

文章编号 1004-924X(2019)08-1697-07

差分吸收激光雷达用于探测 天津市夏秋季臭氧垂直分布特征

秦 龙^{1,2}, 高玉平^{2,3}, 王文秀^{2,3}, 翟鸿哲^{2,3}, 张丽娜^{1,2*}

(1. 天津市环境保护科学研究院, 天津 300191;

2. 天津市大气污染防治重点实验室, 天津 300191;

3. 天津环科瞻云科技发展有限公司, 天津 300191)

摘要:结合差分吸收臭氧激光雷达与近地面臭氧监测,对天津市 2018 年 6 月 23 日至 9 月 28 日期间的臭氧污染垂直分布特征进行了长期观测。结果显示,近地面与 300 m 高度处的臭氧浓度的变化趋势具有较高的一致性,而随着高度的增加,臭氧浓度呈现先升高后降低的趋势,并在约 1 000 m 高度处达到最大值。受臭氧前体物由近地面向高空逐渐输送、以及 NO 向上传输过程中逐渐消耗的影响,臭氧污染日变化曲线出现最大、最小值的时间随高度的升高逐渐推迟;在 1 500 m 以上的高空,臭氧日变化曲线出现双峰分布。在臭氧污染时段,在高空也观测到高浓度的臭氧污染带,在 1 000 m 处的臭氧浓度最大值约为 570 $\mu\text{g}/\text{m}^3$,污染带厚度可超过 1 km,持续时间长达数日,且在夜间不能完全消散。观测时段内总计在 23 个污染日出现高空与近地面臭氧污染的混合,加重了近地面的臭氧污染程度。

关键词:差分吸收激光雷达;臭氧污染带;垂直分布特征;日变化曲线

中图分类号:TN958.98 文献标识码:A doi:10.3788/OPE.20192708.1697

Observation of vertical distribution of ozone based on differential absorption lidar during summer and autumn in Tianjin

QIN Long^{1,2}, GAO Yu-ping^{2,3}, WANG Wen-xiu^{2,3}, ZHAI Hong-zhe^{2,3}, ZHANG Li-na^{1,2,*}

(1. Tianjin Academy of Environmental Sciences, Tianjin 300191, China;

2. Tianjin Air Pollution Control Laboratory, Tianjin 300191, China;

3. Tianjin Foresight Technology Development Co. Ltd, Tianjin 300191, China)

* Corresponding author, E-mail: 120966308@qq.com

Abstract: Differential absorption lidar combined with near-surface ozone monitoring were used to detect the vertical distribution of ozone in Tianjin from Jun. 23 to Sep. 28, 2018. The monitoring results indicated that the ozone concentration at 300 m above ground showed the same variation tendency as the monitoring values obtained near the ground. In the boundary layer of about 300 m to 1 000 m, the ozone concentration increased with height, but it then decreased at higher altitude. The maximum concentration occurred at approximately 1 000 m above ground. The times when the maximum and minimum concentrations occurred in the diurnal variation curve of ozone were delayed

收稿日期:2018-12-28;修订日期:2019-03-15.

基金项目:国家重点研发计划项目(No. 2017YFC0213002);天津市科技计划项目(No. 17ZYPTTG00020)

with increasing altitude. This phenomenon was influenced by the gradual transmission process of ozone precursors from the near-surface level to the upper air and the wastage of nitrogen oxide attributable to its oxidation reaction during the transmission process. Above 1 500 m, the diurnal variation curve of ozone showed a double-peak distribution. During the episodes of ozone pollution, the pollution zone with high ozone concentration could be detected frequently in the upper air. The ozone concentration at 1 000 m could reach about $570 \mu\text{g}/\text{m}^3$, and the thickness of the pollution zone could be greater than 1 km. The ozone at high altitude could last for days and sometimes did not dissipate completely at night. In this research, a mixing phenomenon of ozone pollution between high altitude and the near-surface level, which increased the degree of ozone contamination at the near-surface level, was identified 23 times during the ozone pollution days.

