

拉曼散射激光雷达反演二氧化碳测量结果的可靠性分析

苑克娥, 张世国, 胡顺星, 林金明, 邵石生, 曹开法, 黄 见, 徐之海, 徐惠玲

(中国科学院安徽光学精密机械研究所 中国科学研究院大气成分与光学重点实验室, 安徽 合肥 230031)

摘 要: 拉曼散射法测量大气二氧化碳(CO₂)是一种利用大气中 CO₂ 分子和 N₂ 分子与激光相互作用产生 Raman 散射频移来实现探测 CO₂ 混合比分布的探测技术。介绍了中国科学院安徽光学精密机械研究所自主研发的拉曼散射激光雷达系统, 以及用于大气 CO₂ 时空间分布测量的原理和方法。将两台事先校准过的 CO₂ 分析仪布置在激光雷达水平光路的发射端和 1km 位置进行同时测量, 实验结果表明: 两台分析仪分别与激光雷达近端和远端得到的 CO₂ 混合比随时间的变化具有较好的一致性, 统计一整夜测量结果的平均值分别相差 0.8ppm 和 3.51ppm; 结合激光光路下垫面的不同对近端与远端结果的差异进行了分析说明, 充分表明了拉曼散射激光雷达测量结果的可靠性。

关键词: 拉曼散射激光雷达; 大气二氧化碳; 混合比

中图分类号: TN958.96 **文献标志码:** A **文章编号:** 1007-2276(2014)04-1135-05

Reliability analysis of Raman scattering lidar for measurement of atmospheric carbon dioxide profiles

Yuan Ke'e, Zhang Shiguo, Hu Shunxing, Lin Jinming, Shao Shisheng,
Cao Kaifa, Huang Jian, Xu Zhihai, Xu Huiling

(Key Laboratory of Atmospheric Composition and Optical Radiation, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China)

Abstract: Raman scattering lidar is an important technique, which has the high space-time resolution, can measure atmospheric carbon dioxide mixture ratio profiles in real time. It is based on the Raman scattering frequency shift caused by laser and atmospheric CO₂ or N₂ interaction. A Raman scattering lidar system developed by Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, was introduced. And the theory and method for atmospheric CO₂ space-time measurement were expatiated on. Two CO₂ analyzers prior calibrated by each other, which tested the lidar's results reliability, were placed in the sites of transmitting terminal and one kilometer distance along the laser path. Experiment results displayed the two analyzers have good consistency with the lidar's in near-end and far-end respectively, where there are 0.8 ppm and 3.51 ppm difference in whole night averaged values. It was explained that the difference of CO₂ mixture ratio in near-end and far-end. Thus atmospheric CO₂ profiles monitored by Raman scattering lidar have authenticity and reliability.

Key words: Raman scattering lidar; atmospheric carbon dioxide; mixture ratio

收稿日期: 2013-08-08; 修订日期: 2013-09-06

基金项目: 国家自然科学基金(41005015); 中国科学院知识创新方向性项目(KJCX2-EW-N07);

科技部基础性工作专项重点项目(2007FY110700)

作者简介: 苑克娥(1979-), 女, 博士, 主要从事激光雷达大气探测和激光大气传输特性研究。Email: keyuan@aiofm.ac.cn

0 引言

CO₂ 气体约占地球大气总量的 0.03%，对于人类的生存至关重要，它对太阳短波辐射几乎透明，而对地表向大气辐射的长波辐射具有强烈的吸收作用，因而对地表产生“温室效应”^[1-2]。随着矿物燃料燃烧的增多和人类工业活动的逐渐频繁，地球 CO₂ 气体浓度呈现逐年升高的趋势。自 20 世纪 50 年代至今，大气中 CO₂ 含量的年平均值是 347.28 ppm (1 ppm=1×10⁻⁶)，标准差是 22.23 ppm^[3]，近年来的数值明显高于平均值，2012 年达到创纪录的 393.14 ppm，为历史之最^[4]。

