

探测大气中 CO₂ 的 Raman 激光雷达

洪光烈^{1)†} 张寅超²⁾ 赵日峰^{1)‡} 邵石生²⁾ 谭 锐²⁾ 胡欢陵²⁾

1) 中国科学院研究生院, 北京 100039)

2) 中国科学院安徽光学精密机械研究所大气光学室, 合肥 230031)

(2004 年 9 月 20 日收到, 2005 年 6 月 20 日收到修改稿)

基于大气激光后向散射光谱, 研究和设计了探测大气 CO₂ 浓度的 Raman 激光雷达, 其发射机采用 Nd:YAG 激光的三倍频 354.7nm 作为工作波长, 发射的单脉冲能量 350mJ, 重复频率 20Hz, 接收机采用了光电倍增管(量子效率 25%)和光子计数器(计数速率 200MHz)探测 CO₂ 的 Raman 散射 371.66nm(频移 1285cm⁻¹)信号(1 小时累加)近地面 2.5km 以内信噪比不小于 8. 采用组合滤光片来抑制强的 354.7nm Mie-Rayleigh 后向散射和氧气 375.4nm Raman 后向散射对信号的严重干扰. 比较分别来自大气 CO₂ 和参考气体 N₂ 的 Raman 后向散射回波, 可反演出大气中 CO₂ 的相对浓度.

关键词: 大气光学, 激光雷达, Raman 散射光谱, 参考气体, Mie-Rayleigh 散射

PACC: 9265, 7830

1. 引言

CO₂ 气体作为大气中的重要成分, 参与大自然碳元素的循环, 并以其温室效应影响着气候, 对它的探测是十分重要的. 国际上有采用染料激光器 750nm 抽运 H₂ 的二级受激 Raman 光的长光程差分吸收测量^[1], 有采用 Ti:AL₂O₃ 激光 760nm 抽运 H₂ 的二级受激 Raman 光的差分吸收雷达^[2], 或有采用 Ho:Tm:YLF 激光器 2.05 μ m 的差分吸收雷达^[3]. 这些方法都取得了较大程度的成功, 但这些系统复杂, 造价都很昂贵. 本文旨在基于现有实验条件提出接收 CO₂ 气体 Raman 散射回波, 推断其浓度分布. Raman 散射具有散射光波长不同于照射光波长的特点, 而且 Raman 散射频移值取决于散射分子的成分, 与照射光波长无关. 根据 Raman 散射的这一特点, 就可由大气后向散射光的频移特征鉴别大气 CO₂ 气体的成分, 而由 Raman 散射回波强度的大小确定气体的浓度.

2. 探测原理

Raman 激光雷达是根据大气中待测分子对激光

产生的 Raman 散射(非相干辐射)原理来实现探测 CO₂ 含量的目的. Raman 散射光子数的多少与该气体的分子密度成正比, 接收大气中不同高度上 CO₂ 分子和氮气分子 Raman 后向散射光的回波信号, 可以得到 CO₂ 气体的相对浓度.

Raman 激光雷达接收到的 CO₂ 分子的 Raman 后向散射回波信号表示如下^[4]:

$$N_i(r) = N\eta_1 n_i(R)\beta_1 \xi_1(R) \Delta R (A/R^2) \cdot \exp\left[-\int_0^R [\alpha(\lambda_p, z) + \alpha(\lambda_1, z)] dz\right], \quad (1)$$

式中 $N_i(R)$ 为来自 $R \sim R + \Delta R$ 高度大气段 CO₂ 气体分子的 Raman 回波光电子数; N 表示被发射激光脉冲包含的光子数; η_1 为仪器效率常数, 与 Raman 散射波长有关; $n_i(R)$ 为待测 CO₂ 气体分子密度, 单位 cm⁻³; β_1 为待测 CO₂ 气体分子的 Raman 后向散射截面, 单位为 cm²/sr; $\xi_1(R)$ 为雷达的几何因子. A 为望远镜有效接收面积, ΔR 为距离分辨率, $\alpha(\lambda_p, z)$ 表示激发波长为 λ_p 时的大气消光系数, $\alpha(\lambda_1, z)$ 表示 Raman 散射波长为 λ_1 时的大气消光系数, 单位为 km⁻¹. 式中指数衰减项表明, 发射激光传输至距离 R 的探测目标物过程中, 受到激发波长 λ_p 条件下大气消光系数的衰减, 而 Raman 后向散射光返回激光

