文章编号：1001-9014(2020)05-0610-09　　DOI：10. 11972/j. issn. 1001-9014. 2020. 05. 012

3.66μm激光外差光谱仪设计与水汽柱浓度反演

黄　俊[1,2]，黄印博[1]，卢兴吉[1*]，曹振松[1]，谈　图[1]，刘丹丹[1,2]

（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 研究生院科学岛分院，安徽 合肥 230026）

摘要：激光外差光谱测量技术具有光谱分辨率高、探测灵敏度高、成本低等特点，近年来在温室气体探测、激光大气传输等领域得到了广泛的应用。以3. 66 μm分布反馈式带间级联激光器作为本振光源搭建了一套高分辨率激光外差太阳光谱测量装置，实现了水汽吸收光谱的实时测量，并利用最优估算法对整层大气中的水汽柱浓度进行了反演，得到合肥地区2019年5月22日和23日的水汽柱浓度。反演结果与同步进行观测的傅里叶变换光谱仪EM27/SUN测量结果变化趋势一致，相关性优于0. 8，偏差小于15%。研究结果表明，搭建的激光外差光谱测量装置能够实现大气中水汽吸收光谱的实时测量以及水汽柱浓度的精确反演，同时为后续的水汽浓度廓线测量与研究奠定了基础。

关　键　词：激光外差；太阳光谱；最优估算法；水汽柱浓度
中图分类号：TN216　　**文献标识码**：A

Design of 3.66 μm laser heterodyne spectrometer and retrieval of water vapor column concentration

HUANG Jun[1,2]，　HUANG Yin-Bo[1]，　LU Xing-Ji[1*]，　CAO Zhen-Song[1]，　TAN Tu[1]，　LIU Dan-Dan[1,2]

（1. Key Laboratory of Atmospheric Optics，Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics，Chinese Academy of Sciences，Hefei 230031，China；
2. Science Island Branch of Graduate School，University of Science and Technology of China，Hefei 230026，China）

Abstract：Laser heterodyne spectroscopy has been widely used in greenhouse gas detection and laser atmospheric transmission in recent years，because of its high spectral resolution，simple structure and low cost. A laser heterodyne spectrum detection system using 3. 66 μm DFB laser as local oscillator source was designed. The real-time and accurate measurements of water vapor absorption spectrum in the whole atmosphere was also realized. Furthermore，the signal-to-noise ratio after 12 averaging is 160. 4，and the spectral resolution is 0. 009 cm^{-1}. The average values of water vapor column concentration of Hefei on May 22 and 23 are 1549 ppmv and 1730 ppmv respectively. By comparing and analyzing the measurement results of laser heterodyne spectrometer and Fourier transform spectrometer（EM27/SUN），the correlation between them is 0. 895 and 0. 819，and the deviation is 14. 2% and 11. 2% respectively. With the design and research of the system，the real-time measurements of the solar absorption spectrum of water vapor in the atmosphere and the precise inversions of water vapor column density were realized，which laid a foundation for more accurate detection and concentration inversion of the absorption spectrum of water vapor and its isotope HDO.

Key words：laser heterodyne，solar spectrum，optimal estimation method，water vapor column concentration

收稿日期：2019- 12- 10，**修回日期**：2020- 03- 16　　**Received date**：2019- 12- 10，**Revised date**：2020- 03- 16
基金项目：中国科学院战略性先导科技专项（A 类）（XDA17010104）；中国科学院青年创新促进会资助课题（2015264）
Foundation items：Supported by the Strategic Priority Research Program of Chinese Academy of Sciences（XDA17010104）；the Youth Innovation Promotion Association of Chinese Academy of Sciences（2015264）
作者简介（Biography）：黄俊（1994-），男，安徽六安人，博士研究生，主要研究领域为激光外差、光电检测。E-mail：hungjune@mail. ustc. edu. cn
*通讯作者（Corresponding author）：E-mail：lxj168@mail. ustc. edu. cn

PACS:: 42. 62. Fi,29. 30. -h,29. 85. Fj,42. 68. Ca

引言

水汽是地球大气中最重要的温室气体,吸收了约五分之一的太阳辐射能量[1],是影响地球辐射收支平衡的重要气体。它不仅是成云致雨的条件,也是连接海—气系统、地—气系统中物质、能量传输的纽带。同时,水汽还是天气和气候的主要驱动力,是预测降雨、中小尺度恶劣天气以及全球气候变化的一个非常重要的物理量。Held等人的研究表明[2],水汽对CO_2等气体产生的温室效应具有正反馈作用,即全球气温升高增强了大气存储水汽的能力,更多的水汽会吸收更多的辐射而进一步加热大气。水汽还可以作为示踪剂来研究对流层上层和平流层下层之间的大气动力学和平流层—对流层交换过程[3]。除此之外,水汽对激光大气传输也有着重要的影响,水汽分子对激光能量的吸收,会导致激光产生非线性畸变,从而严重影响激光在大气中的传输效果[4]。因此,大气中水汽浓度研究对气候变化和激光在大气中的传输等研究都具有重要的意义。

大气中水汽浓度的测量方法有很多,无线电探空是常见的水汽浓度测量方式之一,该方式可获得水汽浓度的垂直分布,但是由于其测量时间较为固定、测量路径不可控等方面的限制,无法实现指定路径且时间连续的水汽浓度测量,导致其测量范围和数据存在不足。激光雷达因具有高时间分辨率和高空间分辨率等特点,在水汽浓度测量等方面得到了广泛的应用,但是该方式探测高度有限,无法对整层大气的水汽浓度进行测量。傅里叶变换光谱仪能够以非常高的精度和光谱分辨率测量整层大气中的水汽柱浓度和垂直分布,在全球水汽浓度测量研究中扮演着重要的角色,然而其光谱分辨率越高体积就越大,且成本较高,给水汽浓度测量带来诸多不便。

