

激光雷达同时遥感二氧化碳和水汽同位素的敏感性分析

余赛芬^{1,2}, 章振^{1,2*}, 夏海云^{1,2}¹南京信息工程大学大气物理学院, 江苏 南京 210044;²国家碳计量中心(福建), 福建 南平 353011

摘要 评估了差分吸收激光雷达同时遥感大气二氧化碳和半重水浓度垂直廓线的可行性和相关的误差来源。首先, 基于差分吸收激光雷达原理和反演过程计算了不同大气模型下二氧化碳和水汽同位素的光学厚度光谱, 明确了二氧化碳和半重水同步探测的波长选择。其次, 根据碰撞展宽和多普勒展宽效应及权重函数的贡献, 对各气体的吸收线型进行校正。最后, 基于校正的光谱验证了 R16 线用于二氧化碳和半重水浓度反演的可行性, 并分析了大气因素、激光频率漂移以及光谱重叠效应对二氧化碳和半重水浓度反演的影响。结果表明: 在中纬度地区的对流层内, 基于差分吸收激光雷达同时遥感 200 m 距离分辨率的二氧化碳和半重水浓度垂直廓线的误差分别在 2% 和 8% 以内; 在忽略半重水吸收的影响时, 二氧化碳线中心的距离分辨浓度误差可达 1.87%, 同时测量二氧化碳和半重水浓度可有效避免该误差。

关键词 大气光学; 差分吸收激光雷达; 二氧化碳; 水汽同位素; 垂直廓线; 敏感性

中图分类号 P407 文献标志码 A

DOI: 10.3788/AOS241372

1 引言

二氧化碳(CO₂)和水汽(H₂O)是地球大气中最主要的两种温室气体^[1-2]。CO₂与人类生产活动密切相关, 在大气中停留的时间长达 200 年。在“双碳”目标愿景下, 对大气中温室气体尤其是对 CO₂ 监测精度的要求不断提高^[3]。H₂O 的含量通常与温度正相关, 并为全球变暖提供气候反馈。在水循环的过程中, H₂O 中的 D 和 ¹⁸O 的同位素在蒸发和冷凝的过程中通过同位素分馏发生变化, 因此追踪大气中 H₂O 的稳定同位素气体如半重水(HD¹⁶O)有助于更深入地理解水循环过程及其反馈机制^[4]。

目前, 已有大量基于吸收光谱理论的主被动遥感技术应用于大气 CO₂ 和 H₂¹⁶O 的探测^[5-10]。被动遥感依赖于太阳光, 无法实现昼夜连续探测, 而基于差分吸收激光雷达(DIAL)的主动遥感技术可有效弥补这一不足^[11]。研究表明, H₂¹⁶O 是引起 CO₂ 测量误差的最主要干涉气体。双波长 DIAL 只能对应测量一种气体, 通过选择待测气体的某一条吸收线, 使得 H₂¹⁶O 在该吸收线的在线(on-line)波长和离线(off-line)波长处的吸收近乎相等来最小化其对 CO₂ 的干涉影响^[12]。多波长 DIAL 通过测出多种气体的光谱, 一方面可实现多种气体的同时探测, 另一方面降低干涉气体对待测气体

浓度反演的影响^[13]。Wagner 等^[14]利用多波长积分路径差分吸收(IPDA)激光雷达在 1.6 μm 处分别测量了 CO₂ 和 H₂¹⁶O 的光谱, 随后基于多波长 DIAL 在测得 CO₂ 和 H₂¹⁶O 光谱的基础上反演得到两种气体的距离分辨浓度^[15]。然而, HD¹⁶O 作为 H₂¹⁶O 的稳定同位素气体, 同样影响 CO₂ 的探测精度, 却鲜少被提及。在最近的研究中, Abshire 等^[16]利用机载多波长积分路径差分吸收激光雷达测量 CO₂ 的 R16 吸收线时, 发现该吸收线存在两个 HD¹⁶O 的弱吸收峰, 若忽略其影响, 将导致 2×10^{-6} 的 CO₂ 反演误差。随后, Sun 等^[17]采用迭代反演方法来降低辐射传输模型中由 HD¹⁶O 含量不确定性引起的 CO₂ 反演误差。Yu 等^[18]使用波长扫描的 DIAL 分析了水平路径上 CO₂ 和 HD¹⁶O 在不同季节的混合光谱吸收特性, 并采用三峰拟合的方法从混合光谱中分离出两种气体的独立光谱, 从而分别反演出 CO₂ 和 HD¹⁶O 的分辨浓度^[19]。与此同时, Hamperl 等^[20]在 1.98 μm 光谱区域分析了差分吸收激光雷达探测水汽同位素比的潜力, 并在 2 km 的海拔内通过调节 on-line 波长分时测量了 HD¹⁶O 和 H₂¹⁶O 的垂直廓线^[21]。然而, 在垂直高度上, 尤其是在对流层内, H₂O 和大气参数变化很大, 到目前为止, 还未有激光雷达系统能同时实现 CO₂ 和 HD¹⁶O 的垂直廓线测量, 甚至没有相关的理论分析和可行性验证。