Key words: differential absorption lidar; ozone pollution zone; vertical distribution characters; diurnal variation curve

1 引言

臭氧是对流层中重要的指征性污染物,由于化学性质活泼,能够参与多种大气光化学反应,臭氧对于空气质量下降、大气氧化性升高、气候变化等环境问题具有显著的影响^[1]。夏季持续的高温和强日照天气有利于大气光化学反应的进行,在挥发性有机物(VOCs)与氮氧化物(NO_x)的存在下形成臭氧污染,高浓度的臭氧会对人类健康、动植物及整个生态环境带来严重的危害^[2-3]。近年来,随着我国工业化、城市化进程的快速推进、以及机动车的全面普及,臭氧污染已成为影响我国环境空气质量的重要问题。

近地面臭氧的来源,除了本地臭氧前体物的光化学反应外,还包括上风向臭氧及其前体物的水平传输,以及对流层或平流层臭氧自上而下的输入^[4]。对于分布在高空的臭氧污染物,可以通过臭氧探空法、卫星被动遥感或激光雷达主动遥感技术进行探测,其中差分吸收激光雷达技术由于具有探空分辨率高、探测范围广,能够实现高精度、快速实时、可连续探测等诸多优势,近年来在臭氧及多种大气污染物的遥感探测应用中受到了广泛关注^[5-7]。Shi 等人利用差分吸收激光雷达与臭氧探空仪对对流层臭氧的分布进行了同步探测,发现在使用 750 m 的垂直分辨率、10 min 的监测时间时,激光雷达在 4.8 km 以下高度反演结果的统计误差分别小于 10% 和 20%,表明差分吸收激光雷达能够对臭氧浓度的垂直分布进行有效探测^[8]。Chi 等人对北京市对流层臭氧及其前体

物的垂直分布进行探测,发现在 1 km 以下的边界层内,臭氧浓度与高度间呈正相关性,在雾霾天气下臭氧浓度在夜间呈现分层分布^[9]。项衍等人利用差分吸收激光雷达对杭州地区夏季臭氧的时空分布进行观测,并与 WRF-Chem 模拟结果进行对比,发现两者具有较好的一致性^[10]。Xing 等人利用差分吸收激光雷达探测了上海市臭氧的垂直分布特征,发现区域传输不是造成臭氧污染的主要原因,结合甲醛等前体物的反演结果,证明了本地光化学作用是导致臭氧污染的主要成因^[11]。

近年来,京津冀地区的臭氧污染严重,相关工作主要围绕近地面臭氧污染特征的观测与数值模拟、臭氧来源解析、臭氧与其前体物的控制关系等方向展开^[12],针对臭氧垂直分布特征的研究大多仅对单次臭氧污染事件开展短期的观测分析,研究结论尚不足以反映天津地区高空臭氧污染的整体特征,而基于差分吸收激光雷达技术开展臭氧垂直分布特征的长期观测依然有待开展。本文通过差分吸收臭氧激光雷达与近地面臭氧监测相结合的方法,在 2018 年 6 月 23 日至 9 月 28 日期间,对天津市夏、秋季的臭氧污染开展长期观测,研究臭氧污染的垂直分布特征,并分析高空臭氧污染对近地面的影响。

2 监测点位与监测设备

本研究监测点位设在天津市环境保护科学研究院楼顶(39.1°N , 117.1°E),距地面 12 m,站点邻近中环线,车流量较大,周边有较多居民区,站点周边主要受机动车移动源和生活源污染物排放

的影响,周边没有明显的工业源。

本研究采用怡孚和融 O₃Finder 型臭氧激光雷达进行观测。该设备由激光发射系统、接收光学系统、后继光学系统、信号探测与数据采集系统、控制及显示系统组成,设备结构示意图见图 1。