激光外差光谱测量技术是一种高光谱分辨率和高信噪比的光谱测量技术,光谱分辨能力($\upsilon/\Delta\upsilon$)一般可达10^5以上,可以获得精确而丰富的光谱信息[5-6]。在光谱分辨率相近的情况下,激光外差光谱仪比傅里叶变换光谱仪体积更小更易于集成,因此该技术近年来在温室气体测量以及激光大气传输等领域得到了广泛的研究和应用[7-9]。基于上述原因,国内外研究人员利用该技术对多种大气分子的吸收谱线进行了测量并取得了较好的结果。Weidmann等[10]使用8. 4 μm波段量子级联激光器(Quantum Cascade Laser, QCL)作为本振光源搭建了激光外差系统,测量了CH_4、N_2O等五种大气分子的吸收光谱,并反演了这些气体的垂直廓线。Parvitte等[11]使用9 μm波段QCL激光器作为本振光源搭建的激光外差系统测量了大气中O_3的吸收光谱,证明了QCL激光器作为本振光源相较于传统的CO_2激光器、铅盐激光器等具有独特的优势。Rodin等[12]使用1. 65 μm分布反馈式(Distributed Feedback,DFB)激光器搭建的激光外差探测系统测量了大气中CO_2和CH_4在该波段内的吸收光谱,光谱分辨能力高达10^8。在国内,中国科学院安徽光学精密机械研究所首次报道了以4. 4 μm波段QCL激光器为本振光源搭建的中红外激光外差装置,并以黑体为信号源测量了CO_2在2241. 866 cm^{-1}处的吸收谱线,该系统在积分时间为5s时信噪比达到了86[5]。后续设计并搭建了以3. 53 μm窄线宽DFB激光器为本振光源的外差装置,测量了大气中H_2O和CH_4的吸收光谱,实现了大气中H_2O和CH_4柱浓度的同步反演,并对激光外差光谱仪仪器线型函数进行了理论分析[6,13]。

上述研究都取得了比较丰富的研究成果,主要关注的气体为CO_2、CH_4及O_3等[14-15]温室气体。本文在实验室前期研究的基础上,以3. 66 μm波段DFB型带间级联激光器(Interband Cascade Laser, ICL)作为本振光源搭建了一台激光外差光谱仪。相较于其他水汽测量波段,3. 66μm波段水汽吸收强度适中,不会出现吸收饱和,非常适合利用激光外差光谱测量技术进行测量和水汽柱浓度反演的研究;该波段其他气体分子吸收很弱,干扰小,有利于水汽柱浓度的反演。此外,3. 66μm波段包含水汽同位素HDO的吸收峰,因此本实验装置可为水汽同位素丰度的测量研究打下基础。因此,实验室利用3. 66μm激光外差光谱仪实时测量了合肥地区高分辨率水汽吸收光谱并采用最优估算法实现了对水汽柱浓度的反演,获取了观测期间的水汽柱浓度,并与商用的傅里叶变换光谱仪EM27/SUN的实测数据做了对比分析。

1 激光外差原理与反演算法

1.1 激光外差原理

激光外差的原理如图1所示，本振光与信号光合束后输入外差探测器，并在探测器的光敏面上进行混频，从而产生外差信号。

假设本振光与信号光的电场分量分别为E_L和E_S，即：

$$E_L = A_L \cos\omega_L t \quad , \quad (1)$$

$$E_S = A_S \cos\omega_s t \quad . \quad (2)$$

两束光在量子效率为α的探测器光敏面上混频产生的光电流为：

$$i = \alpha(A_L \cos\omega_L t + A_S \cos\omega_s t)^2 \quad . \quad (3)$$

由于探测器频率响应带宽的限制，且倍频与和频的频率很高，探测器无法响应，将式(3)展开后可忽略高频项，即：

$$\begin{aligned} i &= \frac{\alpha}{2}(A_L^2 + A_S^2) + \alpha A_L A_S \cos(\omega_L t - \omega_S t) \\ &= i_{dc} + i_{ac} \end{aligned} \quad . \quad (4)$$

上式中的交流项即为外差信号，外差信号的功率可表示为：

$$\begin{aligned} P_{ac} &= {i_{ac}}^2 R \\ &= \alpha^2 A_L^2 A_S^2 R \cos^2(\omega_L - \omega_S)t \\ &= \frac{1}{2}\alpha^2 A_L^2 A_S^2 R[1 + \cos 2(\omega_L - \omega_S)t] \\ &= 2\alpha^2 P_L P_S R[1 + \cos 2(\omega_L - \omega_S)t] \end{aligned} \quad , \quad (5)$$

其中P_L为本振光功率，P_S为信号光功率，R为负载电阻。因为探测器探测到的功率为一段时间内的平均功率，平均时间远大于外差信号的周期，$cos2(\omega_L-\omega_S)t$项在一段时间内的平均结果可视为零。因此可得外差信号的平均功率为[5,16]：

$$\overline{P_{ac}} = 2\alpha^2 P_L P_S R \quad . \quad (6)$$

由式(6)可以看出，外差信号的功率正比于本振光和信号光的功率。因此在已知本振光功率的情况下，探测得到外差信号的功率，再反推出信号光的功率，即可得到信号光所包含的信息。从上述分析中可以看出，外差探测具有如下多个优点：(1)外差信号的功率正比于本振光和信号光的功率，由于本振光功率的放大作用，即使在信号光较弱的情况下，也可获得较好的光谱信号；(2)由于探测器带宽的限制，探测器直接滤除了绝大多数的背景噪声，有利于减小干扰、提高信噪比；(3)外差信号处于射频范围内，易于后续信号处理电路的采集和处理。