收稿日期: 2024-07-30; 修回日期: 2024-10-06; 录用日期: 2024-10-14; 网络首发日期: 2024-10-18

基金项目: 国家自然科学基金(42305147, 42405138)、江苏省自然科学基金(BK20230428)

通信作者: *003514@nuist.edu.cn

本文基于 MODTRAN 大气模型开展了激光雷达同时遥感大气 CO₂ 和 HD¹⁶O 廓线的敏感性分析。结合 HITRAN 光谱学参数计算了不同大气模型下 CO₂ 和 HD¹⁶O 的混合光谱,通过选择合适的吸收线验证了激光雷达同时测量两种气体的可行性。同时,考虑到垂直高度上大气参数的变化,在对光谱线型和权重函数优化的基础上,评估了 CO₂ 和 HD¹⁶O 路径积分和距离分辨浓度反演误差。进一步研究了大气因素、激光雷达出射激光频率稳定性与 CO₂ 和 HD¹⁶O 的重叠干扰效应对两种气体浓度反演误差的影响。

2 方法

2.1 吸收光谱

每种气体分子都有其独特的吸收光谱,并具有不同的跃迁波数 ν_0 和线强度 S 。光学遥感技术依靠分子的吸收光谱来推断出气体浓度,单条吸收线的吸收截面 σ 可定义为光谱线强度和线型函数 $f(\nu - \nu_0)$ 的乘积^[22],表示为

$$\sigma = S \cdot f(\nu - \nu_0) \quad (1)$$

线强度 S 依赖于温度 T ,在热力学平衡条件下,可进一步表示为

$$S = S_0 \left(\frac{T_0}{T} \right)^{3/2} \left[\frac{1 - \exp\left(\frac{hc\nu_0}{k_B T}\right)}{1 - \exp\left(\frac{hc\nu_0}{k_B T_0}\right)} \right] \cdot \exp\left[\frac{E''hc}{k_B} \left(\frac{1}{T_0} - \frac{1}{T} \right) \right] \quad (2)$$

式中: S_0 表示 $T_0=296$ K 时的线强度; h 为普朗克常数; k_B 为玻尔兹曼常数; c 为光速; E'' 为跃迁的低能态,该值的大小反映了气体的温度敏感性^[7]。

在分子碰撞和热运动的作用下,气体的光谱线型会产生碰撞加宽和多普勒加宽,且在大气温度和压力的作用下呈现出不同的形状^[23]。对于低层大气或高压状态,分子间碰撞频繁,由此引起的展宽所对应的光谱线型由洛伦兹(Lorentzian)函数确定;对于高层大气或低压状态,多普勒展宽占主导地位,其光谱线型由高斯(Gaussian)函数确定;对于二者之间的中间状态,在碰撞加宽的基础上引入多普勒频移量 ν' ,其线型由洛伦兹函数 $f_L(\nu' - \nu_0)$ 和高斯函数 $f_G(\nu - \nu')$ 的卷积即沃伊特(Voigt)函数确定。3种光谱线型^[24]可分别表示为

$$f_L(\nu - \nu_0) = \frac{1}{\pi} \frac{\alpha_L}{(\nu - \nu_0)^2 + \alpha_L^2} \quad (3)$$

$$f_G(\nu - \nu_0) = \frac{1}{\alpha_D \sqrt{\pi}} \exp\left[-\left(\frac{\nu - \nu_0}{\alpha_D} \right)^2 \right] \quad (4)$$

$$f_V(\nu - \nu_0) = \int_{-\infty}^{\infty} f_L(\nu' - \nu_0) f_G(\nu - \nu') d\nu' = \frac{1}{\alpha_D \sqrt{\pi}} \cdot \frac{y}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{1}{y^2 + (x - t)^2} \exp(-t^2) dt \quad (5)$$

式中: $\alpha_L = \alpha_0(p/p_0)(T_0/T)^n$ 表示洛伦兹展宽的半峰半宽(HWHM); p 为大气压强; α_0 表示 $p_0=1$ atm(1 atm=1013 hPa)和 $T_0=296$ K 时对应的洛伦兹展宽的 HWHM; n 为温度指数; $\alpha_D = \nu_0 [2k_B T/(mc^2)]^{1/2}$ 表示多普勒展宽的 HWHM; m 为分子质量; $t = (\nu - \nu')/\alpha_D$; $x = (\nu - \nu_0)/\alpha_D$; $y = \alpha_L/\alpha_D$ 。值得注意的是,不同气体在变化的海拔下所适用的线型函数需要根据温压廓线进一步分析。