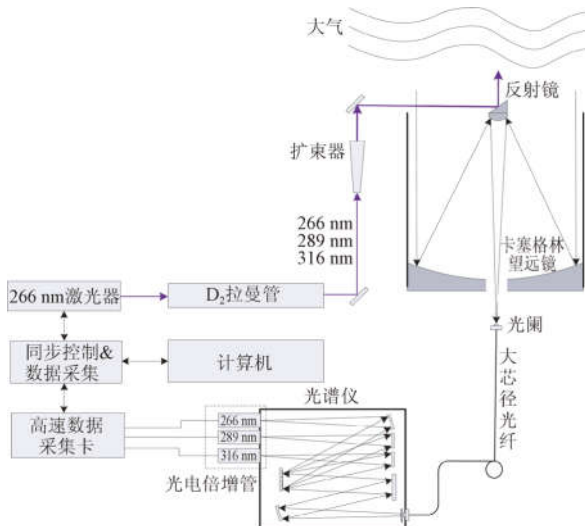


图 1 O₃Finder 型激光雷达结构示意图
Fig. 1 Schematic diagram of O₃Finder lidar

激光雷达使用模块化 ND:YAG 激光器(Q-smart 850),激光器的 266 nm 脉冲激光输出能量为 90 mJ,266 nm 激光经过拉曼频移后获得 289 nm 和 316 nm 的两束激光,输出能量分别为

16 mJ 和 8 mJ,三束激光经过扩束及反射镜反射后射向大气。通过卡塞格林望远镜接收大气中三个波长的后向散射光,使它们会聚于小孔光阑,经由石英光纤传至光谱仪并进行 3 个波长的信号分离,最后经过差分吸收算法反演获得臭氧在高空的垂直分布。激光雷达的观测高度选取 300 ~ 3 000 m,探测的垂直分辨率为 7.5 m,每次观测时长为 10 min,每两次观测间隔 5 min,每小时进行观测 3~4 次。

近地面臭氧浓度通过 Thermo 49i 型臭氧分析仪进行自动监测,基于 Beer-Lambert 定律测定臭氧分子在 254 nm 的吸收,计算臭氧每小时的平均浓度。

3 结果与讨论

3.1 300 m 高空-近地面臭氧浓度相关性分析

图 2 所示为 7 月 1 日~31 日期间,300 m 高度与近地面臭氧浓度的变化趋势图,在剔除降水天气的无效数据后,可发现激光雷达在 300 m 的反演结果与近地面臭氧浓度的变化趋势基本一致,两设备的臭氧变化曲线符合臭氧污染的日变化特征,臭氧浓度高值与低值出现的时间基本一致。与近地面相比,300 m 高度处的臭氧浓度具有更高的峰值、更低的谷值,臭氧激光雷达反演数据与近地面臭氧浓度相比偏高约 16.1%。总体而言,300 m 高度与近地面处臭氧浓度的变化趋势基本一致。

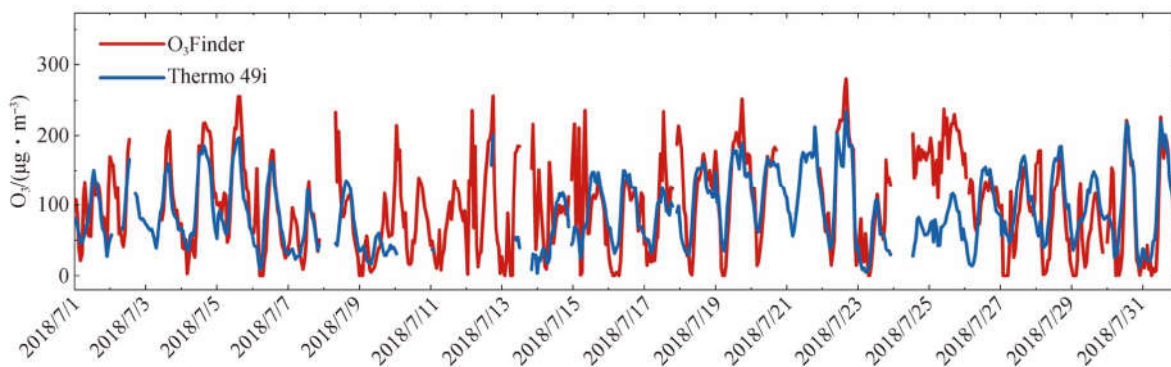


图 2 7 月 1 日~31 日 300 m 高度与近地面的臭氧浓度
Fig. 2 Ozone mean concentration at 300 m and near-surface in July