1.2 水汽柱浓度反演算法

基于气体吸收光谱获得气体浓度的反演算法，常用的有非线性最小二乘法、蒙特卡罗法和最优估算法等。其中，基于贝叶斯统计理论的最优估算法非常适用于气体浓度的反演，该算法最早由C. Rodgers等[17]提出，目前已在遥感反演问题中得到了广泛应用，且取得了丰富的研究成果。实验室在前期对非线性最小二乘法等反演算法研究的基础上，对最优估算法反演水汽柱浓度进行了进一步研究。对某种气体浓度进行反演时，对于光谱仪测量得到的光谱数据y，可用前向模型表示为：

$$y = F(x) + \delta, \quad (7)$$

其中，向量x表示大气的状态参数，δ为测量过程中引入的随机误差或系统误差。反演即是利用一函数关系R在各种约束条件下确定大气状态参数x的过程，即：

$$x = R(y, x_a, c), \quad (8)$$

其中，R为测量结果到状态空间的函数关系，x_a为先验信息向量，c为反演过程中不变的量。反演的过程中，除测得的光谱数据，还需确定一些约束条件和先验信息，包括Jacobian矩阵、增益系数、先验廓线及先验廓线的协方差矩阵等几个比较关键的参数。

Jacobian矩阵表征的是气体浓度起伏对透过率变化的影响程度，可由下式计算得到：

$$K_i = \frac{\partial F(x_i)}{\partial x_i} = \frac{\Delta T_i}{\Delta \rho_i} \quad . \quad (9)$$

由于信号在不同波长处受检波器、放大器等器件的影响而产生的增益变化，因此设置增益系数以

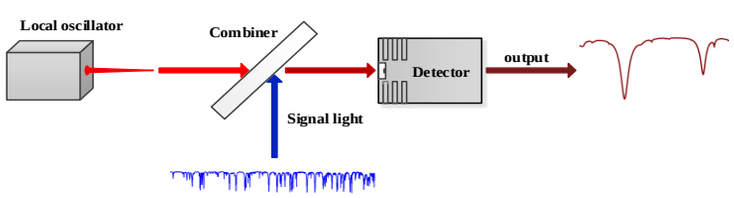


图1 激光外差原理示意图

Fig. 1 Schematic diagram of laser heterodyne principle

减小上述因素对反演结果的影响。激光外差光谱仪的光谱测量范围较小,增益系数可以设置为与波长v相关的一阶多项式:

$$G(v) = av + b \quad . \quad (10)$$

先验廓线是反演所需重要参数之一,本文采用的先验廓线来自欧洲中尺度天气预报中心(European Centre for Medium-Range Weather Forecasts, ECMWF)[18]。先验廓线的协方差矩阵则表示气体的浓度变化情况,计算公式如下:

$$S_a = \sigma_i \sigma_j \exp(-|h_i - h_j| \frac{\Delta}{w}) \quad , \quad (11)$$

其中σ_i,σ_j分别表示第i,j层气体浓度的标准差,h表示高度,Δ表示高度分层间隔大小,w表示相关高度,根据 Lerner 等[19]的研究,水汽的相关高度为 1 km。

确定上述信息之后,即可利用最优估算法对水汽柱浓度进行反演,反演流程如图 2 所示[17, 20-22].

首先,对原始光谱数据进行去除直流调制和背景噪声等预处理,并利用温度、压强和先验廓线等参数获得初始透过率;然后,根据预处理后的光谱数据和大气透过率初始值,得到初始 Jacobian 矩阵和初始增益系数;最后,通过循环迭代计算代价函数χ^2和状态向量。代价函数和状态向量的表达式如下所示:

$$\chi^2 = \left[y - F(x_i)\right] S_\varepsilon^{-1} \left[y - F(x_i)\right]^T + \left[x_a - x_i\right] S_a^{-1} \left[x_a - x_i\right]^T, \quad (12)$$

$$x_{i+1} = x_i + \left[K_i^T S_\varepsilon^{-1} K_i + (1 + \gamma_i) S_a^{-1}\right]^{-1} \left[K_i^T S_\varepsilon^{-1} (y - F(x)) - S_a^{-1} (x_i - x_a)\right], \quad (13)$$

其中,γ_i是第i次迭代时的拉格朗日因子。当迭代满足输出条件时,即可退出迭代,否则继续上述循环。最后,将输出的水汽浓度廓线进行积分即可得到水汽的柱浓度。

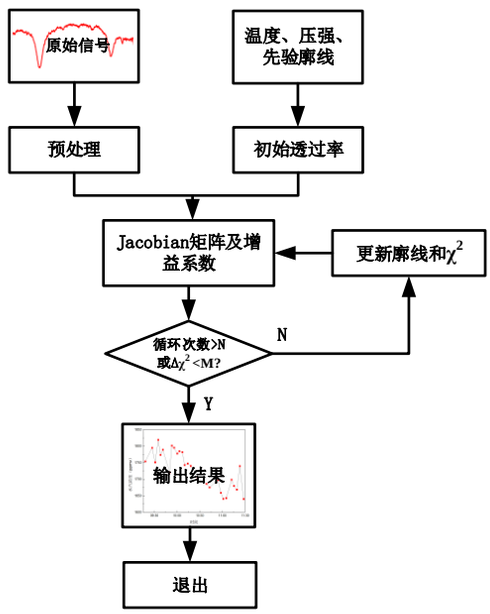


图 2　水汽柱浓度反演流程图

Fig. 2　Flow chart of water vapor column concentration inversion

2　光谱仪结构组成与参数设置

2.1　结构组成

本文研制的 3.66 μm 激光外差光谱仪主要由太阳跟踪收集、光束耦合探测和信号调理采集三个部分组成,与之前搭建的激光外差装置类似[6],整个结构如图 3 所示.