自工业革命以来，人们开始关注对大气中 CO₂ 含量的精确测量，全方位、甚至全球范围测量大气 CO₂ 是国内外专家研究的重要课题之一，主要包括地面定点测量，近地面大范围的空间分布测量，机载仪器大范围测量，星载仪器全球范围的柱含量测量和空间分布测量等。目前，受到测量技术和研究经费的限制，大气 CO₂ 的测量以定点的地面和近地面测量为主，CO₂ 空间分布的测量方法非常少，气球探空、飞机和火箭等样品采集测量方法实施非常麻烦且费用高，是一般科学研究无法完成的，因此，CO₂ 数据地面结果较为丰富，空中分布数据却极为稀有。相对于大气 CO₂ 的平均值，CO₂ 的变化量非常小，要求监测设备的测量精度高。激光的高亮度、高准直性和短脉冲特性，使得激光雷达具有较高的探测灵敏度和空间分辨能力^[5-8]，拉曼散射激光雷达成为大气 CO₂ 测量中极具有效的手段之一。

中国科学院安徽光学精密机械研究所于 2010 年成功研制了国内首台具有自主知识产权的大气 CO₂ 拉曼激光雷达，胡顺星课题组已经对该雷达系统初步的观测结果进行了报道^[9-12]。文中在前期研究的基础上，首先介绍了雷达系统的结构以及探测原理，其次对该雷达系统测量结果的可靠性设计了实验验证方案，并对实验结果进行了详细的分析和探讨，最后结合光路下垫面的不同对雷达近端与远端测量结果的差异进行了阐述说明。

1 大气 CO₂ 拉曼散射激光雷达系统及其测量原理

CO₂ 拉曼雷达系统主要由四部分组成：激光发

射单元、光学接收单元、信号探测与采集单元以及控制单元，其结构框图如图 1 所示。YAG 激光器发出的 1 064 nm 波长的激光与经过倍频晶体之后的 532 nm 波长的激光在 BBO 晶体合频产生 355 nm 的激光，经光路中的 45°M1、M2 反射镜及扩束镜后入射到大气中。该激光束与大气中的 CO₂ 和 N₂ 发生相互作用，分别产生 CO₂ 的拉曼散射作用和氮气的拉曼散射作用，拉曼散射回波光光子数(强度大小)的多少与该气体的分子密度成正比。利用两路探测系统接收大气中不同高度上 CO₂ 分子和 N₂ 分子拉曼后向散射光的回波信号，可以得到 CO₂ 气体的混合比。表 1 给出了该雷达系统的主要技术参数，其中 CO₂ 和 N₂ 通道的滤光片中心波长为 371.68 nm 和 386.66 nm，带宽分别为 0.5 nm 和 1 nm，有效实现了天空背景信号和噪声信号的压制。