† 通讯联系人. E-mail: gllhong@aiofm.ac.cn

雷达过程中,则受到 Raman 散射波长 λ_1 条件下大气消光系数的衰减.上式表明,若有 CO_2 气体的 Raman 后向散射回波光电子数和大气消光系数的实测值,即可求得待测 CO_2 的浓度分布.但实际探测中,为了减小测量误差,通常以大气中含量稳定,而其 Raman 后向散射截面由实验精确测定的氮分子的 Raman 散射回波,作为参考标定值,以获得较为可靠的 CO_2 气体分子的浓度探测值.大气中参考气体 Raman 散射回波所满足的雷达方程同样表示为

$$N_2(r) = N\eta_2 n_2(R)\beta_2 \xi_2(R) \Delta R(A/R^2) \cdot \exp\left[-\int_0^R [\alpha(\lambda_p, z) + \alpha(\lambda_2, z)] dz\right], \quad (2)$$

式中, $N_2(R)$ 为参考气体分子的 Raman 回波光电子数, $n_2(R)$ 表示参考气体分子密度, β_2 为参考气体分子的 Raman 后向散射截面, $\alpha(\lambda_2, z)$ 表示参考气体 Raman 辐射的大气消光系数.因激发波长相同 $\alpha(\lambda_p, z)$ 与上式相同,回波几何光路相同 $\xi(R)$ 也与上式相同.(1)(2)两式相除得

$$\frac{n_1(R)}{n_2(R)} = \frac{\beta_2 \eta_2 N_1(R)}{\beta_1 \eta_1 N_2(R)} \times \exp\left[\int_0^R [\alpha(\lambda_1, z) - \alpha(\lambda_2, z)] dz\right], \quad (3)$$

式中, $N_1(R)$, $N_2(R)$ 即为雷达接收的回波信号,当我们知道两种气体 Raman 散射截面比值和系统的效率,即可从两种回波信号比值和参考气体的浓度的标准化模式推测到 CO_2 浓度分布.

3. 大气散射光谱特征和 Raman 雷达探测波长的确定

图 1 是在 532nm 激发下得到的大气散射光谱图^[5],从图中可以看到, CO_2 气体 Raman 散射强度比 N_2 和 O_2 气体 Raman 散射强度要小得多, CO_2 Raman 散射同大气 Rayleigh-Mie 散射比,显得更弱. CO_2 有两个 Q 支主要的谱线, $\text{CO}_2(\nu_1)$ 为 1338cm^{-1} 和 $\text{CO}_2(2\nu_2)$ 1285cm^{-1} (1286cm^{-1}),其中 $\text{CO}_2(\nu_1)$ 信号比 $\text{CO}_2(2\nu_2)$ 信号强,但它离 O_2 更近,为了减小 O_2 对回波的干扰,我们选择 $\text{CO}_2(2\nu_2)$ 作为回波接收的波长. ν 表示 Raman 频移, $\Delta\nu$ 表示 ν 的误差量, $\Delta\lambda_p$ 表示 λ_p 宽度和漂移量的和.在 354.7nm (λ_p) 激发下, Raman 频移 ν

$$\lambda_1 = \frac{\lambda_p}{1 - \lambda_p \nu}, \quad (4)$$

$$\Delta\lambda_1 = \left(\frac{\lambda_p}{1 - \lambda_p \nu}\right)^2 \Delta\nu + \left(\frac{1}{1 - \lambda_p \nu}\right)^2 \Delta\lambda_p, \quad (5)$$

计算得 CO_2 的 Raman ($2\nu_2$) 为 $371.66\text{nm} \pm 0.1\text{nm}$, O_2 的 Raman (1556cm^{-1}) 为 $375.43\text{nm} \pm 0.1\text{nm}$,可见 CO_2 和 O_2 的 Raman 很相近,参考气体 N_2 的 Raman 波长为 $386.68\text{nm} \pm 0.1\text{nm}$.