测量时,由太阳跟踪器收集的太阳光经两块离轴抛物面镜整形后,经过斩波器进行振幅调制,并

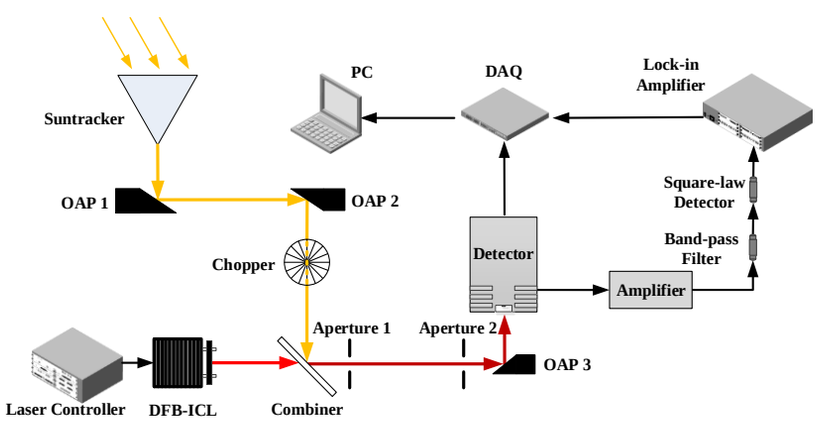


图 3　激光外差光谱仪系统结构示意图

Fig. 3　Structure diagram of laser heterodyne spectrometer system

与本振激光在合束镜上进行合束，合束后的光束再经过一个离轴抛物面镜整形后进入光电探测器进行混频，并在探测器上产生外差信号。外差信号再依次经过射频放大、带通滤波和平方率检波器后进入锁相放大器进行解调，最终得到的光谱信号经采集卡采集后保存到电脑并实时显示。

太阳光收集部分由太阳跟踪器和一对抛物面镜组成。太阳跟踪器为实验室自行研制[5]，跟踪精度为0.07 mrad，该精度能够满足激光外差光谱仪的跟踪要求。离轴抛物面镜一方面可以对太阳跟踪器收集到的太阳光进行整形，减小太阳光发散角与激光发散角间的差异；另一方面可以减小太阳光的发散程度，提高太阳光的传输效率，从而提高信噪比。

外差耦合光路作为激光外差光谱仪的核心部分，其各组成器件之间的相对位置决定了光谱仪的外差效果。因此在设计和搭建外差光路时，主要考虑了以下方面：(1)选择对温度变化不敏感的材料制成的实验器材，以减小因温度变化而造成整个光路的偏移；(2)在合束镜与抛物面镜3之间设置两个光阑以便本振光与信号光更好的共线，这里设置的光阑距离不小于25 cm；(3)采用离轴抛物面镜反射的方式将两束光入射到探测器，既可以对光束进行聚焦，提高耦合效率，也有利于对入射角度进行调节。

信号调理与采集电路是获取光谱信号的关键部分，本激光外差光谱仪采用调制解调的方式提取光谱信号。探测器输出的外差信号由于夹杂噪声信号，因此需要经过以下处理：(1)对外差信号进行前级放大，以减小后续信号处理过程中因信号幅值衰减引起的信噪比衰减；(2)对外差信号进行带通滤波处理，限制信号的带宽以减小噪声对信号的干扰；(3)最后利用锁相放大器对信号进行解调，进一步抑制噪声，提高信噪比。

2.2 主要器件及参数设置

(1)本振激光器。本振激光器的性能直接决定了整个系统的探测性能。本装置中采用的是Nanoplus公司生产的DFB型ICL作为本振光源，该激光器在3.66 μm波段的输出功率约为5 mW，且可以连续无跳模扫描，边模抑制比优于30 dB，线宽小于10 MHz。实验设置的本振激光扫描范围为：2730.388~2732.768 cm^{-1}，该扫描范围完整覆盖了水汽及其同位素HDO的吸收峰。

(2)光电探测器。本装置中采用的光电探测器是VIGO公司PV-2TE-4型二级制冷探测器，由于该探测器的温控性能优越(光敏面温度可稳定在-40 ℃)，因此其热噪声极小。该探测器在3.66 μm波段的响应度优于3×10^{10} cm·$Hz^{1/2}$/W，且其前级放大的带宽约为100 MHz，相关参数满足该波段激光外差光谱探测的要求。

(3)其他参数如表1所示：

表1 信号处理电路相关参数

Table 1 Parameters of signal processing circuit

参数名称	参数
前级放大	13 dB
滤波带宽	48 MHz
灵敏度	1 mV
积分时间	10 ms

前级放大既要提高信号的幅值也要保证放大后的信号幅值后续器件能够承受，经计算13 dB的前级放大符合设计要求。滤波带宽、灵敏度以及积分时间这三个参数是相关联的，滤波带宽越窄，光谱分辨率越高，但带宽过窄不利于信噪比的提高；灵敏度对光谱分辨率有着一定的影响，过高的灵敏度会降低系统的信噪比；积分时间越大，信噪比越好，但是积分时间过大会降低系统的光谱分辨率。因此，经综合考虑，滤波带宽设置为48 MHz，灵敏度设置为1 mV，积分时间设置为10 ms是一个较优的组合，且满足实验要求。

