

# 基于红外掩日通量法(SOF)污染源排放气体浓度时空分布反演算法研究\*

刘志明<sup>†</sup> 刘文清 高闽光 童晶晶 张天舒 徐亮 魏秀丽 金岭 王亚萍 陈军

(中国科学院安徽光学精密机械研究所环境光学中心, 环境光学与技术重点实验室, 合肥 230031)

(2009年9月21日收到; 2009年11月12日收到修改稿)

介绍了在傅里叶变换红外光谱(FTIR)技术基础上发展起来的一种监测污染源有害气体排放率的新方法——红外掩日通量(solar occultation flux, SOF)法。在理论上建立了太阳辐射两层传输模型, 根据比尔定律阐述了计算污染物透过率的方法。详细介绍了如何从 HITRAN, NIST 和 QASoft 三种红外数据库中提取气体标准吸收截面。介绍了基于 Levenberg-Marquardt 非线性最小二乘法反演污染气体柱浓度的算法和污染源气体排放率计算算法。介绍了整套装置的组成部分和太阳跟踪装置的结构。对合肥某一化肥厂的氨气排放进行了测量, 从实验结果可以看出, 测量的柱浓度分布准确地反映了污染物排放和扩散情况, 证明了污染源排放气体浓度时空分布反演算法的正确性。

**关键词:** 红外掩日通量法, 傅里叶变换红外光谱, 气体排放, 环境监测

**PACC:** 3320E, 8670L, 0765G, 3300

## 1. 引言

随着工厂、化工区的日益增多, 我国工业化得到迅速发展, 同时工厂污染物的大量排放和化工泄露等环境污染事故不断增加。随着国家和广大民众对环境污染问题的日益重视, 工业生产过程中及其他途径产生的有害气体的实时监测及定量分析对于环境治理的各项决策起着至关重要的作用, 各种监测仪器和技术相继被投入使用。傅里叶变换红外光谱(FTIR)技术是近年来迅速发展的一门综合性探测技术, 并广泛的应用于污染源气体排放、突发性大气污染事故的机动应急监测<sup>[1]</sup>。本文基于 FTIR 技术发展出一种监测污染源气体排放率的新方法——掩日通量(SOF)红外光谱法<sup>[2]</sup>。该方法是一种测量污染气体排放率的新技术, 测量装置放置在一辆监测车上, 监测车在运动时, 太阳跟踪设备可以快速地实时跟踪太阳, 通过特定的光路结构将太阳光导入一台 FTIR 光谱仪中, 测量出太阳傅里叶变换红外吸收光谱, 一个 GPS 定位设备记录每条光谱对应的地理位置。监测车围绕污染源厂区测量一

周或者测量污染源下风口的一段区域, 结合气象信息通过自主开发的定量分析软件和气体排放率计算软件可以快速准确的计算出污染源气体排放率。该方法主要用于石化厂、电厂、钢铁厂等高架点源和无组织排放面源以及区域污染排放率的测量, 也可以用于探测火山和农业气体的排放, 可监测的污染物成分有: 烷烃, 烯烃, 醛, 苯系物等 VOCs, NH<sub>3</sub>, CO, NO<sub>2</sub>, SO<sub>2</sub>, HCl, HF, SF<sub>6</sub> 等。

## 2. 原理

### 2.1. 污染物柱浓度计算

#### 2.1.1. 辐射传输模型

在地面测量到的太阳光谱, 是太阳辐射经过整层大气吸收后的吸收光谱。根据温度压力的不同将整层大气分为若干层<sup>[3]</sup>, 见图 1, 如果采用高分辨率的 FTIR 光谱仪, 吸收光谱中包含整层大气成分的信息(温度, 压力, 分子浓度等), 通过非线性最小二乘算法多次迭代反演出每层的温度压力以及气体成分的浓度。每一层都接收到前一层的辐射并对下

\* 国家自然科学基金(批准号: 60708100), 国家高技术研究发展计划(批准号: 2007AA061504)资助的课题。

† E-mail: zhimingliu@iofm.ac.cn

一层输出辐射,其输出的光谱辐射强度  $I_i(\nu)$  可表示为<sup>[4,5]</sup>

$$I_i(\nu) = \varepsilon_i(\nu)B_i(\nu, T_i) + \tau_i(\nu)I_{i-1}(\nu) + \rho_i(\nu), \quad (1)$$