4. Raman 激光雷达结构

Raman 激光雷达的发射系统主要包括激光器、激光光束调整装置和发射镜. Nd:YAG 激光器由闪光灯抽运的一级振荡和两级放大组成,调 Q 输出,基波 1064nm 经过一级、二级放大后,通过 BBO 二倍频和三倍频晶体输出 354.71nm 波长的激光,其单脉冲能量为 350mJ 能量的波动范围约为 $\pm 5\%$,脉宽 5—7ns,重复频率 20Hz.发射镜采用介质全反镜,对 354.71nm 反射率在 99.5% 以上.为了使 Raman 激光雷达得到较高的探测灵敏度,其发射系统不仅要求有足够的脉冲激光能量,而且由于 Raman 后向散射截面近似与激光的波长的四次方成反比,因此要求有较短的激光波长.似乎应采用 Nd:YAG 激光器的 4 倍频 266nm,但大气中的臭氧分子的吸收使其能量消耗很大,权衡利弊,选择 Nd:YAG 激光器的 3 倍频光 354.71nm 作为激发光.发射机输出的激光除了 354.7nm,还含有少量 532nm,1064nm.因为激光脉冲能量小,探测的距离近,为了减小盲区和过渡区,所以采用发射和接收同轴结构.为了减小能量损失,尽量少用镜子,同时采用 6 倍扩束镜以减小发散角.

接收系统包括接收望远镜和后继光学单元.接收望远镜是卡塞格林望远镜,发射和接收同轴,主镜为抛物面,由于大气中 CO_2 气体分子的 Raman 后向散射信号极其微弱,因此, Raman 散射激光雷达多采用大口径接收望远镜,孔径一般达 40cm 以上,考虑到价格因素,我们只取 35cm.望远镜的组合焦距 900mm,在焦平面处安装了小孔光阑,通过更换不同孔径的小孔光阑,可以使望远镜的接收视场角在一定范围内可变.后继光学单元由导入光纤、目镜、干涉滤光片组成.光检测采用光电倍增管 9214B、前置放大器 phillips 6954 和光子计数器 P7882.

Raman 散射激光雷达所接收的外来辐射噪声由两部分组成.一部分为天空背景辐射所应起的噪声,若在夜间探测,这部分辐射噪声便可忽略.另一部分噪声则来自激光照射大气时所引起的 Mie-Rayleigh