2.2 DIAL 原理

CO₂ 和 HD¹⁶O 在红外波段都具有很强的吸收,与紫外波段的其他气体相比,它们在红外波段的吸收线具有更窄的线宽。因此,在单独的 CO₂ 或 HD¹⁶O 吸收截面上波长间的差异很小,除了待测气体外,其他气体的消光过程在 on-line 波长和 off-line 波长处可认为是相等的,并可在计算过程中相互抵消。通常,在使用传统的双波长 DIAL 时,所选择的待测气体的吸收线必须避免其他干扰气体的影响,如果有多种气体的吸收线叠加在一起,理论上可以使用多波长 DIAL 实现多气体遥感。已有研究表明,与双波长 DIAL 相比,先利用多波长 DIAL 进行非均匀频率采样再进行线型拟合,有助于提高气体的整体探测精度^[25]。基于多波长 DIAL 测量的气体差分光学厚度^[26] τ 可表示为

$$\tau = \int_{z_1}^{z_2} N(z) \cdot \Delta\sigma[p(z), T(z)] \cdot dz \quad (6)$$

式中: z_1 和 z_2 分别为对海拔积分的上下限; $N(z)$ 为气体数密度; $\Delta\sigma = \sigma_j - \sigma_{off}$ 为气体的差分吸收截面,其中 σ_j 和 σ_{off} 分别为 DIAL 出射的 j 波长和 off-line 波长对应的气体吸收截面。考虑到气体数密度可以用干空气体积混合比 v_{mr} 和干空气数密度 N_{dryair} 表示为 $N(z) = v_{mr}(z) \cdot N_{dryair}(z)$,并且在流体静力平衡和理想气体的条件下,可用对压强的微分 dp 代替对海拔的微分 dz ,即 $dp = g \cdot (m_{dryair} + m_{H_2O} \cdot v_{mr, H_2O}) \cdot N_{dryair} \cdot g \cdot dz$,其中 g 为重力加速度, m_{dryair} 和 m_{H_2O} 分别为干空气和 H₂O 的分子质量, v_{mr, H_2O} 为 H₂O 的干空气体积混合比。式(6)可进一步表示为

$$\tau = \int_{p_1}^{p_2} v_{mr}(p) \frac{\Delta\sigma[p, T(p)]}{g[m_{dryair} + m_{H_2O} \cdot v_{mr, H_2O}(p)]} dp = \int_{p_1}^{p_2} v_{mr}(p) \cdot W_F(p) dp \quad (7)$$

式中: p_1 和 p_2 分别为大气压强积分的上下限; $W_F(p)$ 为压强权重函数,描述大气层在压强 p 和温度 T 下对 v_{mr} 的相对贡献。因此,在 p_1 至 p_2 大气层内权重平均的气体干空气体积混合比 X 可表示为

$$X = \frac{\int_{p_1}^{p_2} v_{mr}(p) \cdot W_F(p) dp}{\int_{p_1}^{p_2} W_F(p) dp} = \frac{\tau}{\int_{p_1}^{p_2} W_F(p) dp} \quad (8)$$

2.3 误差计算

在 DIAL 系统中,随机误差主要受探测器暗电流噪声的影响。在暗电流噪声的影响下,由光学滤波器的带宽和接收望远镜的视场等因素引起的探测器背景噪声可忽略不计。较低的探测器暗电流噪声有助于提高 DIAL 回波信号的信噪比(R_{SN}),并进一步减小随机误差。 R_{SN} 可表示为

$$R_{SN} = \sqrt{\frac{\eta_q}{F}} \cdot \frac{N_{sig}}{\sqrt{N_{sig} + N_{back} + N_{det}}} \quad (9)$$

式中: η_q 为探测器的量子效率; F 为描述探测器统计波动的噪声因子; N_{sig} 为激光雷达的回波信号; N_{back} 为背景噪声; N_{det} 为暗电流噪声。假设 DIAL 探测到的后向散射光子数服从泊松分布,在暗电流噪声极限下,可根据式(10)计算气体柱浓度和距离分辨浓度测量的相对误差,进而评估选定的吸收线在暗电流噪声影响下测量特定气体浓度的可行性^[22]。

$$\frac{\delta X}{X} = \frac{K_r}{\tau \sqrt{m_0} R_{SN}} \left\{ \frac{\exp(4\tau) \cdot [1 + \exp(4\tau/K_r)]}{2} + 1 \right\}^{1/2} \quad (10)$$