$B_i(\nu, T)$  为  $i$  层温度  $T_i$  下黑体辐射强度,可表示为

$$B(\nu, T) = \frac{C_1\nu^3}{\exp(C_2\nu/T) - 1}, \quad (2)$$

其中,  $C_1$  和  $C_2$  分别为第一辐射常数和第二辐射常数.  $I_{i-1}(\nu)$  为前一层输出的辐射强度,  $\rho_i(\nu)$  为  $i$  层中所有物质的散射贡献,  $\varepsilon_i(\nu)$  为  $i$  层的发射率,  $\tau_i(\nu)$  为  $i$  层的透过率. 对于热红外辐射而言一般忽略  $\rho_i(\nu)$  的贡献. 辐射在大气中传输时,除透过的能量外,部分能量被大气吸收和散射,但辐射的总能量不变,即

$$\alpha(\nu) + \tau(\nu) + \rho(\nu) = 1, \quad (3)$$

其中  $\alpha(\nu)$  为吸收率,  $\tau(\nu)$  为发射率,  $\rho(\nu)$  为散射率. 长波的红外辐射时,通常情况下大气的散射因素可以忽略 ( $\rho(\nu) \approx 0$ ) 则(3)式简化为

$$\alpha(\nu) + \tau(\nu) = 1, \quad (4)$$

根据 Kirchhoff 定律, 气体发射率等于气体吸收率, 即

$$\alpha(\nu) = \varepsilon(\nu), \quad (5)$$

可得

$$\varepsilon(\nu) = 1 - \tau(\nu), \quad (6)$$

那么(1)式变为

$$I_i(\nu) = (1 - \tau_i(\nu))B_i(\nu, T_i) + \tau_i(\nu)I_{i-1}(\nu). \quad (7)$$

因为本方法主要关心是近地面的气体吸收, 为简化分析, 将上述多层传输模型简化为两层传输模型, 见图 2, 分为高空大气层和排放气体扩散层, 假定从地面到排放气体抬升和扩散的最高位置为排放气体扩散层, 该层中的气体成分和浓度受污染源排放的影响, 随时间和地点的不同在变化. 排放气体扩散层之上为高空大气层. 高空大气层中气体种类和浓度相对比较稳定, 在一次测量时间内没有较大变化. 排放气体扩散层的气体成分包括常规气体和排放气体, 有些常规气体如水汽和二氧化碳随时间和地点在变化, 假定太阳辐射到达排放气体扩散层时强度为  $I_0(\nu)$ , 经过排放气体扩散层被排放气体选择吸收后的强度为  $I(\nu)$ . 即

$$I(\nu) = (1 - \tau(\nu))B(\nu, T) + \tau(\nu)I_0(\nu), \quad (8)$$

其中,  $T$  为排放气体平均温度,  $(1 - \tau(\nu))B(\nu, T)$  是排放气体自身的发射强度,  $\tau(\nu)$  为排放气体的透过率. 太阳表面温度约为 6000 K, 当测量直射的

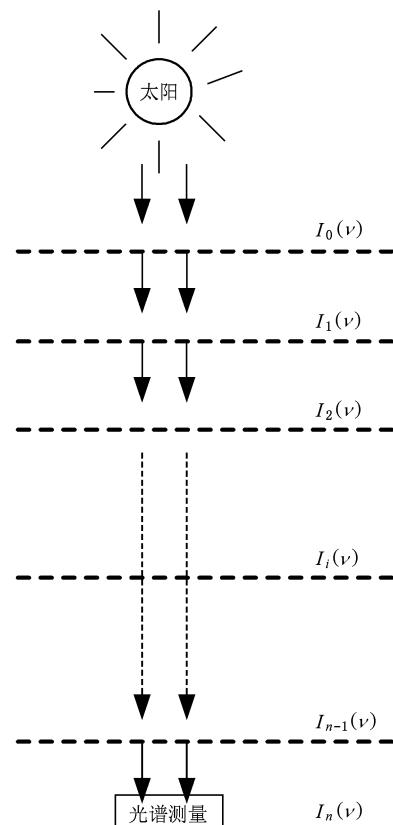


图 1 太阳辐射多层传输模型

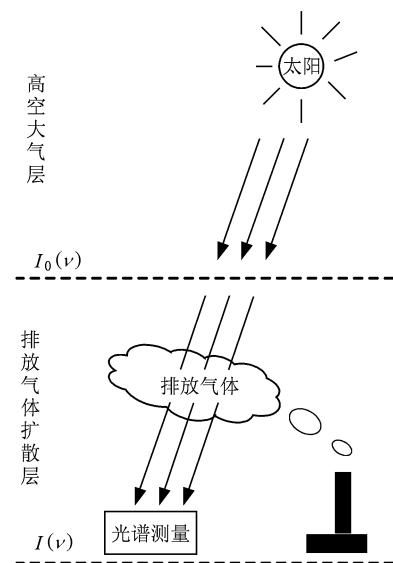


图 2 太阳辐射两层传输模型

太阳光时,即使太阳辐射经过了长距离的发散和整个大气的衰减,  $I_0(\nu)$  仍然远大于  $B(\nu, T)$  ( $I_0(\nu) \gg B(\nu, T)$ ). 通常可以忽略排放气体自身的发射强度  $(1 - \tau(\nu))B(\nu, T)$ , 即

$$I(\nu) = \tau(\nu) I_0(\nu). \quad (9)$$

### 2.1.2. 比尔定律

比尔定律中各气体的吸收是相互独立的<sup>[6]</sup>,

$$I(\nu) = (I_0(\nu) e^{-\sum_j \sigma_j(\nu) C_{j0} L_{j0}}) \times e^{-\sum_j \sigma_j(\nu) \Delta(C_j L_j)} \cdot e^{-\sum_i \sigma_i(\nu) C_i L_i}, \quad (10)$$