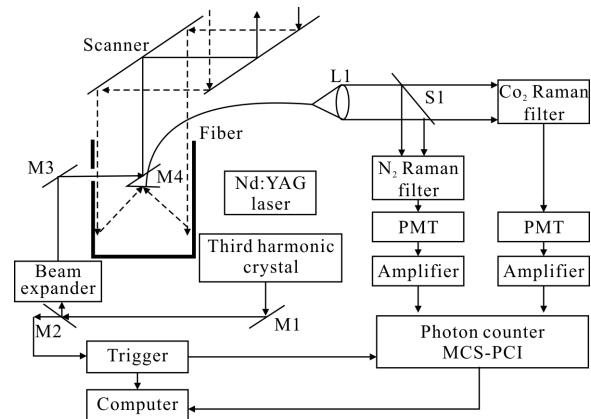


图 1 大气 CO₂ 拉曼散射激光雷达系统结构框图

Fig.1 Raman scattering lidar system diagram for CO₂ measurement

表 1 拉曼散射激光雷达系统的主要技术参数

Tab.1 Main specifications for Raman scattering

lidar system

Unit	Specification	
Laser transmitter	Laser type	Quantel brilliant B Nd:YAG
	Wavelength(nm)/pulse repetition(Hz)	354.7/20
	Puls energy(mJ)/stability(%)	80±3
	Divergence(nrad)/expander	0.5/4
	Efficiency diameter(nm)	300
Scanner	Scanning spatial range	360°(horizontgal)×90°(vertial)
	Telescope type/diameter(nm)	Newtonian/300
Optical receiver	Focus length(nm)/FOV(mrad)	665/0.15

续表 1

Unit	Specification	
Coupled fibre	Diameter(mm)/numerical aperture/transmission	1.2/0.22/99.9%
	Central-wavelength(nm)/aperture(nm)	371.71/25.4 386.7/25.4
Filter	Band-width(nm)/transmission(%)	0.5/>60 1.0/>60
	Detector/photon counter	9214QB/MCS-PCT
Signal detection and data acquisition	Preamplifier	VT120A
	Timer sequence controller	DG535
	Computer	Main frequency 2.5G

根据拉曼激光雷达方程^[13]容易推得 CO₂ 的体积混合比 q_{CO_2} 满足:

$$q_{CO_2}(z) = C_s \frac{T(\lambda_{N_2}, z) P_{\lambda_{CO_2}}(z)}{T(\lambda_{CO_2}, z) P_{\lambda_{N_2}}(z)} \quad (1)$$

式中: C_s 为拉曼雷达系统标定常数, 取决于雷达系统硬件参数及大气 CO₂ 和 N₂ 的后向散射微分截面等, 通常利用地面 CO₂ 分析仪同时测量的结果进行定标获得^[10]。 $\frac{T(\lambda_{N_2}, z)}{T(\lambda_{CO_2}, z)}$ 为大气透过率修正函数, 其中 $T(\lambda_{N_2}, z)$ 、 $T(\lambda_{CO_2}, z)$ 为高度 z 处的 N₂、CO₂ 拉曼回波信号的透过率, 测量低对流层条件时, 因拉曼散射波长 λ_{CO_2} 与 λ_{N_2} 相差不大, 故可以忽略透过率修正函数的影响。 $P_{\lambda_{CO_2}}$ 、 $P_{\lambda_{N_2}}$ 为探测器接收到的高度 z 处 CO₂、N₂ 拉曼回波光子数。通过定标获得雷达系统常数 C_s 后即可利用公式(1)实现 CO₂ 混合比随距离分布的探测结果。

结合公式(1)及误差传递理论, 拉曼雷达测量 CO₂ 混合比的误差主要是系统定标常数、大气透过率函数以及回波信号三项的相对不确定共同作用的结果, 参考文献[10]已经做了较为细致的分析, 结果表明回波信号的不确定度占主要因素, 并通过垂直测量的实验结果分析得出, 在较好的天气条件下, 1 km 高度范围内, 拉曼激光雷达的测量不确定性可控制在 1.2 ppm 内, 在 2 km 高度范围内可控制在 2.5 ppm 内。

2 CO₂ 测量结果的可靠性验证

大气 CO₂ 拉曼激光雷达系统具有三维空间扫描

功能, 它可以指向大气的任何方向。前文已经提到拉曼激光雷达的数据反演方法是通过近距离的 CO₂ 分析仪标定, 即由近距离的 CO₂ 和 N₂ 的拉曼散射回波信号之比与 CO₂ 分析仪的测量结果进行比较, 得到系统定标系数, 然后获得整个有效探测距离上 CO₂ 的混合比。