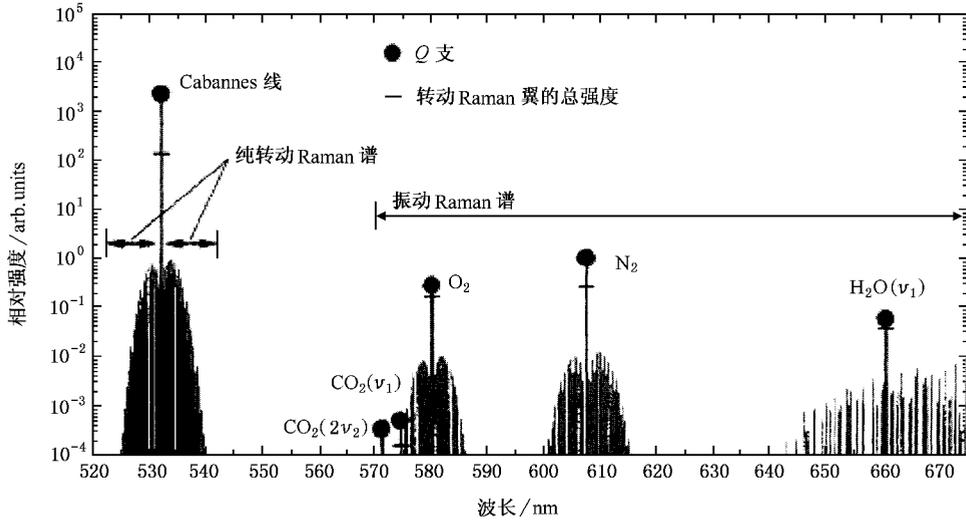


图1 532nm 激发下得到的大气散射光谱图

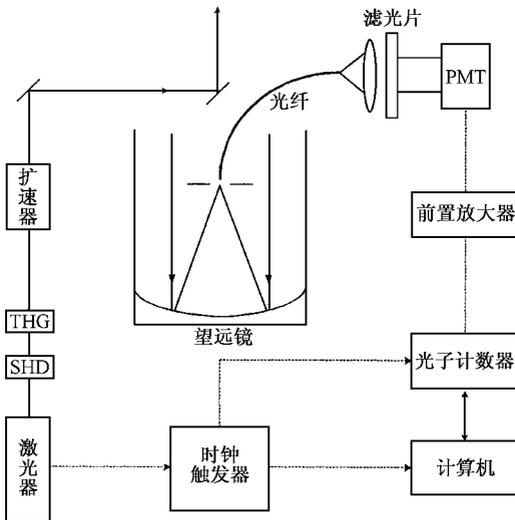


图2 Raman 雷达系统原理图 PMT:光电倍增管, THG:三倍频, SHG:二倍频

散射光辐射(其散射波长与照射的激光波长相同)和大气中浓度远大于 CO₂ 的氮、氧气体 Raman 散射. 大气气体分子的 Raman 后向散射截面比 Rayleigh 后向散射截面弱 3—4 个数量级左右. 而 CO₂ 气体分子(占大气 0.03%—0.04%)的密度要比大气分子的密度小 3—4 数量级, 所以 CO₂ 气体分子的 Raman 后向散射强度就比同时产生的大气分子的 Rayleigh 后向散射强度要弱 6—8 个数量级. 在低层大气中, 大气气溶胶的 Mie 后向散射强度和大气分子的 Rayleigh 后向散射强度相当(空气质量差时, 前者比后者还强

1—2 数量级). 因此 CO₂ 气体分子的 Raman 后向散射光强, 约比大气介质的 Mie 后向散射光强弱 6—8 个数量级. 采用的激发光波长为 354.7nm, 还夹杂着 532nm 光, 因此主要干扰来自二倍频 532nm 光的 Mie-Rayleigh 散射, 以及 532nm 光激发的 580nm(O₂) 和 607nm(N₂) Raman 散射, 来自三倍频 354.7nm 光的 Mie-Rayleigh 散射, 以及 354.7nm 光激发的 375.4nm(O₂) 和 386.7nm(N₂) Raman 散射. 在回波信号中, 354.7nm Mie-Rayleigh 散射比 371.66nm Raman 散射要强得多; O₂ 气的 Raman 散射波长和 CO₂ 的散射波长相近, 而 O₂ 气的浓度比 CO₂ 要高得多. 因此在接收 CO₂ 的 Raman 信号时, 一定要特别抑制 Mie-Rayleigh 散射回波和 O₂ 气的 Raman 信号的严重干扰.

极其微弱的 CO₂ 气体 Raman 后向散射光信号, 需从波长相差很小的 O₂ 气体 Raman 散射辐射和散射光强约大 6—8 个数量级的大气介质的 Mie-Rayleigh 后向散射辐射中检测出来. 因此, Raman 激光雷达需采用性能十分优异的滤光片, 由于滤光片的中心波长不容易制作得精确, 因此取的波长比计算的略大, 实际工作时, 通过调整光入射角来调整其中心波长.

主要性能参数如下

(1) CO₂ 带通滤光片性能参数

1) 峰值透过率: ~60%.

2) 峰值波长: 371.68 ± 0.10nm.

- 3) 半峰值带宽 : 0.46nm.
- 4) 带外抑制比 (入射角 0°情况下) 为
 - OD 5 200—1100nm ;
 - OD 6 375.4nm ;
 - OD 7 386.7nm 580nm 和 607nm ;
 - OD 12 354.7nm 和 532.1nm.

(2) 雷达系统参数

- 1) 激光脉冲能量 350mJ、重复频率 20Hz.
- 2) 发射部分总光利用率 80% , 光束发散角 0.1mrad.
- 3) 望远镜口径 350mm 视场角 1mrad.
- 4) 望远镜和透镜的总的光利用率 70% .
- 5) 光电倍增管量子效率 25% 暗计数 300/s.
- 6) 单通道前置放大器 增益 100.
- 7) 光子计数器 200MHz.
- 8) 距离分辨率 $\Delta R = 75m$.