$$I'_0(\nu) = I_0(\nu) e^{-\sum_j \sigma_j(\nu) C_{j0} L_{j0}}, \quad (11)$$

$$\tau(\nu) = \frac{I(\nu)}{I'_0(\nu)}. \quad (12)$$

其中,  $I'_0(\nu)$  为背景参考谱强度, 可以通过在远离污染源排放区域测量得到<sup>[7]</sup>, 见图 3  $C_i$  为排放气体浓度,  $L_i$  为排放气体在光路上的长度,  $C_i L_i$  排放气体柱浓度,  $C_{j0}$  为背景参考谱中常规气体浓度,  $L_{j0}$  为背景参考谱中常规气体在光路上的长度,  $C_{j0} L_{j0}$  为背景参考谱中常规气体柱浓度,  $\Delta(C_j L_j)$  为测量点光谱和背景参考谱中常规气体柱浓度变化,  $\sigma_i(\nu)$  为排放气体和变化的柱浓度总透过率,  $\sigma_j(\nu)$  常规气体吸收截面,  $\sigma_i(\nu)$  是排放气体吸收截面, 可以从红外标准数据库中获得。

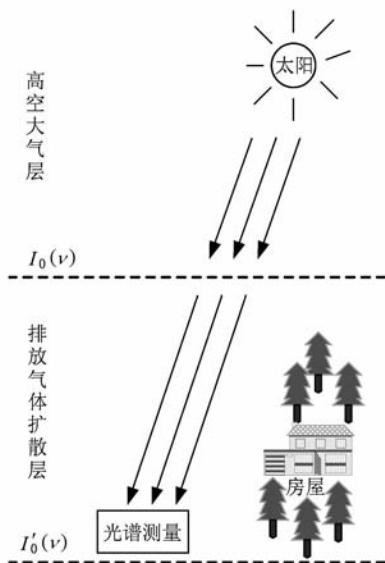


图 3 背景参考谱的获得

### 2.1.3. 吸收截面获取

我们用的红外标准数据库包括 HITRAN2004 数据库, NIST 数据库, QAsoft 数据库, 共含有 340 多种分子的红外标准吸收谱。

HITRAN2004 按照波数从小到大的顺序共收集了  $0-23,000 \text{ cm}^{-1}$  ( $\infty - 0.43 \mu\text{m}$ ) 范围的 39 种大气气体的 1789569 条谱线<sup>[8,9]</sup>, 见表 1, 每条谱线的参数也从前版本的 16 项 (100 字符) 增加到 19 项

(160 字符), 下表给出了 HITRAN2004 分子光谱数据库中, 每条谱线的 19 个参数具体记录格式, 见表 2.

表 1 HITRAN2004 中包含大气气体化合物列表

化合物	编号	化合物	编号	化合物	编号	化合物	编号
$\text{H}_2\text{O}$	1	$\text{NH}_3$	11	$\text{HOCl}$	21	$\text{H}_2\text{S}$	31
$\text{CO}_2$	2	$\text{HNO}_3$	12	$\text{N}_2$	22	$\text{HCOOH}$	32
$\text{O}_3$	3	$\text{OH}$	13	$\text{HCN}$	23	$\text{HO}_2$	33
$\text{N}_2\text{O}$	4	$\text{HF}$	14	$\text{CH}_3\text{Cl}$	24	$\text{O}$	34
$\text{CO}$	5	$\text{HCl}$	15	$\text{H}_2\text{O}_2$	25	$\text{ClONO}_2$	35
$\text{CH}_4$	6	$\text{HBr}$	16	$\text{C}_2\text{H}_2$	26	$\text{NO}^+$	36
$\text{O}_2$	7	$\text{HI}$	17	$\text{C}_2\text{H}_6$	27	$\text{HOBr}$	37
$\text{NO}$	8	$\text{ClO}$	18	$\text{PH}_3$	28	$\text{C}_2\text{H}_4$	38
$\text{SO}_2$	9	$\text{OCS}$	19	$\text{COF}_2$	29	$\text{CH}_3\text{OH}$	39
$\text{NO}_2$	10	$\text{H}_2\text{CO}$	20	$\text{SF}_6$	30		

表 2 HITRAN 数据库中谱线参数表

	字符数 (100/160)	数据类型
分子编号	$M$	2/2 整型
同位素编号	$I$	1/1 整型
谱线跃迁频率	$\nu/\text{cm}^{-1}$	12/12 实型
谱线强度	$S/\text{cm}^{-1} (\text{molecule}\cdot\text{cm}^2)$	10/10 实型
跃迁偶极矩平方	$\mathcal{R}/\text{Debye}^2$	10/0 实型
爱因斯坦系数	$A/\text{s}^{-1}$	0/10 实型
空气展宽半宽度	$\gamma / (\text{cm}^{-1}/\text{atm})$	5/5 实型
自展宽半宽度	$\gamma / (\text{cm}^{-1}/\text{atm})$	5/5 实型
跃迁低态能量	$E''/\text{cm}^{-1}$	10/10 实型
温度依赖系数	$n$	4/4 实型
波数漂移	$\delta / (\text{cm}^{-1}/\text{atm})$	8/8 实型
高能态全量子数	$V'$	3/15 Hollerith
低能态全量子数	$V''$	3/15 Hollerith
高能态局域量子数	$Q'$	9/15 Hollerith
低能态局域量子数	$Q''$	9/15 Hollerith
不确定指数	$I_{\text{err}}$	3/6 整型
参考文献数	$I_{\text{ref}}$	6/12 整型
谱线标识符	*	0/1 字符型
高能态统计权重	$g'$	0/7 实型
高能态统计权重	$g''$	0/7 实型