2.1 近端信号的可靠性验证

将拉曼激光雷达定标后得到的近端 (通常指 60~120 m 高度平均值) 结果随时间的变化与分析仪同时测量结果的变化趋势进行比对, 结果如图 2 所示。图 2(a)和(b)测量时间分别是 2011 年 12 月 3 日晚至 12 月 4 日凌晨和 2012 年 1 月 11 日晚。可以看出拉曼激光雷达和 CO₂ 分析仪的观测结果变化趋势非常一致, 两者平均相差分别为 2.31 ppm 和 1.58 ppm, 表明了拉曼激光雷达近端探测大气 CO₂ 变化量的能力。

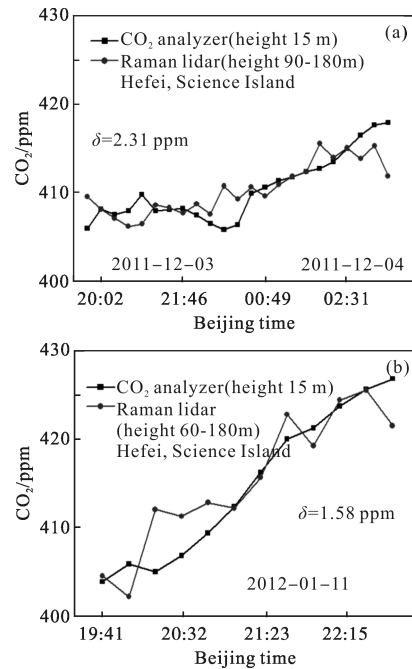


图 2 拉曼激光雷达近端观测结果与 CO₂ 分析仪的结果对比

Fig.2 CO₂ results of Raman lidar in near-end compared with those from analyzer

2.2 远端信号的可靠性验证

为进一步验证拉曼激光雷达远端探测结果的可靠性, 设计了如图 3 所示的验证方案。调节激光雷达扫描头使之实现水平测量, 在激光雷达近端和激光穿过路径上约 1 km 处各放置一台 CO₂ 分析仪, 利用近端分析仪测量的结果为雷达系统进行定标。实验

开展之前, 首先将两台 CO₂ 分析仪放置在同一地点同时进行采集, 图 4 展示的是两台分析仪同时测量结果的比对与相关性分析, 由此表明这两台分析仪的结果具有很好的自洽性和一致性。

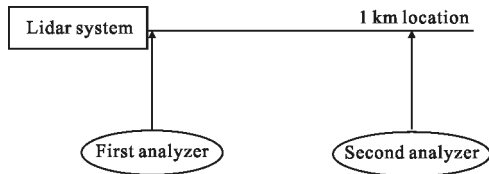


图 3 拉曼激光雷达探测大气 CO₂ 实验结果可靠性验证实验示意图

Fig.3 Schematic diagram of experimental results reliability verification of atmospheric CO₂ Raman scattering lidar

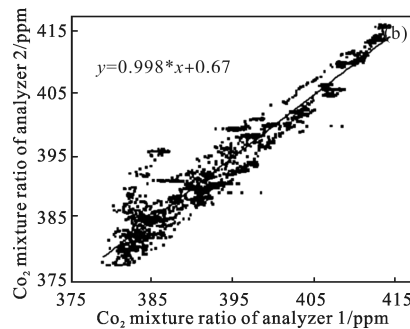
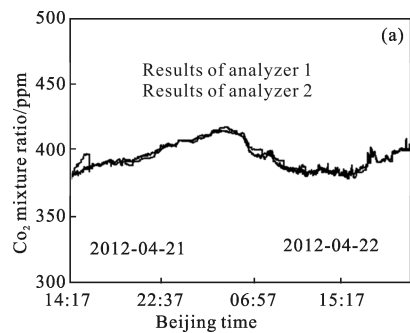