相比而言,参考气体 N_2 的 Raman 回波强,参考信号较容易得到,只要将系统中的峰值波长 371.66nm 滤光片切换到峰值波长 386.7nm 的滤光片即可,当然它同样要截止来自 354.7nm 和 532nm 的 Mie-Rayleigh 散射的干扰. CO_2 的 Raman 回波信号和 N_2 的 Raman 回波信号先后分时接收.

5. 反 演

在得到 CO_2 气体和参考气体 N_2 的 Raman 回波之后,可应用(3)式进行计算. $\frac{\beta_2 \eta_2}{\beta_1 \eta_1}$ 作为系数,并不需要实测,可以通过其他探测方法比对定标来得到;取得 $\exp\left[\int_0^R [\alpha(\lambda_1, z) - \alpha(\lambda_2, z)] dz\right]$ 要相对复杂一些.大气消光系数为他们的的气溶胶 Mie 消光系数和分子 Rayleigh 消光系数之和,大气的消光系数 $\alpha(\lambda, z)$ 可以表示为

$$\alpha(\lambda, z) = \alpha_m(\lambda, z) + \alpha_a(\lambda, z), \quad (6)$$

其中 $\alpha_m(\lambda, z), \alpha_a(\lambda, z)$ 分别为空气分子 Rayleigh、气溶胶 Mie 的消光系数.一般认为分子 Rayleigh 消光系数跟波长的四次方成反比, Mie 气溶胶消光系数跟波长的一次方成反比,以此为基础进而折算得到参考气体和待测气体 Raman 光的大气消光系数^[4].

由所谓的美国中纬度(532nm)标准大气模式按照气溶胶消光系数 λ^{-1} 的关系,气体分子消光系数

λ^{-4} 的关系,计算所采用的两个波长 (λ_1, λ_2) 大气消光系数.大气分子的 Rayleigh 消光模式和气溶胶粒子 Mie 的消光模式分别为^[4]

$$\begin{cases} \beta_m(\lambda, z) = 1.54 \times 10^{-3} \exp(-z/7) \left(\frac{532}{\lambda}\right)^4 \\ \alpha_m(\lambda, z) = \beta_m(\lambda, z) \times 8\pi/3, \end{cases} \quad (7)$$

$$\begin{cases} \beta_a(\lambda, z) = \left\{ 2.47 \times 10^{-3} \exp\left(-\frac{z}{2}\right) + 5.13 \times 10^{-6} \right. \\ \quad \left. \times \exp\left[-\frac{(z-20)^2}{6}\right] \right\} \left(\frac{532}{\lambda}\right), \\ \alpha_a(\lambda, z) = \beta_a(\lambda, z) \times 50, \end{cases} \quad (8)$$

式中 $\beta_m(\lambda, z)$ 和 $\beta_a(\lambda, z)$ 为空气分子 Rayleigh、气溶胶 Mie 的后向散射系数.由(6)(7)(8)式计算得到的 $\alpha(\lambda_1, z), \alpha(\lambda_2, z)$ 分别代入(3)式的积分因子,即可反演出待测气体的浓度. CO_2 在大气中的混合比为

$$\begin{aligned} \frac{n_1(R)}{n(R)} &= \frac{n_2(R)}{n(R)} \frac{n_1(R)}{n_2(R)} \\ &= 78\% \frac{\beta_2 \eta_2}{\beta_1 \eta_1} \frac{N_1(R)}{N_2(R)} \\ &\quad \times \exp\left[\int_0^R [\alpha(\lambda_1, z) - \alpha(\lambda_2, z)] dz\right] \\ &= K \frac{N_1(R)}{N_2(R)} \\ &\quad \times \exp\left[\int_0^R [\alpha(\lambda_1, z) - \alpha(\lambda_2, z)] dz\right], \end{aligned} \quad (9)$$

$n(R)$ 表示干空气分子数密度.在对流层,氮分子数密度与干空气分子数密度的比值 $\frac{n_2(R)}{n(R)}$ 是一个常数,约

为 78%, $K = (78\% \frac{\beta_2 \eta_2}{\beta_1 \eta_1})$ 值可以由定标来确定.