HITRAN 数据库中直接给出的是谱线在一个标准大气压下, 温度为 296 K 时的线强, 必须根据下式修正到测量时温度和压力下的线强<sup>[10]</sup>

$$S(T) = S(296) \cdot \exp\left(-c_1 \cdot E_0 \cdot \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{296}\right)\right)$$

$$\times \left( \frac{296}{T} \right)^m \cdot \frac{1 - \exp\left(-\frac{c_1 \nu_0}{T}\right)}{1 - \exp\left(-\frac{c_1 \nu_0}{296}\right)}, \quad (13)$$

考虑由于分子的热运动导致的多普勒展宽(高斯线型)和由于分子碰撞引起的分子能级不确定导致的压力展宽(洛伦兹线型)

$$\sigma_0(\nu) = S(T) \otimes f_L(\nu) \otimes f_G(\nu), \quad (14)$$

其中

$$f_G(\nu) = \frac{1}{\alpha_G / \sqrt{\pi}} \exp\left(-\frac{(\nu - \nu_0)^2}{\alpha_G^2}\right), \quad (15)$$

$$\alpha_G = \frac{\nu_0}{c} \sqrt{\frac{2kT}{m}}, \quad (16)$$

$$f_L(\nu) = \frac{\alpha_L / \pi}{(\nu - \nu_0)^2 + \alpha_L^2} \quad (17)$$

$$\alpha_L = \left(\frac{296}{T}\right)^n (\gamma_{air} \cdot (p - p_s) + \gamma_{self} \cdot p_s), \quad (18)$$

再考虑由于干涉图的截断导致的展宽(仪器线型函数  $ILS(\nu)$ )，可以得到与测量光谱匹配的分子吸收截面<sup>[7]</sup>

$$\sigma_0(\nu) = S(T) \otimes f_L(\nu) \otimes f_G(\nu), \quad (19)$$

$$\sigma(\nu) = \sigma_0(\nu) \otimes ILS(\nu). \quad (20)$$

NIST 数据库给出了 21 种分子标准吸收光谱数据，给出了四种不同分辨率的数据分别为 1, 0.5, 0.25, 0.125 cm<sup>-1</sup>. QAssoft 数据库给出了 310 种分子标准吸收光谱数据，分辨率为 0.241 cm<sup>-1</sup> 和 0.12055 cm<sup>-1</sup>. 由于有时候测量光谱与标准数据光谱分辨率不相同，且光谱波数数据点的位置不一一对应，通常需要将标准吸收光谱数据进行傅里叶变换转换为干涉图数据，在干涉图数据两侧补零后再进行傅里叶逆变换转换为超高分辨率的光谱数据，此时可以从中抽取与测量光谱波数数据点对应的标准吸收光谱数据。

#### 2.1.4. 非线性最小二乘法柱浓度反演

最小二乘法是通过计算机多次迭代待定参数，使计算机拟合值与测量值的误差平方和最小，本文采用是 Levenberg-Marquardt 非线性最小二乘法，Levenberg-Marquardt 非线性最小二乘法对初值依赖较小，计算快速稳定。

本次实验的迭代参数为常规气体柱浓度的变化  $\Delta(C_j L_j)$  和排放气体的柱浓度  $C_i L_i$ ，根据(4)式，计算机拟合的透过率可以表示为

$$\tau'(\nu) = e^{-\sum_j \sigma_j(\nu) \Delta(C_j L_j)} \cdot e^{-\sum_i \sigma_i(\nu) C_i L_i}, \quad (21)$$

通过迭代  $\Delta(C_j L_j)$  和  $C_i L_i$  找出拟合的透过率和测量

的透过率之间的误差平方和最小，见(6)式，此时的  $\Delta(C_j L_j)$  和  $C_i L_i$  作为常规气体柱浓度的变化和排放气体的柱浓度  $C_i L_i$ .

$$\chi^2 = \sum_{\nu} (\tau'(\nu) - \tau(\nu))^2 = \text{minimum}. \quad (22)$$

## 2.2. 污染物排放率计算

整套测量装置放在一辆监测车上，在监测车移动过程中进行测量，通过一个 GPS 设备记录每条测量光谱对应的经纬度。由于测量时太阳不可能总在监测车正上方，直接由非线性最小二乘法反演出的柱浓度是测量点到太阳的斜程柱浓度，需要经过太阳高度角校正将测量点的斜程柱浓度转化为竖直柱浓度，见图 4.