式中: $K_r = \tau/\Delta\tau$ 表示 0~ Z 高度范围内的柱积分差分光学厚度 τ 与 $Z_1 \sim Z_2$ 高度范围内距离分辨率 $\Delta Z = Z_1 - Z_2$ 的差分光学厚度 $\Delta\tau$ 的比值,该比值为 1 时对应柱浓度相对误差; m_0 为激光发射的脉冲总数。差分光学厚度 τ 和信噪比 R_{SN} 分别根据式(6)和式(9)得到。

浓度测量系统误差与多种因素密切相关,如大气温度、大气压强等气象参数的变化将导致式(7)中权重函数 W_F 和待测气体数密度 N 的计算产生误差。此外,气体光谱线的展宽效应和激光出射频率的漂移也会增加气体浓度的系统误差。假设各影响因素互不相关,气体浓度的系统误差^[27]可表示为

$$\delta X = \sum_k \frac{\partial X}{\partial x_k} \cdot \delta x_k \quad (11)$$

式中: δx_k 表示第 k 个特定输入参数相对于其真实值的变化;总系统误差 δX 为 k 个输入参数的变化导致的系

统误差之和。

3 光谱线型

3.1 混合光谱选择

表 1 给出了基于 MODTRAN 模型的热带、中纬度夏季、中纬度冬季、亚北极夏季、亚北极冬季和 1976 年美国标准大气模型在海平面高度处的初始压强、温度、大气密度和 $H_2^{16}O$ 密度等参数^[28],其中 CO_2 的混合比均设置为 420×10^{-6} , $HD^{16}O$ 的混合比由水汽同位素相对丰度的比值估计。基于上述理论,将表 1 中的大气参数和 HITRAN 数据库的光谱学参数作为输入量,利用上述 6 种大气模型分别计算海平面高度处 CO_2 的 R10~R22 谱线及其干涉气体包括 $H_2^{16}O$ 和 $HD^{16}O$ 的吸收光谱。综合考虑碰撞加宽和多普勒加宽效应,初步用 Voigt 函数计算每种气体的光谱线型,结果如图 1 所示。可以看出, $H_2^{16}O$ 和 $HD^{16}O$ 作为 H_2O 的两种同位素气体,二者的吸收系数在设定的波数范围内除在 CO_2 的 R16 线处具有相近的量级外,其他位置的 $H_2^{16}O$ 的吸收系数比 $HD^{16}O$ 小近两个数量级。因此,在不考虑 $HD^{16}O$ 吸收的情况下,为了最小化 $H_2^{16}O$ 作为干涉气体对 CO_2 的影响,R16 线常用于地基 DIAL 和机载或星载 IPDA 系统的 CO_2 测量。此外,3 种气体的混合光谱为各独立谱线的叠加,在 R10 线处 $H_2^{16}O$ 和 $HD^{16}O$ 的吸收系数较 CO_2 均小约 3 个数量级,其混合光谱在不同的大气模型下差异不明显,且几乎都与 CO_2 的 R10 线重合。然而对于 R12~R22 线,混合光谱在不同的大气模型下均呈现出不同的形状,且随着 $H_2^{16}O$ 和 $HD^{16}O$ 混合比的增大,混合光谱与 CO_2 光谱的差异逐渐明显。特别地,R16 线处 $H_2^{16}O$ 的吸收系数最小,此时的混合光谱可以近似认为是 CO_2 和 $HD^{16}O$ 两种气体的贡献。这一方面说明了在选择合适的波长进行 CO_2 测量时应充分考虑 $HD^{16}O$ 的吸收效应,另一方面印证了 R16 线是在近红外波段同时测量 CO_2 和 $HD^{16}O$ 的最佳选择。考虑到 1976 年美国标准大气模型是其他几种模式的折中,能够大致反映中纬度地区的年平均大气条件,因此以下大部分讨论将围绕该大气模型展开。

表 1 在海平面高度处 MODTRAN 模型的大气参数

Table 1 Atmospheric parameters of MODTRAN model at sea level

Model	Pressure /Mbar	Temperature /K	Density / cm^{-3}	Mixing ratio of $CO_2 / 10^{-6}$	Mixing ratio of $H_2^{16}O / 10^{-6}$	Mixing ratio of $HD^{16}O / 10^{-6}$
1	1013	299.7	2.450×10^{19}	420	25900	8.05
2	1013	294.2	2.496×10^{19}	420	18800	5.86
3	1018	272.2	2.711×10^{19}	420	4320	1.45
4	1010	287.2	2.549×10^{19}	420	11900	3.71
5	1013	257.2	2.855×10^{19}	420	1410	0.44
6	1013	288.2	2.548×10^{19}	420	7750	2.42

Notes: model 1—tropic; model 2—mid-latitude summer; model 3—mid-latitude winter; model 4—sub-arctic summer; model 5—sub-arctic winter; model 6—1976 U.S. standard.