2.3 光谱分辨率与信噪比

光谱分辨率是衡量光谱仪性能的重要参数，光谱测量仪器输出的光谱信号是输入光谱信号与仪器线型函数卷积的结果。如图4所示，输入光谱信号与具有一定线型和宽度的仪器线型函数卷积，必然会造成实际输出的光谱信号失真，如果忽略仪器线型函数对光谱测量的影响，计算整层大气透过率和反演气体浓度时将不可避免地存在较大误差。

前期计算激光外差光谱仪的光谱分辨率时，将射频滤波器的双边带宽视为光谱仪的光谱分辨率，然而该计算方式忽略了积分时间的影响，在本振光扫描较快、光谱测量范围较大或积分时间较大时会存在光谱平滑，降低光谱分辨率，如仍用双边带带宽代表光谱分辨率，则将会产生较大误差。根据实验室近期的研究结果，激光外差光谱仪的仪器线型函数为本振光线型函数$f(\omega)$、射频滤波频域响应函数$H(\omega)$和低通滤波器时域响应函数h_{LP}三者的

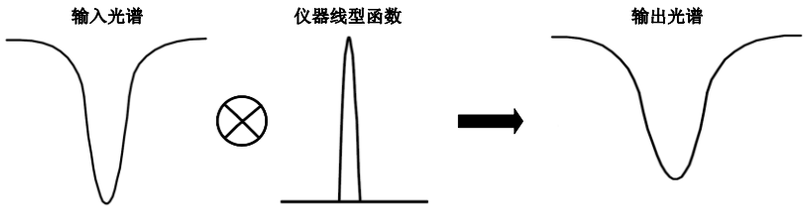


图4光谱信号与仪器线型函数卷积示意图

Fig. 4　Convolution diagram of spectral signal and instrument line shape function

卷积[13]:

$$ILS = f(\omega) * H(\omega) * h_{LP} \tag{14}$$

根据式(14),射频滤波带宽为48 MHz时,积分时间分别为10 ms,30 ms和100 ms时的激光外差光谱仪仪器线型函数理论值如图5所示.

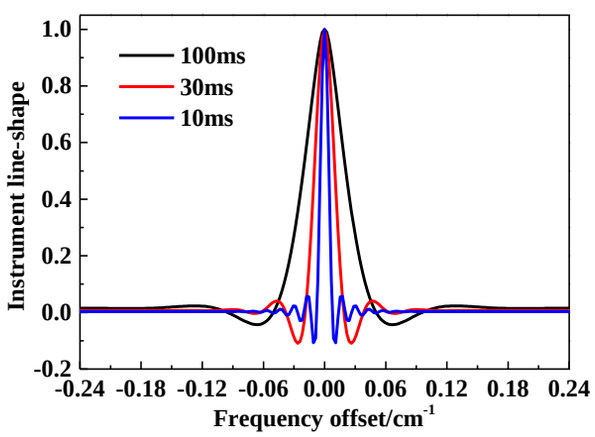


图5　激光外差光谱仪的仪器线型函数

Fig. 5　The instrument line-shape function of laser heterodyne spectrometer

当积分时间为10 ms,根据仪器线型函数的半高全宽得到激光外差光谱仪的光谱分辨率为0.009 cm^{-1},该光谱分辨率能够满足水汽吸收光谱测量和柱浓度反演的要求。

激光外差光谱仪的信噪比是光谱信号质量的重要体现。在无分子吸收的波段利用有信号光与无信号光时的输出值可计算出光谱仪的信噪比。如图6所示,在与实验参数相同的情况下,有信号光和无信号光分别采集输出信号12s,有信号光时输出信号幅值在12s内的平均值为3.739V,标准差为0.077V。无信号光时输出信号幅值(背景信号)在12s内的平均值为0.174V,可得单次信噪比SNR_S为46.3。在实际测量水汽吸收光谱时,光谱信号进行了12次平均,经计算12次平均后的水汽吸收光谱信号信噪比SNR_A为160.4。

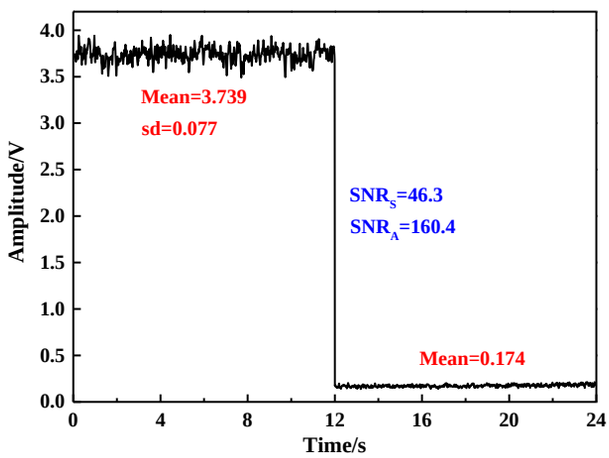


图6　3.66μm激光外差光谱仪信噪比

Fig. 6　SNR of 3.66 μm laser heterodyne spectrometer

3　实验结果

2019年5月22日至23日,使用3.66 μm波段激光外差光谱测量装置对合肥地区的水汽吸收光谱进行了测量并对水汽柱浓度进行了反演。

如1.2所述,在进行水汽柱浓度反演时,首先需要设置先验廓线、计算Jacobian矩阵等关键参数。在计算水汽的Jacobian矩阵时,将每层水汽浓度起伏设置为±1%,并利用逐线积分辐射传输模型(Line-By-Line Radiative Transfer Model, LBLRTM)计算透过率起伏,从而获得水汽的Jacobian值,如图7所示。