3.2 臭氧污染垂直分布特征

图 3 所示是监测期间臭氧平均浓度随高度的

变化特征,可以发现随高度的增加,臭氧平均浓度及其标准偏差均呈现先升高后降低的同步变化趋

势。在 1 000 m 高度处臭氧平均浓度达到最大值(约 $170 \mu\text{g}/\text{m}^3$),近地面臭氧浓度仅为 1 000 m 高度处的 48%,臭氧污染程度相对较轻。当高度大于 1 000 m 时,臭氧浓度随高度迅速降低,在高度为 3 000 m 时,臭氧浓度仅为约 $46 \mu\text{g}/\text{m}^3$,为 1 000 m 高度处的 27%。

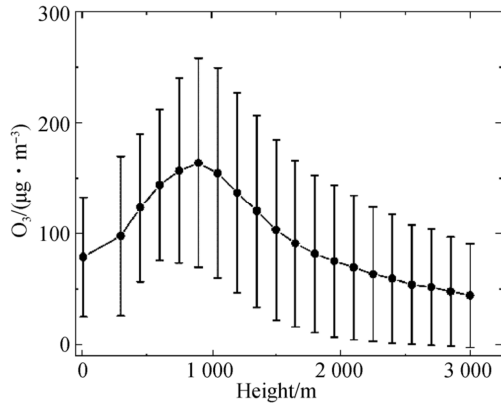


图 3 臭氧平均浓度随高度的变化分布,误差棒为臭氧平均浓度的标准偏差

Fig. 3 Ozone mean concentration at different altitudes. Error bars indicate standard deviation of ozone mean concentration

图 4 所示是不同高度处的臭氧浓度日变化曲线,由图中可以发现,当高度小于 1 000 m 时,臭氧日变化曲线的峰值随着高度的增加逐渐升高;在高度约为 750~1 000 m 时,臭氧的峰值浓度最高约为 $190 \mu\text{g}/\text{m}^3$,约为地面臭氧浓度峰值的 1.5 倍,这与已有的研究结果是一致的^[9];而当高度大于 1 000 m 时,臭氧浓度的峰值与高度呈负相关性,结合图 3 可知,臭氧污染主要集中于地面上方约 1 500 m 的范围内。

臭氧前体物(VOCs、 NO_x 等)由近地面排放源向高空逐渐传输的过程,导致臭氧日变化曲线最大值与最小值的出现时间随高度的增加而逐渐推迟,在 3 000 m 高度处相比近地面处推迟了 5~7 h。臭氧日变化曲线的最低值的出现时间由近地面处的 5~6 h 延迟到 3 000 m 处的 12 h;最高值由近地面处的 14~15 h,延迟至 3 000 m 处的 19~20 h。同时,近地面排放的 NO 在向上输送的过程中被氧化消耗,减弱了高空臭氧的分解能力,导致夜间高空臭氧浓度的下降缓慢,甚至在 1 500 m 以上的高空,在夜间 1~3 h 出现一明显的峰值,使臭氧日变化曲线出现双峰分布,夜间臭氧浓度峰值甚至与午后持平。