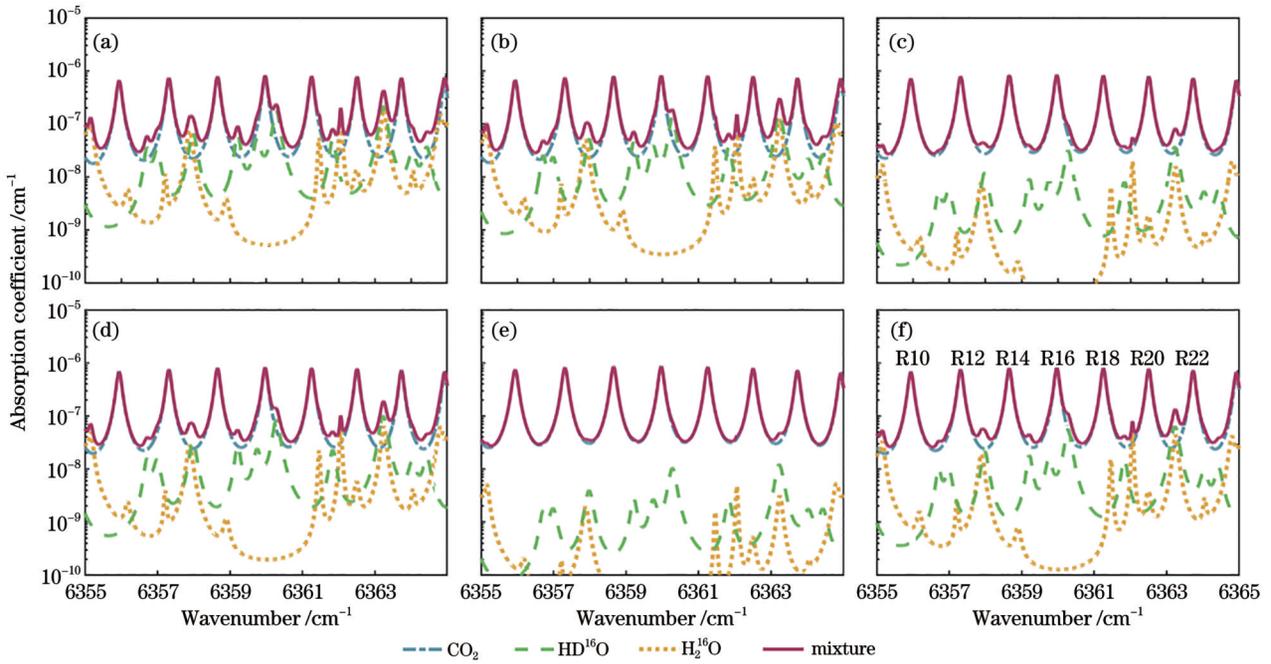


图 1 基于 HITRAN 数据库计算的海平面高度处 CO₂ 和 H₂O 在 MODTRAN 6 种大气模型下的混合吸收光谱。(a) 热带; (b) 中纬度夏季; (c) 中纬度冬季; (d) 亚北极夏季; (e) 亚北极冬季; (f) 1976 年美国标准大气

Fig. 1 Mixture absorption spectra of CO₂ and H₂O at sea level under six atmospheric models in MODTRAN based on HITRAN database. (a) Tropic; (b) mid-latitude summer; (c) mid-latitude winter; (d) sub-arctic summer; (e) sub-arctic winter; (f) 1976 U.S. standard

为了进一步分析 CO₂ 和 HD¹⁶O 在 R16 线的光谱特征, 计算了海平面高度处该吸收线上两种气体的具体光谱学参数和吸收光谱, 分别如表 2 和图 2 所示。在对应的波数范围内, 有两条 HD¹⁶O 吸收线分别位于 CO₂ 吸收线中心的两侧, 其中 HD¹⁶O 相对较强的吸收分布

在 CO₂ 吸收线中心的正波数偏移处。在 HD¹⁶O 吸收的影响下混合吸收光谱呈现出不对称性, 且其两翼处尤其是正波数偏移一侧的吸收系数较 CO₂ 吸收系数明显增大。在同时测量 CO₂ 和 HD¹⁶O 的系统设计中, 只考虑该正波数偏移处的 HD¹⁶O 吸收光谱。

表 2 R16 线处 CO₂ 和 HD¹⁶O 的光谱学参数^[29]
Table 2 Spectral parameters of CO₂ and HD¹⁶O for R16 line^[29]