根据图7中Jacobian值的结果,5 km以上水汽的Jacobian值趋于0,说明该高度以上的水汽浓度极小,水汽浓度对透过率几乎没有影响,这与约90%的水汽集中于海拔5 km以下的情况相符。

5月22日合肥地区水汽先验廓线和最优估算法反演得到的其中一组水汽浓度廓线如图8所示。从图中可以看出,反演的水汽浓度在高度上的分布符合一般的变化规律,且较好地反映出测量时水汽浓度与先验值间的变化。

测量的3.66μm波段水汽吸收谱线与反演拟合结果如图9所示,黑色曲线为实际测得的光谱信号,

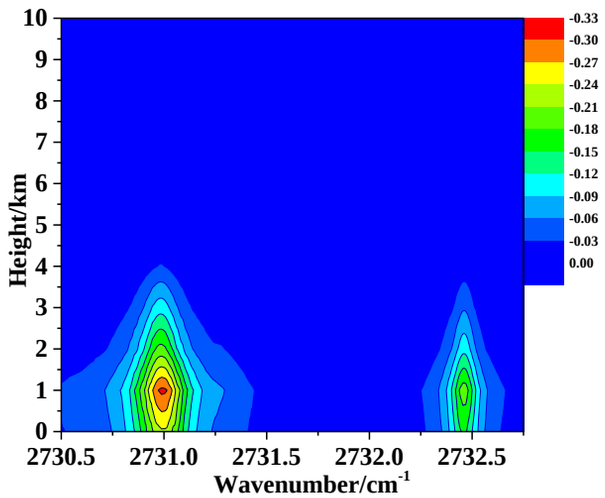


图7 3.66 μm波段水汽的Jacobian值

Fig. 7 The Jacobian value of water vapor in 3.66 μm

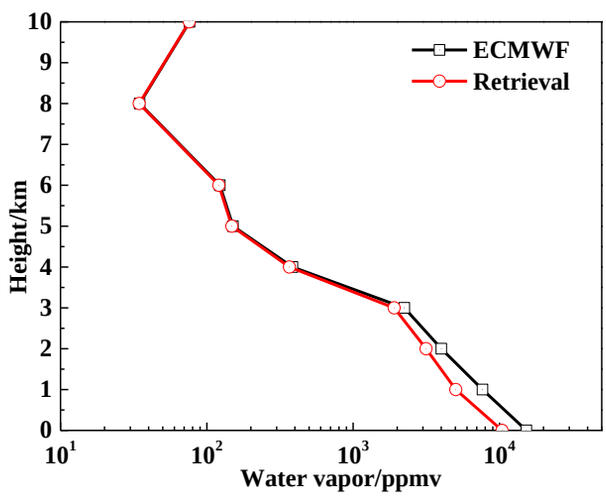


图8 水汽先验廓线与反演结果

Fig. 8 The priori and the retrieved profile of water vapor

红色曲线是最优估算法反演拟合的光谱信号。从图中可以看出,实际光谱信号与LBLRTM反演拟合结果比较一致,残差在±0.1V以内。

对上述反演输出的水汽浓度廓线进行积分,即可获得水汽柱浓度。为了评估反演数据的准确性,将测量结果与实验室现有的傅里叶变换光谱仪EM27/SUN测量结果进行对比分析。EM27/SUN由德国Bruker公司研发,反演算法由卡尔鲁斯厄大气实验室Hase等[23]研发,可反演包括水汽、CO_2和CH_4等多种温室气体的柱浓度。

5月22日、23日激光外差光谱仪水汽柱浓度的测量结果与傅里叶变换光谱仪EM27/SUN的测量结果对比如图10所示。3.66 μm激光外差光谱测量仪得到的22日和23日水汽柱浓度均值分别为1549 ppmv和1730 ppmv,EM27/SUN得到的水汽柱浓度均值分别为1806 ppmv和1949 ppmv。5月22日和23日的测量时间段内,两种探测方式获得的水汽柱浓度变化趋势一致性较好。从水汽浓度的起伏可以看出,3.66 μm激光外差光谱测量仪具有与商用光谱仪EM27/SUN相近的探测灵敏度。

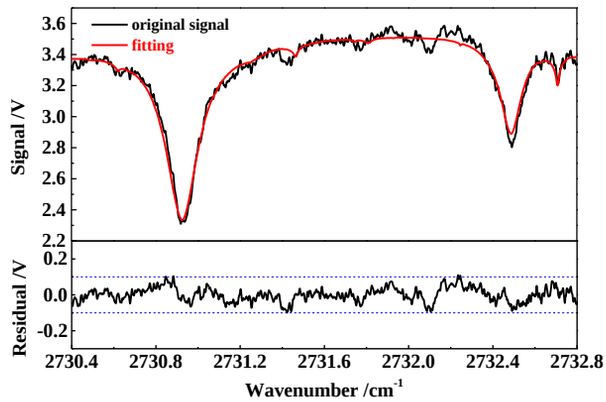


图9 激光外差光谱信号与反演拟合结果

Fig. 9 Laser heterodyne spectral signal and the retrieval fitting

对激光外差光谱仪和傅里叶变换光谱仪EM27/SUN水汽柱浓度测量结果进行相关性分析,结果如图11所示。22日、23日的相关性分别为0.895,0.819,两种结果的相关性较高,因此使用最优估算法反演水汽柱浓度具有较好的准确性。