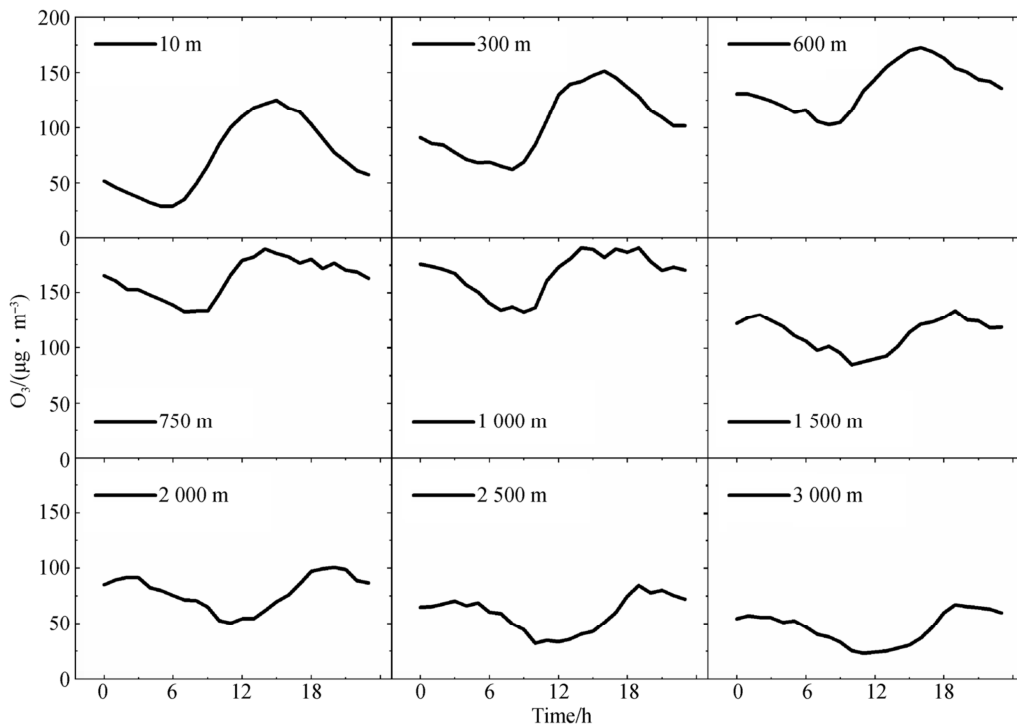


图 4 不同高度层的臭氧浓度日变化曲线,其中 10 m 高度的臭氧浓度日变化曲线通过近地面臭氧分析仪建立

Fig. 4 Diurnal variation curves of ozone concentration at different levels, the curve at 10 m were established by near-surface ozone analyzer

3.3 不同高度层臭氧浓度相关性分析

为了研究不同高度层间臭氧浓度的变化关系,这里计算了各个高度层臭氧浓度间的皮尔森相关系数,每个高度层均包括 6 月 23 日至 9 月 28 日期间获得的 2 278 个臭氧浓度的每小时平均值。如表 1 所示,近地面与 300,500 和 750 m 高度处的臭氧浓度间的相关系数大于 0.5,具有一定的相关性,而与 1 000 m 甚至更高处的臭氧浓

度几乎不具有相关性。对于表中任意两个相邻高度层之间,相关系数基本保持在 0.5 以上,仅在 1 000 m 与 1 500 m 间出现低相关系数(0.37),说明在这两个高度之间,臭氧污染具有不同的变化趋势,这主要是受大气边界层的影响,其上部和下部的混合不充分导致的。而在 1 000 m 以下和 1 500 m 以上的两个高度范围,臭氧浓度的变化显示出更高的连续性。

表 1 不同高度层臭氧浓度间的相关系数

Tab. 1 Correlation coefficient of ozone concentration between different altitudes (m)

	近地面	300	500	750	1 000	1 500	2 000	2 500	3 000
近地面	1.00								
300	0.66	1.00							
500	0.67	0.56	1.00						
750	0.56	0.40	0.81	1.00					
1 000	0.44	0.30	0.68	0.80	1.00				
1 500	0.05	0.04	0.25	0.19	0.37	1.00			
2 000	-0.13	-0.10	0.02	-0.05	0.07	0.65	1.00		
2 500	-0.25	-0.21	-0.12	-0.15	-0.05	0.47	0.84	1.00	
3 000	-0.30	-0.24	-0.15	-0.17	-0.08	0.38	0.72	0.88	1.00

3.4 高空臭氧污染带及其对近地面臭氧浓度的影响

6 月 23~27 日期间,天津市连续出现多日的臭氧污染,如图 5 所示,在约 300~1 800 m 的高空,从 23 日起出现高浓度臭氧污染带,在约 1 km 高度处,臭氧浓度的最大值约为 570 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 。入夜后,高空的臭氧污染不能完全消散,持续至第二日,形成了持续时间长达 3 日的高空臭氧污染,其中 6 月 26 日由于天津市出现多云天气,激光无法有效穿透云层对高空臭氧分布情况进行探测,但