Formula	Wavenumber ν / cm^{-1}	Line intensity $S / [(\text{molecule} \cdot \text{cm}^{-2})]$	Broadening α		Pressure shift	
			$\gamma_{\text{air}} / (\text{cm}^{-1} \cdot \text{atm}^{-1})$	$\gamma_{\text{self}} / (\text{cm}^{-1} \cdot \text{atm}^{-1})$	$\delta_{\text{air}} / (\text{cm}^{-1} \cdot \text{atm}^{-1})$	$\delta_{\text{self}} / (\text{cm}^{-1} \cdot \text{atm}^{-1})$
CO ₂	6359.9672	1.761×10^{-23}	0.074	0.102	-0.563×10^{-2}	-0.599×10^{-2}
HD ¹⁶ O	6360.2783	8.619×10^{-26}	0.095	0.448	-0.135×10^{-1}	—
HD ¹⁶ O	6359.7477	2.218×10^{-26}	0.097	0.394	-0.786×10^{-2}	—

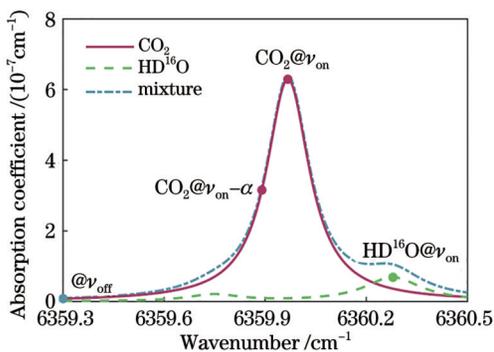


图 2 标准状况 $T=296 \text{ K}$ 和 $p=1013 \text{ hPa}$ 下 R16 线的混合气体吸收光谱

Fig. 2 Mixture gases absorption spectra of R16 line under standard condition of $T=296 \text{ K}$ and $p=1013 \text{ hPa}$

3.2 光谱展宽

1976 年美国标准大气模型描述了不同海拔的大气参数如温度、压强和大气密度等的变化。根据式(1)~(5), 变化的温度和压强通过影响光谱展宽效应来改变其吸收截面线型。为了研究 R16 线处 CO₂ 和 HD¹⁶O 适应的线型函数, 基于 1976 年美国标准大气模型和光谱学参数分别计算了两种气体的多普勒展宽的半峰全宽 (FWHM; $2\alpha_D$) 和洛伦兹展宽的半峰全宽 ($2\alpha_L$)。如图 3 所示, 多普勒和洛伦兹展宽效应均对两种气体的吸收截面线型有显著影响。具体地, 洛伦兹展宽的 $2\alpha_L$ 在较高压强的对流层占主导地位, 且 $2\alpha_L$ 随海拔的变化较大。同时, 多普勒展宽的 $2\alpha_D$ 在整个海拔范围内呈现出细微的变化, 主要对高海拔处的吸收截面有显著

影响。当 $2\alpha_D \leq 10 \cdot 2\alpha_L$ 或 $2\alpha_L \leq 5 \cdot 2\alpha_D$ 时,两种展宽效应的贡献接近相同,此时采用 Voigt 函数计算光谱线型。除此之外,当 $2\alpha_D$ 或 $2\alpha_L$ 超出上述条件时,应分别用高斯函数和洛伦兹函数计算光谱线型。从图 3 可以看出,由于相对高的压强引起分子频繁碰撞,洛伦兹展宽主要在 9.4 km 和 8.3 km 海拔以下对 CO_2 和 HD^{16}O 的影响较大,对应的 $2\alpha_L$ 临界值分别为 0.052 cm^{-1} 和

0.080 cm^{-1} 。随着海拔的升高,碰撞效应逐渐减弱,当海拔分别达到 34.5 km 和 33.8 km 时,多普勒展宽对 CO_2 和 HD^{16}O 的影响逐渐占主导地位,对应的 $2\alpha_D$ 临界值分别为 0.011 cm^{-1} 和 0.016 cm^{-1} 。整体而言,为了提高两种气体浓度反演精度,根据 FWHM 与海拔高度的对应关系,进一步优化吸收系数的线型。在后续的分析中,统一使用 α 表示各海拔所适用线型的 HWHM。

