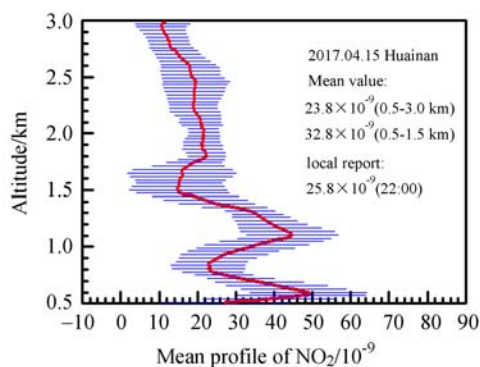
图 6(a)是当晚 17:52 到 18:52 的观测反演结果,每条廓线累计观测 10 min,图 6(b)是平均值和统计误差分布。从图中可以看到,在 3 km 以内,信号信噪比较好,廓线相对集中;3 km 以外,随着探测距离的增大,由于大气的衰减和抖动影响,廓线变化较大,NO<sub>2</sub> 浓度基本在  $0 \sim 70 \times 10^{-9}$  波动。在 0.4~1.5 km 内浓度相对较高,是因为传播路径上 0.8 km 处有工厂当时排放废气中含有较高浓度的 NO<sub>2</sub> 气体。在 1.5~3.0 km 内的平均水平浓度为  $20.9 \times 10^{-9}$ ,与当晚观测时段中国环境监测总站发布的淮南高新区 NO<sub>2</sub> 浓度为  $18 \times 10^{-9}$  基本符合。在 1.5~3.0 km 内

NO<sub>2</sub> 水平平均浓度分布相对平坦,这与大气的水平分布相对均匀有关。



(a) 垂直廓线

(a) Vertical distribution



(b) 平均值垂直廓线

(b) Mean value of vertical distribution

图7 NO<sub>2</sub> 浓度的垂直探测廓线Fig. 7 Vertical profile of NO<sub>2</sub> concentration

图7是当晚测20:50到22:09进行的垂直探测廓线。在0.5~3.0 km内,NO<sub>2</sub>浓度在0~68×10<sup>-9</sup>内波动,其平均值为30×10<sup>-9</sup>。环保部门发布的淮南高新区NO<sub>2</sub>浓度为25.8×10<sup>-9</sup>,与反演结果基本符合。高度1.5 km以下廓线波动较大,1.5 km以上波动相对较小,可能与当晚近地面大气波动较大,上方相对平稳有关。

## 5 结论

差分吸收激光雷达是探测大气NO<sub>2</sub>廓线的有效工具。由于NO<sub>2</sub>的吸收谱线是连续谱,在没有谱线压缩和稳频的条件下,用固体激光器泵浦染料激光器的方式作为光源并交替发射448.10 nm和446.80 nm两个波长。在漂移量相同的情况下强吸收λ<sub>on</sub>波长引起的相对误差比弱吸收λ<sub>off</sub>大。本文研发的DIAL使用染料激光器,其波长漂移量一般小于0.005 nm,引起反演浓度的相对误差≤3%。能量波动没有影响探测的反演浓度,但会影响探测距离,增大统计误差。当能量下降小于5%时,探测距离小于100 m。通过对大气NO<sub>2</sub>浓度的长期观测,系统工作稳定,回波信号可靠,水平廓线测量结果与环保部门的发布值基本一致。因几何因子造成的探测路径前端0.5 km反演不准确问题及反演过程中出现的个别浓度负值,将在后续研究中进行解决。

## 参考文献:

- [1] FINLAYSON-PITTS B J, PITTS JR J N. *Chemistry of the Upper and Lower Atmosphere: Theory, Experiments, and Applications*[M]. San Diego: Academic Press, 1999.
- [2] KANAYA Y, IRIE H, TAKASHIMA H, et al.. Long-term MAX-DOAS network observations of NO<sub>2</sub> in Russia and Asia (MADRAS) during the period 2007-2012: instrumentation, elucidation of climatology, and comparisons with OMI satellite observations and global model simulations[J]. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2014, 14(15): 7909-7927.
- [3] 唐孝炎, 张远航, 邵敏, 等. 大气环境化学[M]. 2版. 北京: 高等教育出版社, 2006.
- [4] TANG X Y, ZHANG Y H, SHAO M, et al.. *Atmospheric Environmental Chemistry*[M]. 2nd ed.. Beijing: Higher Education Press, 2006. (in Chinese)
- [5] 吴丰成, 李昂, 谢品华, 等. 车载多轴差分吸收光谱探测对流层NO<sub>2</sub>分布研究[J]. *物理学报*, 2015, 64(11): 114211.
- [6] WU F CH, LI A, XIE P H, et al.. Detection and distribution of tropospheric NO<sub>2</sub> vertical column density based on mobile multi-axis differential optical absorption spectroscopy[J]. *Acta Physica Sinica*, 2015, 64(11): 114211. (in Chinese)
- [7] SCHOTLAND R M. Some observations of the vertical profile of water vapor by means of a laser optical radar[C]. *Proceedings of the 4th Symposium*