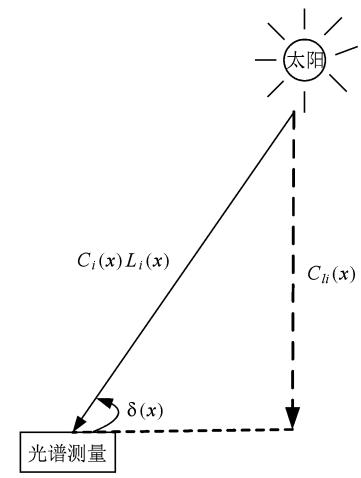


图 4 坚直柱浓度校正示意图

$$C_h(x) = C_i(x)L_i(x)\sin(\delta(x)). \quad (23)$$

$C_h(x)$  为  $x$  处的坚直柱浓度， $\delta(x)$  为  $x$  处的太阳高度角。

我们规定污染物流入监测区域时为负值，流出监测区域时为正值。假定当监测车逆时针行驶时，风向逆时针旋转 90 度的方向与监测车行驶方向为  $\theta(x)$ ；当监测车顺时针行驶时，风向顺时针旋转 90 度的方向与监测车行驶方向为  $\theta(x)$ ；由示意图 5 和图 6 可以看出污染物流入监测区域时  $\theta(x)$  为钝角，污染物流出监测区域时  $\theta(x)$  为锐角， $\overrightarrow{x_1 x_2}$ ,  $\overrightarrow{u(x)}$  分别表示监测车行驶方向和风向。将柱浓度乘以风速在垂直于监测车行驶方向的投影后，沿着整个测量路径积分，得到污染物通过测量路径的排放率

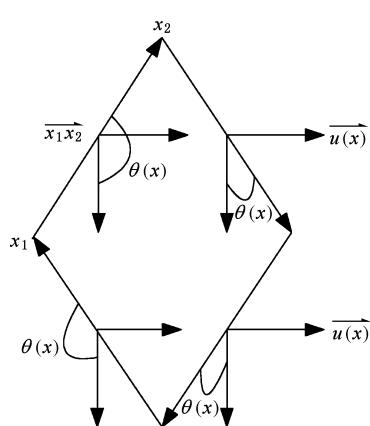


图 5 监测车顺时针行驶示意图

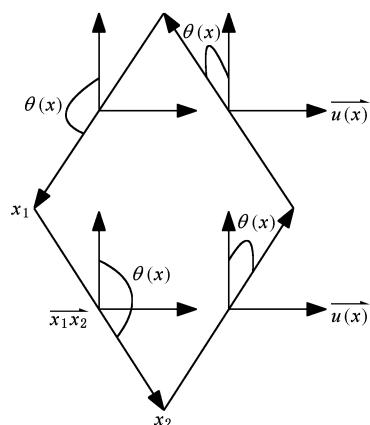


图 6 监测车顺时针行驶示意图

$$\text{flux} = \int_{x_1}^{x_2} \bar{C}_{li}(x) u(x) \cos\theta(x) dx. \quad (24)$$

其中,  $x_1$  为起始点的位置,  $x_2$  为终点位置,  $\bar{C}_{li}(x)$  为  $dx$  路径上的平均浓度,  $u(x)$  为  $x$  处的风速.

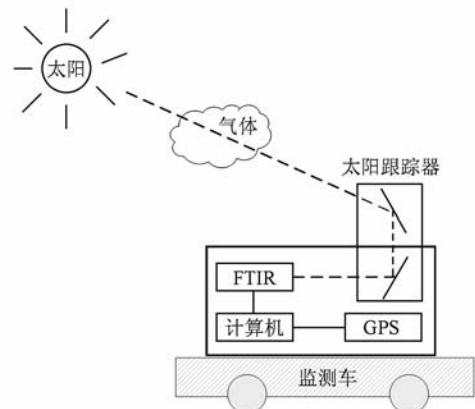


图 7 监测车结构图

### 3. 实验

#### 3.1. 实验装置

整套测量装置放在一辆监测车上, 整体结构如图 7 包括太阳跟踪器, FTIR 光谱仪, 计算机, GPS 设备. 太阳跟踪装置结构图见图 8, 监测车移动或转弯时, 光电探测单元可以感知太阳位置相对监测车的变化, 然后通过控制两个步进电机来实时跟踪太阳, 将太阳光导入 FTIR 光谱仪中. 通过 GPS 设备获得每个测量光谱文件对应的地理位置. 图 9 是监测车的实物图, 图 10 为跟踪装置的实物图<sup>[11]</sup>.