在天气转晴,激光雷达能够对高空臭氧进行有效探测后,依然能在约 1 km 的高空观测到高浓度臭氧污染,污染持续至 27 日 4 时。在 6 月 23 日~9 月 28 日的观测时段内,天津市共出现臭氧污染 44 天,参照《环境空气质量标准》规定的臭氧浓度二级限值,在出现臭氧污染的 44 天内,在 300~3 000 m 的高空均有臭氧污染出现。这一现象说明,天津市高空出现了持续多日的高浓度臭氧污染,且高空多与近地面处的臭氧污染相伴出现。

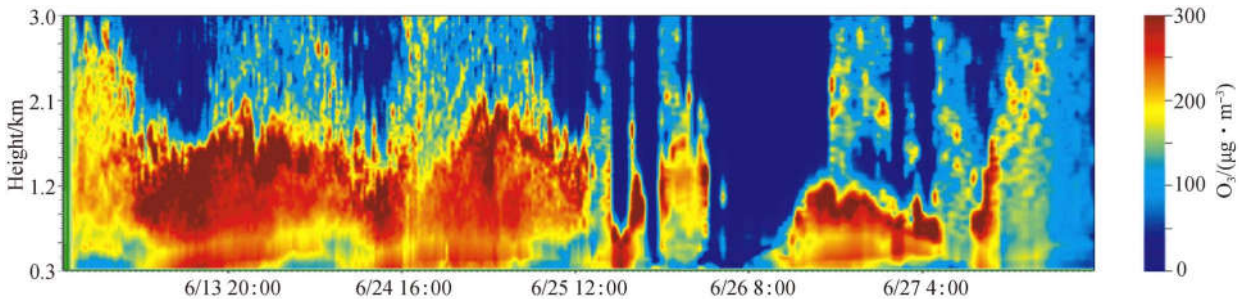


图 5 6 月 23 日~27 日臭氧垂直分布

Fig. 5 Vertical distribution of ozone from June 23 to June 26

如图 5 所示, 6 月 23~26 日午后, 在低对流层(约 300~1 000 m)均可观测到高浓度的臭氧污染, 其中高度约为 550 m 处与相邻的其它高度层相比, 臭氧浓度升高较慢、浓度较低, 说明在 550 m 的相邻高度层间, 臭氧污染物发生垂直扩散, 使高空与近地面臭氧污染在垂直方向出现混合。这一现象在高空气流出现强烈下沉时加重了低对流层甚至近地面的臭氧污染程度。

观测期间的 44 个臭氧污染日中, 总计在 23 个污染日出现高空与近地面臭氧污染的混合,

出现频次约占臭氧污染总日数的 52%。图 6 所示是 7 月 22 日午后出现的一次高空与近地面臭氧污染的混合过程, 低对流层的臭氧浓度明显升高, 导致午后近地面臭氧浓度始终保持在峰值水平, 造成臭氧日最大 8 小时的平均浓度升高, 出现臭氧中度污染。高空与近地面臭氧污染物发生混合的现象主要出现在夏季, 进入 9 月后, 在臭氧污染时段未观测到高空臭氧的沉降。历次观测结果表明, 在适当的气象条件下, 存在于高空的高浓度臭氧污染带会导致近地面臭氧污染程度的恶化。