图 4 两台分析仪放置在同一地点同时测量结果的对比

Fig.4 Comparison of results from the two analyzers in the same place

图 5 给出的是 2012 年 5 月 10 日至 5 月 11 日

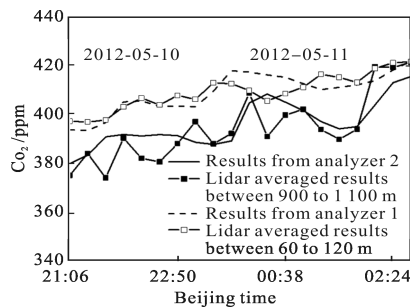


图 5 激光雷达近端与远端结果与两台分析仪的对比

Fig.5 Respectively comparison of results between lidar in near-end and analyzer 1, and lidar in far-end and analyzer 2

通宵实验激光雷达测量的近端和远端 CO₂ 混合比随时间的变化趋势。可以看出, 不仅雷达近端测量的结果与分析仪 1 测量的结果具有较好的一致性, 而且雷达远端测量的结果与 1 km 处放置的分析仪 2 的测量结果在数值上大致相等, 随时间的变化趋势也具有较好的一致性。

对拉曼激光雷达一整夜获得的 CO₂ 混合比水平分布的 22 组廓线(累积 17 min 得到一组数据)进行了统计分析, 并将两台分析仪同时测量的平均值及起伏方差对比结果显示在图 6 中。可以看出, 激光雷达

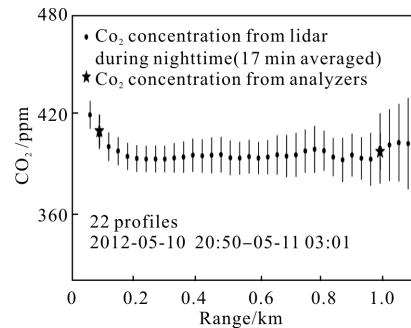


图 6 CO₂ 拉曼散射激光雷达测量结果的可靠性验证

Fig.6 Verifying reliability of measurement results of CO₂ Raman scattering lidar

测量的近端 60~120 m 范围内 CO₂ 平均混合比为 409.7 ppm, 起伏方差为 8.47 ppm, 远端 900~1100 m 范围内 CO₂ 平均混合比为 394.39 ppm, 起伏方差为 13.89 ppm, 而分析仪 1 一整夜得到的 CO₂ 平均混合比为 410.5 ppm, 起伏方差为 9.4 ppm, 分析仪 2 一整夜得到的 CO₂ 平均混合比为 397.9 ppm, 起伏方差为 10.9 ppm, 即说明近端和远端两位置处 CO₂ 的平均值分别与两分析仪的平均值相差 0.8 ppm 和 3.51 ppm, 表明拉曼雷达近端和远端的结果在数值与起伏方差上都与两台分析仪的结果具有较好的一致性。图中显示雷达远端结果的起伏较大, 这主要是由于远端信号的信噪比引起的。同时近端数值大于远端数值, 这主要是由于实验时激光下垫面近距离(200 m 内)为草地, 远距离为空旷的湖面, 而草地上的 CO₂ 浓度比水面上的要高。这间接表明大气和水面的相互作用中, 夜间的水面可能起到了 CO₂ 汇的作用。俄罗斯大气光学研究所在贝加尔湖有一“大气与水面”作用的观测站, 其研究结果表明夜间大气 CO₂ 通过水面由大气进入水中(见图 7), 其研究结果也佐证了拉曼散射激光雷达观测结果的合理性。

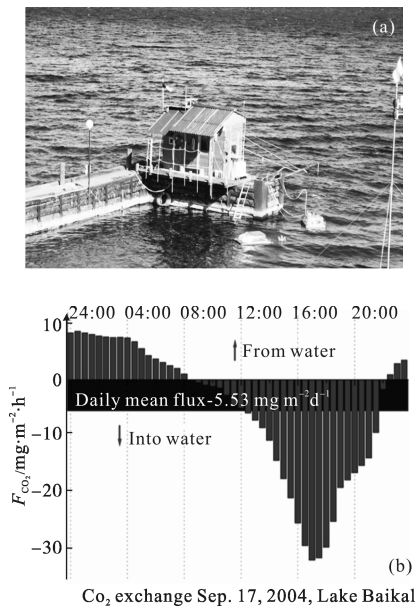


图7 贝加尔湖“大气-水面”作用的观测站和“大气-水面”系统的CO₂日动态流

Fig.7 Remote station of Baikal and daily dynamics of CO₂ flux in system atmosphere-limnological observatory “atmosphere-water surface”