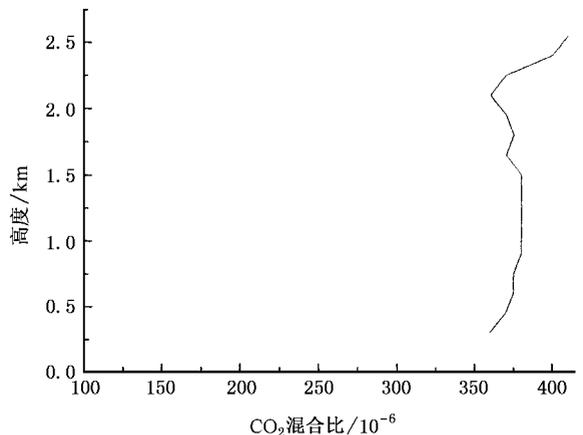


图3 实验测试并反演后的曲线

6. 探测结果

首先调整发射光束使之与接收望远镜光轴平行,1 小时回波连续累加,再扣除背景,经过平滑平均,得到图 3 的结果.2004 年 10 月 27 日夜(天晴,空气质量良)测试的一个例子.探测高度在 2500m 以下,误差 10%—20% 以内.系数 K 通过取样气体吸收光谱法来定标.实验表明,大气中 CO₂ 分子密度绝对值随高度递减,而 CO₂ 分子占大气分子的混合

比随高度变化较小.

7. 结 论

Raman 激光雷达是探测大气 CO₂ 气体的重要方法.激发波长选用 Nd:YAG 的三倍频 354.7nm,信号接收采用光电倍增管和光子计数器,实验证明它是有效的.在提取 CO₂ Raman 回波的过程中,关键是抑制由激发光同时产生的 Mie-Rayleigh 散射回波和 O₂ 气 Raman 散射回波.

- [1] Nobuo Sugimoto ,Atsushi Minato 1993 *Applied Optics* **32** 6827
 [2] Michihiro U , Nilesh J V , Makoto F *et al* 2003 *Proc. SPIE* **4893** 141
 [3] Ismail S , Koch G J , Browell E V , Singh U N , Abedin N , Yu J , Hair J 2002 *Adva. Atmos. Remotes Sensing Lidar* 73—96

- [4] Sun J Q 1986 *Laser Atmosphere Detect* (Beijing : Science press) p86
 (孙景群 1986 激光大气探测 北京 科学出版社) p86
 [5] Andreas Behrendt ,Takuji Nakanura , Michitaka Onishi *et al* 2002 *Applied Optics* **41** 7658

Raman lidar for profiling atmospheric CO₂

Hong Guang-Lie¹✉† Zhang Yin-Chao²) Zhao Yue-Feng¹✉)
 Shao Shi-Sheng²) Tan Kun²) Hu Huan-Ling²)

1 ✉ Graduate School of The Chinese Academy of Sciences ,Beijing 100039 ,China)

2 ✉ Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics , Chinese Academy of Sciences ,Hefei 230031 ,China)

(Received 20 September 2004 ; revised manuscript received 20 June 2005)

Abstract

Based on laser atmosphere backscattering spectrum , the design and experiment of a Raman lidar system for measurement of atmospheric CO₂ are presented. 354.7nm third harmonic of Nd:YAG laser is transmitted with 350mJ pulse energy and repetition rate of 20Hz. The receiver employs a photomultiplier tube with quantum efficiency of 25% and 200MHz photon counter , and it detects Raman backscattering 371.66nm(shift 1285cm⁻¹) signal. At 1h integration , the signal to noise ratio below 2.5km is greater than 8. Combinatorial filter is used to reject interference presented by 354.7nm intense Mie-Rayleigh backscattering and 375.4nm Raman backscattering from O₂ . We compare the Raman return signal at 371.66nm from atmospheric CO₂ with the reference Raman return signal at 386.7nm from atmospheric N₂ to retrieve the atmospheric CO₂ concentration.

Keywords : atmospheric optics , lidar , Raman scattering spectrum , reference gas , Mie-Rayleigh scattering

PACC : 9265 , 7830