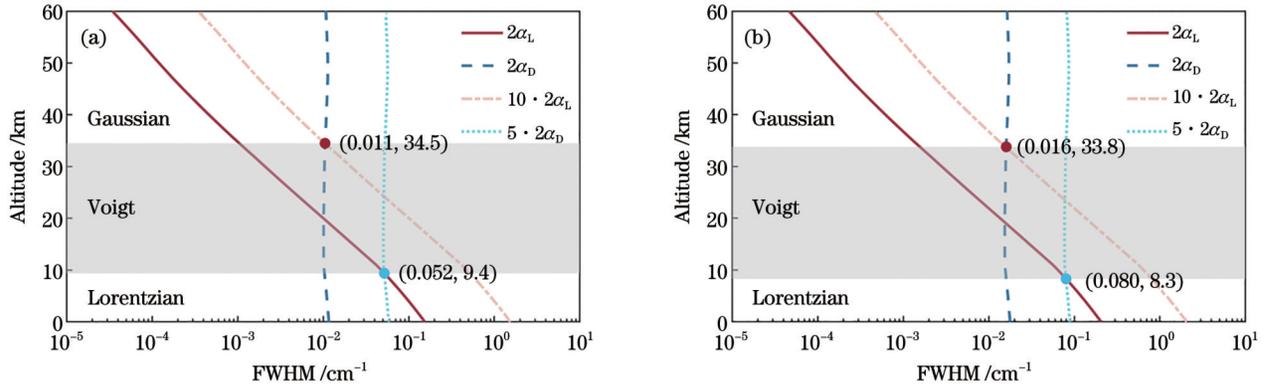


图 3 R16 线光谱碰撞展宽和多普勒展宽的半峰全宽随海拔的变化。(a) CO_2 ; (b) HD^{16}O

Fig. 3 FWHM of spectral collision broadening and Doppler broadening at R16 line as functions of altitude. (a) CO_2 ; (b) HD^{16}O

值得注意的是,除了光谱展宽效应外,大气压强的变化还会导致 CO_2 和 HD^{16}O 吸收线中心位置出现微小频移。基于表 2 中各气体的压致频移参数计算出 CO_2 和 HD^{16}O 的压致频移分别为 $-0.0056 \text{ cm}^{-1}/\text{atm}$ 和 $-0.0078 \text{ cm}^{-1}/\text{atm}$ 。这种压强变化引起的误差与海拔有关,如果不对此进行适当补偿,将会增加气体浓度的反演误差,尤其是在高海拔处。此外,在计算气体吸收线时还应考虑 H_2O 的混合比随高度的变化所导致的 CO_2 反演系统误差。

3.3 权重函数

式(7)的权重函数反映了大气压强为 p 、温度为 T 的大气层对痕量气体体积混合比的贡献,在计算气体垂直廓线时需要考虑垂直加权柱体混合比即权重函数的影响。权重函数与波数有关,在计算中,通常通过数学积分进行归一化。权重函数的值越大,该大气层的灵敏度越高,在进行痕量气体测量时所产生的贡献越大。为了进一步明确权重函数对两种气体浓度反演精度的影响,在图 2 中选取 4 个典型的波数值用于权重函数计算,包括 CO_2 和 HD^{16}O 在各自中心线处的 on-line 波数 ($\text{CO}_2@v_{\text{on}}$ 、 $\text{HD}^{16}\text{O}@v_{\text{on}}$)、相对于 CO_2 中心线的 α 偏移处 ($\text{CO}_2@v_{\text{on}}-\alpha$),以及几乎不被两种气体吸收的 off-line 波数 ($@v_{\text{off}}$)。图 4 为对应的计算结果,其中 CO_2 和 HD^{16}O 在两个 on-line 波数上的权重函数表现出相近的变化趋势,即在对流层顶部和平流层最为敏感,而 off-line 波数和 α 偏移处的权重则呈现相反的趋势,即在低对流层具有相对高的灵敏度。此外, α 偏移处的权重在压强大于 800 hPa 时表现出较均匀的灵敏度。在靠近地表的 1 km 高度内,4 个波数处由所测气

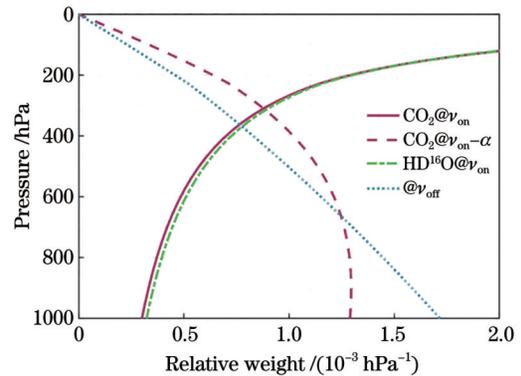


图 4 不同频率位置对应的 CO_2 和 HD^{16}O 相对权重随压强的变化

Fig. 4 Relative weight of CO_2 and HD^{16}O as a function of pressure at different frequency positions

体引起的吸收占总光学吸收的比例依次约为 3.7% ($\text{CO}_2@v_{\text{on}}$)、3.9% ($\text{HD}^{16}\text{O}@v_{\text{on}}$)、15% ($\text{CO}_2@v_{\text{on}}-\alpha$) 和 19% ($@v_{\text{off}}$)。