两种探测方式得到的水汽浓度仍存在一定偏差,22日与23日两天的结果偏差($|c_{LHS}-c_{EM27}|/c_{EM27}$)分别为14.2%和11.2%。可能由以下原因造成:(1)激光外差光谱仪的信噪比与EM27/SUN不同,测量的光谱信号存在一定误差,导致反演结果整体偏小;(2)两种探测方式的反演算法关于先验廓线、先验廓线协方差矩阵等的设置有差别,可能导致各自得到的结果在数值大小上存在差异;(3)傅里叶变换光谱仪测量的为近红外波段,激光外差光谱仪测量的是3.66 μm波段,两者受其他分子吸收的影响程度不同。下一步将针对上述问题做更深入的研究,进一步提高水汽柱浓度测量的精度。

4 结论

基于激光外差原理搭建了一套3.66 μm激光外差光谱测量装置,实现了对该波段水汽的测量,12次平均信噪比可达160.4,光谱分辨率为0.009 cm^{-1}。同时利用最优估算法反演得到5月22日、23日的水汽柱浓度,分别为1549 ppmv和1730 ppmv。

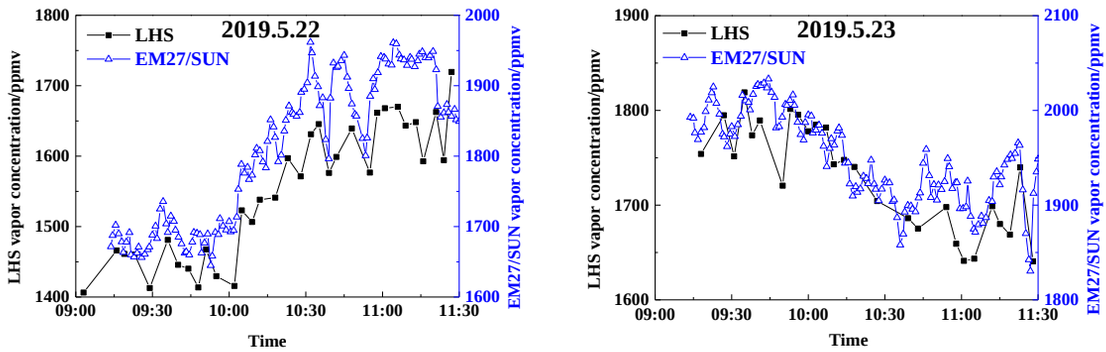


图 10　5 月 22 日与 23 日水汽柱浓度测量结果

Fig. 10　Measured results of water vapor column concentration on 22 and 23 May

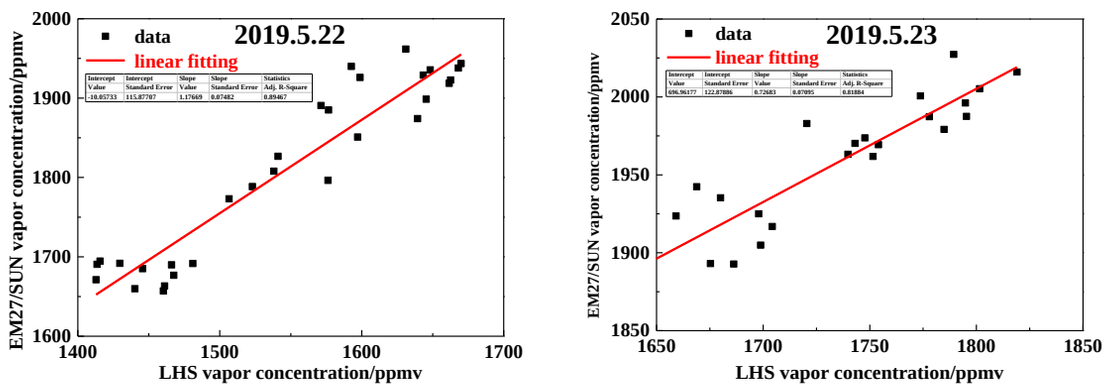


图 11　激光外差光谱仪和傅里叶变换光谱仪水汽柱浓度相关性分析

Fig. 11　Correlation analysis of water vapor column concentration between laser heterodyne spectrometer and Fourier transform spectrometer

上述结果与同时进行观测的傅里叶变换光谱仪 EM27/SUN 得到的水汽柱浓度变化趋势一致,相关性分别为 0.895 和 0.819,偏差分别为 14.2% 和 11.2%。上述研究结果体现了激光外差光谱测量装置的高光谱分辨率和良好的水汽吸收光谱测量性能,为后续研究水汽廓线奠定了基础。

References

[1] SHENG Pei-Xuan. Atmospheric Physics (2nd Edition) [M]. Beijing: Peking University Press(盛裴轩. **大气物理学(第2版)**. 北京:北京大学出版社),2013.

[2] Held I M, Soden B J. Robust Responses of the Hydrological Cycle to Global Warming[J]. *Journal of Climate*, 2006, **19**(21): 5686-5699.

[3] Pan L L, Bowman K P, Shapiro M, *et al*. Chemical Behavior of the Tropopause Observed During the Stratosphere-Troposphere Analyses of Regional Transport Experiment [J]. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 2007, **112**(D18).

[4] PU Tao-Yuan. Analysis of the Thermal Blooming Effect of High Energy Laser Propagation in the Atmosphere [D]. Chengdu: University of Electronic Science and Technology of China(蒲桃园. 高能激光大气传输热晕效应分析. 成都:电子科技大学), 2010.

[5] TAN Tu, CAO Zhen-Song, WANG Gui-Shi, *et al*. Study on the Technology of the 4.4 μm Mid-Infrared Laser Heterodyne Spectrum [J]. *Spectroscopy and Spectral Analysis*(谈图, 曹振松, 王贵师, 等. 4.4μm中红外激光外差光谱探测技术研究. **光谱学与光谱分析**), 2015, **35**(06): 1516-1519.