3 结论

拉曼散射激光雷达具有较高的探测灵敏度和空间分辨率,可以实现大气二氧化碳的高精度测量。文中介绍了拉曼散射激光雷达系统及其测量大气CO₂时空间分布的原理;设计了雷达测量结果可靠性验证的实验方案,将布置在雷达发射端和1 km处的两台CO₂分析仪与激光雷达同时测量,对结果进行了分析,发现两台分析仪分别与激光雷达近端和远端得到的CO₂混合比随时间的变化具有较好的一致性,统计一整夜测量结果的平均值分别相差0.8 ppm和3.51 ppm。

参考文献:

[1] Wu Dui. Greenhouse Gases and Greenhouse Effect [M]. Beijing: Meteorological Press, 2003. (in Chinese)
 [2] Li Xueyong, Qin Dahe, Li Jiayang, et al. China's National

Assessment Report on Climate Change Foreword [M]. Beijing: Science Press, 2004. (in Chinese)
 [3] IPCC. Changes in atmospheric constituents and in radiative forcing[R]. Cambridge: Cambridge University Press, 2007.
 [4] Use of NOAA ESRL data[EB/OL]. [2012-05-23]. http://ftp.cmdl.noaa.gov/ccg/co2/trends/co2_annmean_gl.txt.
 [5] Liu Bo, Wu Decheng, Fan Aiyuan, et al. Development of a mobile Raman - Mie lidar system for all time water vapor and aerosol detection[J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 2011, 112(2): 230-235.
 [6] Whiteman D N. Examination of the traditional Raman lidar technique.II. Evaluating the ratios for water vapor and aerosols[J]. *Applied Optics*, 2003, 42(15): 2593-2608.
 [7] Yuan Ke'e, Zhang Shiguo, Hu Shunxing, et al. Measurements of ozone using ultraviolet differential absorption lidar in low troposphere [J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2013, 25(3): 553-556. (in Chinese)
 [8] Whiteman, David N, Kurt Rush, et al. Demonstration measurements of water vapor, cirrus clouds, and carbon dioxide using a high-performance raman lidar [J]. *Atmos Oceanic Technol*, 2007, 24: 1377-1388.
 [9] Hu Shunxing, Zhao Peitao, Wang Shaolin, et al. ARL-1 Raman lidar system for atmospheric CO₂ measurements [J]. *Journal of Atmospheric and Environmental Optics*, 2009, 4 (6): 4001-4005. (in Chinese)
 [10] Hu Shunxing, Zhang Shiguo, Yuan Ke'e, et al. Atmospheric CO₂ uncertainty for Raman lidar measurements [J]. *Chinese Journal of Quantum Electronics*, 2013, 30 (1): 79-81. (in Chinese)
 [11] Yu Haili, Hu Shunxing, Yuan Ke'e, et al. Observations of atmospheric CO₂ concentration profiles over Hefei area with Raman lidar [J]. *Acta Photonica Sinica*, 2012, 41 (7): 812-817. (in Chinese)
 [12] Hu Shunxing, Hu Huanling, Wang Yingjian, et al. Raman lidar for CO₂ measurement in the low atmosphere [C]//26th International Laser Radar Conference, 2012.
 [13] Xie Chenbo, Zhou Jun, Yue Guming, et al. Mobile lidar system for measuring tropospheric aerosol and water vapor [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2007, 36(3): 365-372. (in Chinese)