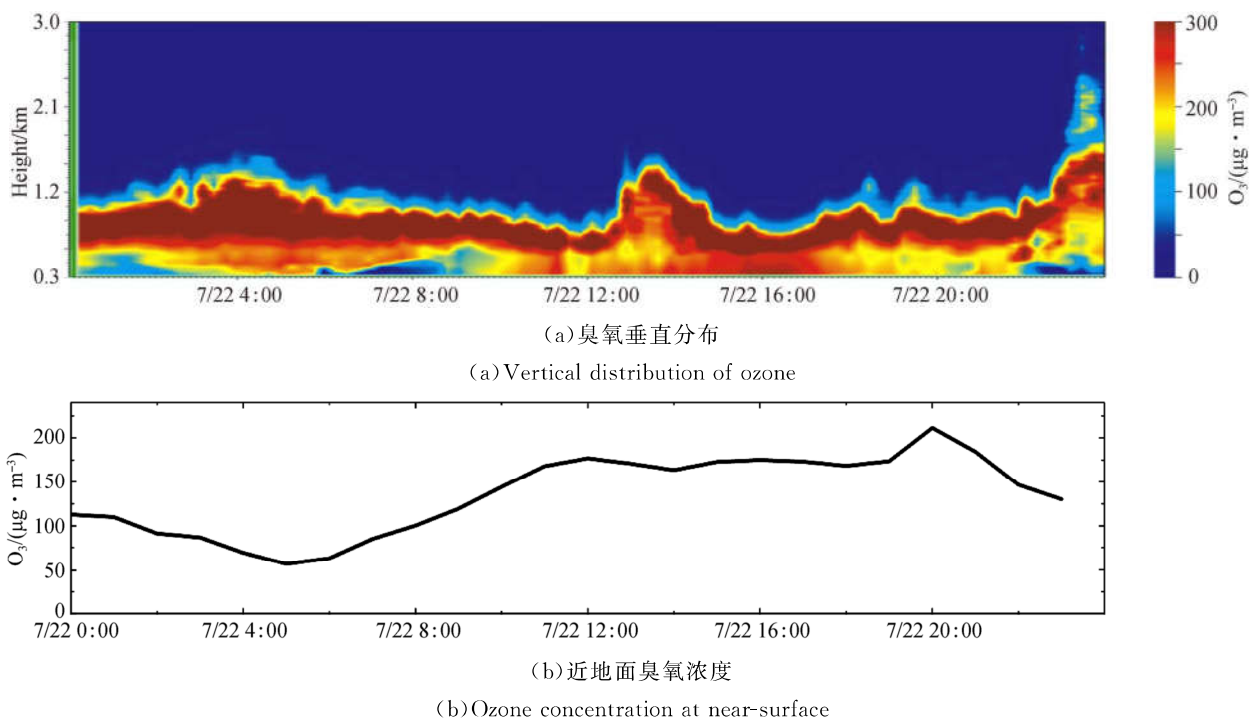


图 6 7 月 22 日高空与近地面的臭氧垂直分布

Fig. 6 Vertical distribution of ozone at high altitude and near-surface on 22nd July

4 结 论

通过臭氧差分吸收激光雷达与近地面臭氧监测相结合的方法, 能够对臭氧污染的垂直分布进行有效的探测, 并为研究高空臭氧污染对近地面空气质量的影响提供新的技术手段。对天津市 2018 年 6 月 23 日至 9 月 28 日期间的臭氧污染进行观测研究, 结果表明: 近地面与 300 m 高度处的臭氧浓度具有一致的变化趋势, 随着高度的增大, 臭氧浓度呈现先升高后降低的趋势, 并在约 1 000 m 高度处达到最大值。受臭氧前体物由近

地面向高空的传输过程, 以及 NO 在向上传输过程中被氧化消耗的影响, 臭氧污染日变化曲线的最大、最小值的出现时间随高度的升高逐渐推迟, 并在 1 500 m 以上的高空, 臭氧日变化曲线出现双峰分布。在臭氧污染日, 均可在高空观测到相伴出现的高浓度臭氧污染带, 高空臭氧浓度可达约 $570 \mu\text{g}/\text{m}^3$, 污染带厚度可超过 1 km, 持续时间可长达数日, 且在夜间不能完全消散。臭氧污染时段内共计观测到 23 次高空与近地面臭氧污染物的混合, 出现频次为臭氧污染总日数的 52%, 这一现象出现时近地面的臭氧污染程度会加重。

参考文献:

- [1] WANG T, WEI X L, DING A J, *et al.*. Increasing surface ozone concentrations in the background atmosphere of Southern China, 1994—2007 [J]. *Atmos. Chem. Phys.*, 2009, 9: 6217-6227.
- [2] 徐慧,张晗,邢振雨,等. 厦门冬春季大气 VOCs 的污染特征及臭氧生成潜势 [J]. *环境科学*, 2015, 36(10): 11-17.
- XU H, ZHANG H, XING ZH Y, *et al.*. Pollution characteristics and ozone formation potential of ambient VOCs in winter and spring in Xiamen [J]. *Environmental Science*, 2015, 36(10): 11-17. (in Chinese)
- [3] BRAUER M, FREEDMAN G, FROSTAD J, *et al.*. Ambient air pollution exposure estimation for the global burden of disease 2013 [J]. *Environ. Sci. Technol.*, 2016, 50: 79-88.
- [4] THOMPSON A M, YORKS J E, MILLER S K, *et al.*. Tropospheric ozone sources and wave activity over Mexico City and Houston during MILAGRO/Intercontinental Transport Experiment (INTEX-B) Ozone Sonde Network Study, 2006 (IONS-06) [J]. *Atmos. Chem. Phys.*, 2008, 8: 5113-5125.
- [5] 范广强,张天舒,付毅宾,等. 差分吸收激光雷达监测北京灰霾天臭氧时空分布特征 [J]. *中国激光*, 2014, 41(10): 1014003-1-1014003-8.
- FAN G Q, ZHANG T SH, FU Y B, *et al.*. Temporal and spatial distribution characteristics of ozone based on differential absorption lidar in Beijing [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2014, 41(10): 1014003-1-1014003-8. (in Chinese)
- [6] 刘秋武,陈亚峰,王杰,等. 差分吸收 NO₂ 激光雷达波长漂移和能量波动对浓度反演的影响 [J]. *光学精密工程*, 2018, 26(2): 253-260.
- LIU Q W, CHEN Y F, WANG J, *et al.*. Effects of wavelength shift and energy fluctuation on inversion of NO₂ differential absorption lidar [J]. *Opt. Precision Eng.*, 2018, 26(2): 253-260. (in Chinese)
- [7] 曹开法,黄见,胡顺星,等. 边界层臭氧差分吸收激光雷达 [J]. *红外与激光工程*, 2015, 44(10): 2912-2917.
- CAO K F, HUANG J, HU SH X, *et al.*. Boundary layer ozone differential-absorption lidar [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2015, 44(10): 2912-2917. (in Chinese)
- [8] KUANG S, BURRIS J F, NEWCHURCH M J, *et al.*. Differential absorption lidar to measure sub-hourly variation of tropospheric ozone profiles [J]. *IEEE Trans. Geosci. Electron.*, 2011, 49(1): 557-571.
- [9] CHI X Y, LIU CH, XIE ZH Q, *et al.*. Observations of ozone vertical profiles and corresponding precursors in the low troposphere in Beijing, China [J]. *Atmos. Res.*, 2018, 213: 224-235.
- [10] 项衍,刘建国,张天舒,等. 基于差分吸收激光雷达和数值模式探测杭州夏季臭氧分布 [J]. *光学精密工程*, 2018, 26(8): 1882-1887.
- XIANG Y, LIU J G, ZHANG T SH, *et al.*. Differential absorption lidar combined with numerical model used for detecting distribution of ozone during summer in Hangzhou [J]. *Opt. Precision Eng.*, 2018, 26(8): 1882-1887. (in Chinese)
- [11] XING C Z, LIU C, WANG S S, *et al.*. Observations of the vertical distributions of summertime atmospheric pollutants and the corresponding ozone production in Shanghai, China [J]. *Atmos. Chem. Phys.*, 2017, 17: 14275-14289.
- [12] XU J, MA J Z, ZHENG S, *et al.*. Measurements of ozone and its precursors in Beijing during summertime: impact of urban plumes on ozone pollution in downwind rural areas [J]. *Atmos. Chem. Phys.*, 2011, 11: 12241-12252.

作者简介:



秦 龙(1988—),男,北京人,博士,工程师,2015年于南开大学获得博士学位,主要从事大气环境痕量气体的激光雷达探测研究。E-mail: qinlongad@163.com

通讯作者:



张丽娜(1982—),女,天津人,工程师,2007年于南京农业大学获得硕士学位,主要从事臭氧污染监测与污染防治技术的研究。E-mail: 120966308@qq.com