[6] LU Xing-Ji, CAO Zhen-Song, HUANG Yin-Bo, *et al*. Laser Heterodyne Spectrometer for Solar Spectrum Measurement in the 3.53μm Region[J]. *Optics and Precision Engineering*(卢兴吉, 曹振松, 黄印博, 等. 3.53μm激光外差太阳光谱测量系统. **光学精密工程**), 2018, **26**(08): 1846-1854.

[7] Sonnabend G, Krötz P, Schmülling F, *et al*. Thermospheric/Mesospheric Temperatures on Venus: Results from Ground-based High-resolution Spectroscopy of CO_2 in 1990/1991 and Comparison to Results from 2009 and Between other Techniques [J]. *Icarus*, 2012, **217**(2): 856-862.

[8] Ren Y, Hovenier J N, Higgins R, *et al*. Terahertz Hetero-

dyne Spectrometer Using a Quantum Cascade Laser[J]. *Applied Physics Letters*, 2010, **97**(16): 161105.

[9] YE Song, FANG Yong-Hua, HONG Jin, *et al*. System Design of Spatial Heterodyne Spectrometer[J]. *Optical and Precision Engineering*(叶松, 方勇华, 洪津, 等. 空间外差光谱仪系统设计. **光学精密工程**), 2006, **14**(6): 959-964.

[10] Weidmann D, Tsai T, Macleod N A, *et al*. Atmospheric Observations of Multiple Molecular Species Using Ultra-high-resolution External Cavity Quantum Cascade Laser Heterodyne Radiometry [J]. *Optics Letters*, 2011, **36**(11): 1951-1953.

[11] Parvitte B, Joly L, V. Zéninari, *et al*. Preliminary Results of Heterodyne Detection with Quantum-cascade Lasers in the 9 μm Region[J]. *Spectrochimica Acta Part A Molecular & Biomolecular Spectroscopy*, 2004, **60**(14): 3285-3290.

[12] Rodin A, Klimchuk A, Nadezhdinskiy A, *et al*. High Resolution Heterodyne Spectroscopy of the Atmospheric Methane NIR Absorption[J]. *Optics Express*, 2014, **22**(11): 13825-13834.

[13] LU Xing-Ji, CAO Zhen-Song, TAN Tu, *et al*. Instrument Line Shape Function of Laser Heterodyne Spectrometer [J]. *Acta Physica Sinica*(卢兴吉, 曹振松, 谈图, 等. 激光外差光谱仪的仪器线型函数研究. **物理学报**), 2019, **68**(06): 136-142.

[14] Wilson E L, Mclinden M L, Miller J H, *et al*. Miniaturized Laser Heterodyne Radiometer for Measurements of CO_2 in the Atmospheric Column[J]. *Applied Physics B*, 2013, **114**(3): 385-393.

[15] Hoffmann A, Macleod N A, Huebner M, *et al*. Thermal Infrared Laser Heterodyne Spectroradiometry for Solar Occultation Atmospheric CO_2 Measurements[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2016, **9**(12): 5975-5996.

[16] WU Qing-Chuan, HUANG Yin-Bo, TAN Tu, *et al*. High-Resolution Atmospheric-Transmission Measurement with a Laser Heterodyne Radiometer[J]. *Spectroscopy and Spectral Analysis*(吴庆川, 黄印博, 谈图, 等. 基于激光外差技术的高分辨率整层大气透过率测量. **光谱学与光谱分析**), 2017, **37**(06): 1678-1682.

[17] LU Xing-Ji. Spectral Measurements of Greenhouse Gas by Laser Heterodyne Spectrometer and Retrieval Algorithm [D]. Hefei: University of Science and Technology of China(卢兴吉. 温室气体激光外差光谱测量技术与反演算法研究. 合肥:中国科学技术大学), 2019.

[18] Molteni F, Buizza R, Palmer T N, *et al*. The ECMWF Ensemble Prediction System: Methodology and Validation [J]. Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society, 1996, **122**(529).

[19] Lerner J A, Weisz E, Kirchengast G. Temperature and Humidity Retrieval from Simulated Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (IASI) Measurements[J]. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 2002, **107**(D14): *ACH-1-ACH 4*-11.

[20] ZHANG Shang-Lu, HUANG Yin-Bo, LU Xing-Ji, *et al*. Retrieval of Atmospheric H_2O Column Concentration Based on Mid-Infrared Inter-Band Cascade Laser Heterodyne Radiometer[J]. *Spectroscopy and Spectral Analysis*(张尚露, 黄印博, 卢兴吉, 等. 激光外差光谱仪的水汽柱浓度反演研究. **光谱学与光谱分析**), 2019, **39**(04): 1317-1322.

[21] LIU Jin, SI Fu-Qi, ZHOU Hai-Jin, *et al*. Measurement of Atmospheric Water Vapor Column Density with Passive Differential Optical Absorption Spectroscopy Technology [J]. *Acta Optica Sinica*(刘进, 司福祺, 周海金, 等. 被动差分吸收光谱技术测量大气中水汽垂直柱浓度. **光学学报**), 2013, **33**(08): 16-21.

[22] MOU Fu-Sheng, LUO Jing, LI Su-Wen, *et al*. Aerosol Extinction Retrieved with Optical Estimation Algorithm Based on Multi-axis Differential Optical Absorption Spectroscopy[J]. *Acta Photonica Sinica*(牟福生, 雒静, 李素文, 等. 基于多轴差分吸收光谱技术的最优估算法反演气溶胶消光廓线研究. **光子学报**), 2018, **47**(07): 237-242.

[23] Hase F, Hannigan J W, Coffey M T, *et al*. Intercomparison of Retrieval Codes Used for the Analysis of High-resolution, Ground-based FTIR Measurements[J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 2004, **87**(1): 25-52.