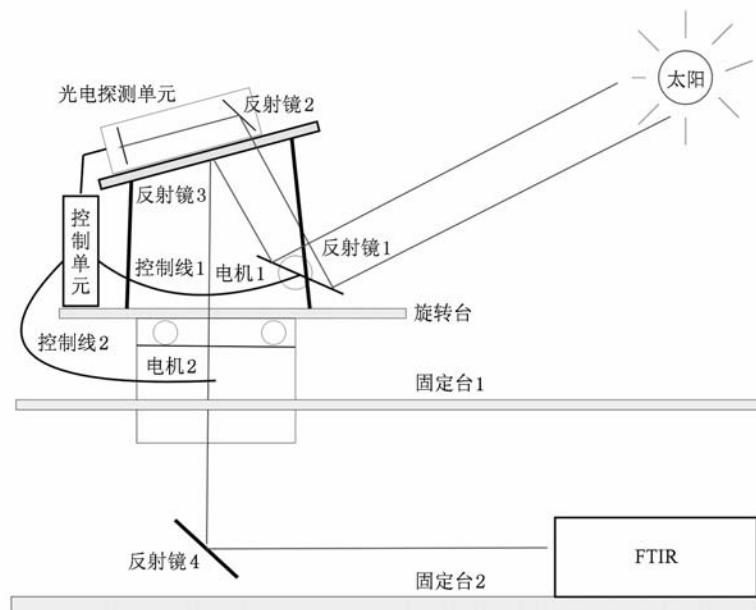


图 8 太阳跟踪装置结构图



图 9 监测车实物图



图 10 跟踪装置实物图

### 3.2. 测量方式

实际实验时有两种测量方式,闭合路径测量方式如图 11 和下风口测量方式如图 12。当污染源厂区周围有监测车可以通的闭合路径时可以采用闭合路径测量方式,该方式测量的污染源排放率更准确。当污染源厂区周围没有监测车可以通的闭合路径且风速较大,污染源排放气体几乎都被吹到下风口,此时可以采用下风口测量方式,测量到的污染物排放率可以近似为污染源排放率。

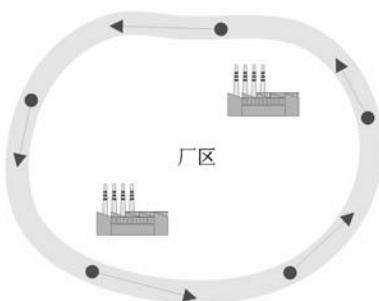


图 11 闭合路径测量方式

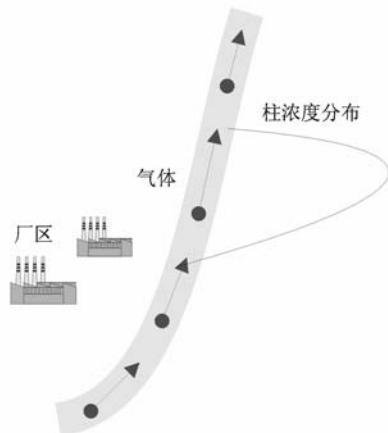


图 12 下风口测量方式

### 3.3. 外场实验

#### 3.3.1. 实验场地及实验描述

本次测量选择的场地是合肥某一化肥厂,该厂主要生产碳酸氢铵、液氨等化工产品,主要排放的污染气体为氨气。测量时间为 2009 年 6 月 5 日,天气晴朗,西南风。从厂区的西北角开始测量,车速约 12 km/h,在监测车运动测量过程中太阳跟踪器全自动跟踪太阳,将太阳光导入 FTIR 光谱仪中,每次测量 4 次扫描平均,光谱仪测量一条光谱的时间是 4—6 s, GPS 设备记录每条光谱对应的经纬度,绕该化肥厂测量一周约用时 25 min.

#### 3.3.2. 实验结果

由于实验时为西南风,我们选择西南角上风口位置(见图 19 左下角黑色圆点处)测量的一条光谱作为背景参考谱。图 13,14 是两条实际测量的太阳傅里叶变换红外吸收光谱,图 13 是背景参考谱,图 14 为一条含有氨气吸收的测量谱。

将测量光谱和背景参考光谱做归一化处理,使光谱中没有气体吸收的位置完全重合,见图 15。通过对归一化后的背景参考谱和测量谱,可以比较容易看出污染气体的吸收峰。图 16 为从 HITRAN 数据库中提取的  $\text{NH}_3$  的标准吸收截面谱,可以看出图 15 中的几个明显吸收峰位置与  $\text{NH}_3$  的标准吸收截面谱中的几个峰值位置一一对应。

根据(4)式,图 10 中测量的氨气吸收谱除以背景参考谱可以获得氨气透过率谱见图 17,根据(6)和(7)式,通过非线性最小二乘拟合算法计算出氨气柱浓度。图 18 中黑色曲线是测量的透过率谱,红色曲线是进行非线性最小二乘计算后的拟合谱,蓝