- on Remote Sensing of the Environment, University of Michigan, 1966.
- [6] FREDRIKSSON K, GALLE B, NYSTROM K, *et al.*. Mobile lidar system for environmental probing [J]. *Applied Optics*, 1981, 20(24): 4181-4189.
- [7] KÖLSCH H J, P. RAIROUX, P, WOLF J P, *et al.*. Simultaneous NO and NO<sub>2</sub> DIAL measurement using BBO crystals[J]. *Applied Optics*, 1989, 28(11): 2052-2056.
- [8] MORI H, NAYUKI T, CAO N W, *et al.*. Development of a laser radar using LDS dye and sum frequency generation for NO<sub>2</sub> measurement[J]. *Electrical Engineering in Japan*, 2003, 144(2): 26-33.
- [9] 张寅超, 胡欢陵, 谭轶, 等. AML-1 车载式大气污染监测激光雷达样机研制[J]. *光学学报*, 2004, 24(8): 1025-1031.
- ZHANG Y CH, HU H L, TAN K, *et al.*. Development of a mobile lidar system for air pollution monitoring[J]. *Acta Optica Sinica*, 2004, 24(8): 1025-1031. (in Chinese)
- [10] 陶宗明, 张寅超, 岑岗, 等. 激光雷达探测污染气体最小浓度的估算方法[J]. *光学学报*, 2004, 24(5): 602-604.
- TAO Z M, ZHANG Y CH, CEN G, *et al.*. Estimating method of detecting minimum pollutant gas concentration by Lidar[J]. *Acta Optica Sinica*, 2004, 24(5): 602-604. (in Chinese)
- [11] HU SH X, HU H L, ZHANG Y CH, *et al.*. A new differential absorption lidar for NO<sub>2</sub> measurements using Raman-shifted technique[J]. *Chinese Optics Letters*, 2003, 1(8): 435-437.
- [12] 刘秋武, 王晓宾, 陈亚峰, 等. 基于染料激光器的差分吸收激光雷达探测大气 NO<sub>2</sub> 浓度[J]. *光学学报*, 2017, 37(4): 428004.
- LIU Q W, WANG X B, CHEN Y F, *et al.*. Detection of atmospheric NO<sub>2</sub> concentration by differential absorption Lidar based on dye lasers[J]. *Acta Optica Sinica*, 2017, 37(4): 428004. (in Chinese)
- [13] 林金明, 曹开法, 胡顺星, 等. 差分吸收激光雷达探测二氧化硫实验研究[J]. *红外与激光工程*, 2015, 44(3): 872-878.
- LIN J M, CAO K F, HU SH X, *et al.*. Experiment study of SO<sub>2</sub> measurement by differential absorption lidar[J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2015, 44(3): 872-878. (in Chinese)
- [14] 孙景群. 激光大气探测[M]. 北京: 科学出版社, 1986.
- SUN J Q. *Lidar Atmospheric Detection*[M]. Beijing: Science Press, 1986. (in Chinese)
- [15] 阎吉祥, 龚顺生, 刘智深. 环境监测激光雷达[M]. 北京: 科学出版社, 2001.
- YAN J X, GONG SH SH, LIU ZH SH. *Environment Monitoring Lidar*[M]. Beijing: Science Press, 2001. (in Chinese)
- [16] VOIGT S, ORPHAL J, BURROWS J P. The temperature and pressure dependence of the absorption cross-sections of NO<sub>2</sub> in the 250-800 nm region measured by Fourier-transform spectroscopy[J]. *Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry*, 2002, 149(1-3):1-7.
- [17] SCHOTLAND R M. Errors in the Lidar measurement of atmospheric gases by differential absorption[J]. *Journal of Applied Meteorology*, 1974, 13(1), 71-77.
- [18] 杨子健, 陈锋, 李抄, 等. 微脉冲激光雷达中的光子计数死区时间瞬态效应[J]. *光学精密工程*, 2015, 23(2): 408-414.
- YANG Z J, CHEN F, LI CH, *et al.*. Transient effect of dead time of photon-counting in micro-pulse lidar[J]. *Opt. Precision Eng.*, 2015, 23(2): 408-414. (in Chinese)
- [19] FUKUCHI T, NAYUKI T, CAO N W, *et al.*. Differential absorption lidar system for simultaneous measurement of O<sub>3</sub> and NO<sub>2</sub>: system development and measurement error estimation[J]. *Optical Engineering*. 2003, 42(1): 98-104.

#### 作者简介:



刘秋武(1975—),男,广东潮州人,博士研究生,副教授,2004年于电子科技大学获得硕士学位,主要从事差分吸收激光雷达探测大气痕量气体的研究。E-mail: qwliu@hstc.edu.cn

#### 导师简介:



胡顺星(1966—),男,浙江东阳人,博士,研究员,博士生导师,2004年于中国科学院安徽光学精密机械研究所获得博士学位,主要从事激光雷达大气探测技术方面的研究。E-mail: sxhu@aiofm.ac.cn