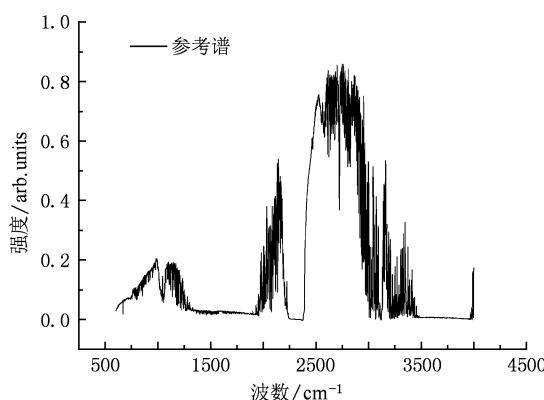


图 13 背景参考谱

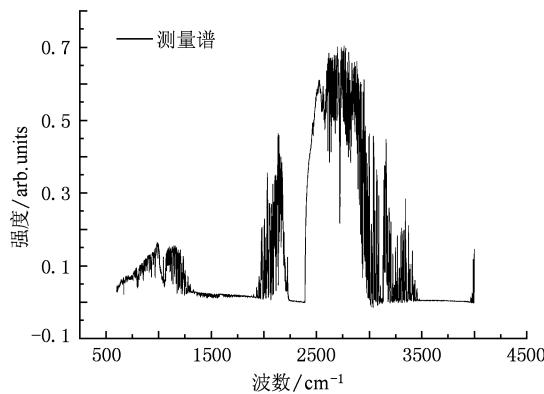


图 14 一条含有氨气吸收的测量谱

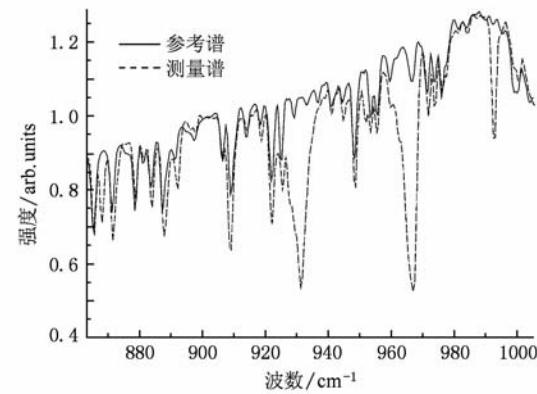


图 15 归一化的背景参考谱和测量谱

色曲线是拟合残差谱,可以看出测量的透过率谱与拟合的透过率谱符合非常好,拟合的残差谱强度很小且呈现随机噪声特性.本次测量氨气最大的柱浓度为 379.07 ppm m.

通过本课题组自主开发的定量分析软件和柱浓度结果显示软件可以自动地批量处理一次测量

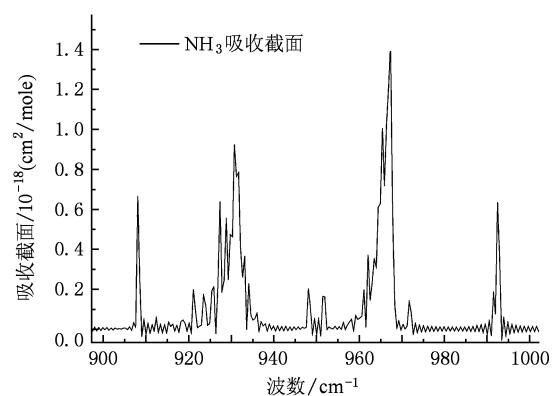
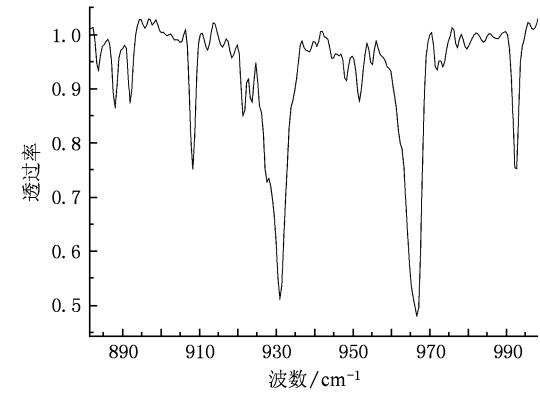
图 16  $\text{NH}_3$  的标准吸收截面谱

图 17 氨气透过率谱

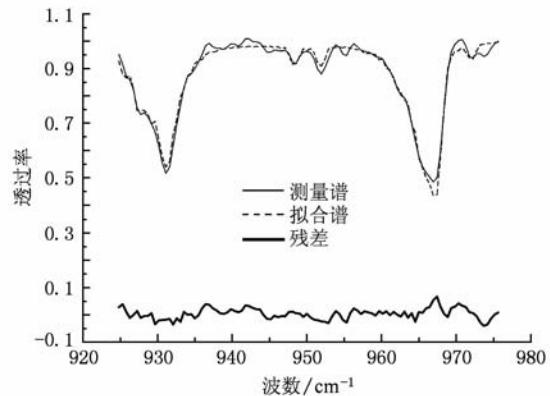


图 18 拟合谱和残差谱

的数据,并将结果按照测量的地理位置叠加到地图图像上,这样可以直观的看出柱浓度的空间分布见图 19.根据(8)和(9)式,自主开发了的污染源气体排放率计算软件.输入风速风向参数后,软件可以快速计算出污染气体的排放率.本次测量该化肥厂氨气的排放率为 73.46 g/s.



图 19 化肥厂氨气柱浓度分布

#### 4. 误差与讨论

由于 GPS 设备定位精度的限制, 反演的柱浓度分布在空间位置上存在一定的偏移, 但如果测量区域很大, 这种由于定位精度导致的柱浓度分布的偏移可以忽略。由于本方法测量的是整层污染气体的柱浓度, 反演的污染物气体柱浓度分布可能与近地

面浓度分布不一致。影响污染源气体排放率反演准确度的因素, 除柱浓度定量分析上的误差外, 主要是风速风向的不确定带来的误差。地面附近的风速风向受高层建筑的影响具有很大的复杂性, 同时风速风向在不同的高度也有些不同。在测量的时间内, 风速风向也可能发生变化, 目前我们采用的是气象站提供的平均风速和风向数据。可以采用高精度风速风向测量仪(超声风速风向仪等)实时的测量从近地面到高空的风速风向, 来提高污染源气体排放率反演的准确度。

#### 5. 结 论

从实验结果可以看出, 测量的柱浓度分布精确的反应了污染物排放和扩散情况, 证明了污染源排放气体浓度时空分布反演算法的正确性。该方法具有实时、动态、快速、非接触遥测、监测范围广, 以及对污染物多组份、高选择性检测等特点。除可以用于反演污染源气体排放浓度分布和排放率外, 还可以用于污染排放源解析, 污染物扩散、输送跟踪监测和突发性污染事件快速监测分析。该方法将在大气环境监测领域发挥重要作用。

- [1] Wu J G 1994 *Modern Fourier Transform Infrared Spectroscopy and Its Application* (Vol. 1) (Beijing: Scientifical and Technical Documents Press) p492—505 (in Chinese) [吴谨光 1994 近代傅里叶变换红外光谱技术及应用(上册) (北京: 科学技术文献出版社) 第 492—505 页]
- [2] Manne K, 2005, *Ph. D. Dissertation* (Sweden: Chalmers University of Technology)
- [3] Zhou B, Liu W Q, Zheng Z H, Zhang Y J, Song B C, Wang F P 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 2507 (in Chinese) [周斌、刘文清、郑朝辉、张玉钧、宋炳超、王锋平 2000 物理学报 **49** 2507]
- [4] Roland H, Peter R, Chris D, Anita J, Richard M, Benjamin T 2005 *International Society for Optical Engineering* **5995** 599510
- [5] Cao T T, Luo S R, Zhao X Y, Liang H M, Wang H B, Yang J G 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 5554 (in Chinese) [曹婷婷、罗时荣、赵晓艳、梁慧敏、王宏波、杨经国 2007 物理学报 **56** 5554]
- [6] Liu Z M, Liu W Q, Gao M G, Tong J J, Zhang T S, Xu L, Wei X L 2008 *Chin. Phys. B* **17** 4184
- [7] Zhou B, Liu W Q, Qi F, Li Z B, Cui Y J 2001 *Acta Phys. Sin.* **50** 1818 (in Chinese) [周斌、刘文清、齐峰、李振壁、崔延军 2001 物理学报 **50** 1818]
- [8] Chaffin C T, Marshall T L, Chaffin N C 1999 *Field Anal. Chem. Technol.*, **3** 111
- [9] Rothman L S, Jacquemart D, Barbe A, Chris Benner D, Birk M 2005 *J Quant. Spectrosc. and Radiat. Transfer* **96** 139
- [10] David W T Griffith. 1996 *Appl. Spec.* **50** 59
- [11] Liu Z M, Gao M G, Liu W Q, Zhang T S, Xu L, Wei X L, Chen H 2008 *Spectrosc. Spectr. Anal.* **28** 770 (in Chinese) [刘志明、高闽光、刘文清、张天舒、徐亮、魏秀丽、陈华 2008 光谱学与光谱分析 **28** 770]

# Study of the retrieval algorithm of emission gas spatio-temporal distribution of pollution source using the infrared Solar Occultation Flux (SOF) method<sup>\*</sup>

Liu Zhi-Ming<sup>†</sup> Liu Wen-Qing Gao Min-Guang Tong Jing-Jing Zhang Tian-Shu Xu Liang  
Wei Xiu-Li Jin Ling Wang Ya-Ping Chen Jun

(Key Laboratory of Environmental Optics and Technology, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics,  
Chinese Academy of Science, Hefei 230031, China)

(Received 21 September 2009; revised manuscript received 12 November 2009)

## Abstract

Method of solar occultation flux infrared spectroscopy to detect the pollution emission flux of sources is presented in detail. It is developed based on the FTIR technique. A Two-layer radiative transfer model is established theoretically. Algorithm of transmissivity calculation of pollution gas is expatiated. The method to obtain the absorption coefficient of molecules from HITRAN, NIST and QASoft databases is mentioned. Levenberg-Marquardt algorithm is used to calculate column concentration of pollution gas from pollution source. The distribution of column concentration is drawn by software developed by our group. The total system and the sun tracker are shown in the paper. The distribution of column concentration of NH<sub>3</sub> is measured in a chemical plant in Hefei China. The calculated distribution of column concentration of NH<sub>3</sub> is consistent with the measured one in the chemical plant.

**Keywords:** infrared solar occultation flux, FTIR, emission gas, environment monitoring

**PACC:** 3320E, 8670L, 0765G, 3300

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 60708100), the National High Technology Research and Development Program of China (Grant No. 2007AA061504).

† E-mail: zhimingliu@iofm.ac.cn