3.4 光学厚度

在综合考虑光谱展宽效应、压致频移、 H_2O 权重函数变化的影响后,根据 1976 年美国标准大气模型和式(6),通过逐线积分法分别计算了基于 R16 线在垂直路径上 CO_2 和 HD^{16}O 的混合气体和单独 CO_2 的大气光学厚度,结果分别如图 5(a)、(b) 所示。可以看出,二者的光学厚度均随着海拔的增加而增大,光学厚度的线宽则均随着海拔的增加逐渐减小。在以往基于 R16 线的研究中,通常忽略了 HD^{16}O 的吸收,仅利用图 5(b) 所示的单独 CO_2 光学厚度来测量 CO_2 浓度。然而,通

过比较图 5(a) 的混合气体光学厚度和图 5(b) 的 CO₂ 光学厚度, 可以发现在任意海拔上, 由 HD¹⁶O 吸收导致的两个光学厚度的差异始终存在, 尤其在 CO₂ 吸收线中心的正波数偏移处的差异更明显。因此, 在 R16

线基于图 5(a) 所示的混合气体光学厚度开展气体浓度测量, 不仅有助于提高 CO₂ 浓度的反演精度, 还进一步展示了多波长 DIAL 在 R16 线同时测量 CO₂ 和 HD¹⁶O 垂直廓线的潜力。

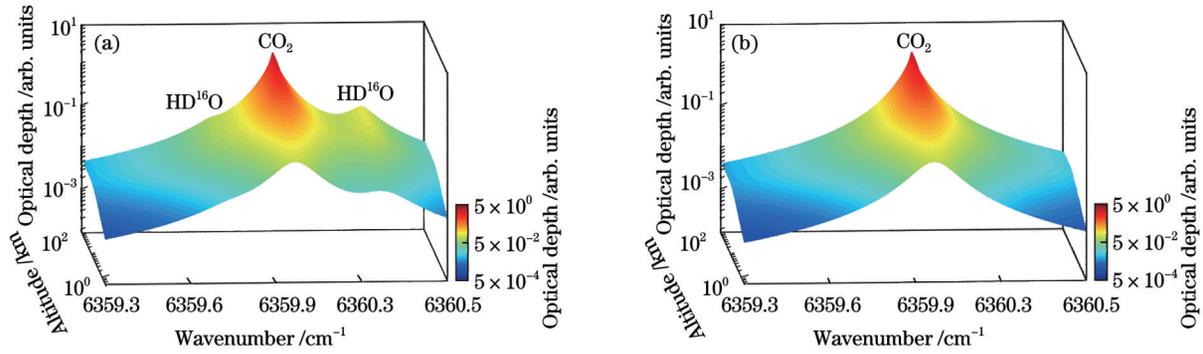


图 5 R16 线单程光学厚度光谱随海拔的变化。(a) CO₂ 和 HD¹⁶O 混合气体; (b) CO₂

Fig. 5 One-way optical depth spectra of R16 as functions of altitude. (a) Mixture gases of CO₂ and HD¹⁶O; (b) CO₂

4 结 果

4.1 可行性分析

根据式(10), 当探测距离较近时, 气体吸收光学厚度太小, 使得 on-line 和 off-line 波长之间的差异很小, 将会导致较大的浓度相对误差; 当探测距离太远时, 气体吸收光学厚度太大, 对应的 on-line 波长的信号衰减较多, 也会导致较大的浓度相对误差。图 6 所示为设定 DIAL 原点处信噪比为 80 dB、距离分辨率为 200 m、脉冲累积总数为 6×10^5 时, 基于 1976 年美国标准大气模型反演的 CO₂ 和 HD¹⁶O 的柱浓度和距离分辨浓度的相对误差随海拔的变化。可以看出, 由于激光雷达的信噪比随着探测距离的增加而快速降低, 所有的误差均随着海拔的升高不断增大。同时, HD¹⁶O 受到较弱吸收线强度的限制, 其距离分辨浓度误差在 60 km 的海

拔范围内均大于 CO₂。此外, 当海拔低于 15 km 时, CO₂ 的柱浓度误差小于 HD¹⁶O, 当海拔继续升高时, CO₂ 的柱积分光学厚度逐渐大于其适合反演浓度的最优值, 因此对应的柱浓度误差迅速增大并超过了 HD¹⁶O 的柱浓度误差。两种气体的柱浓度误差总是小于各自的距离分辨浓度误差。总的来说, 在中纬度地区 10~12 km 的对流层高度内以及在原点处信噪比为 80 dB 的条件下, 由海拔变化引起的 CO₂ 的柱浓度误差和距离分辨浓度误差分别为 0.1% 和 1.1%, 同时 HD¹⁶O 的柱浓度误差和距离分辨浓度误差分别为 0.18% 和 6.3%。

为了进一步明确 CO₂ 和 HD¹⁶O 柱浓度和距离分辨浓度反演的系统误差, 以下基于式(11), 分别将大气参数、激光频移和两种气体在不同大气模型中的重叠效应作为输入参数来开展敏感性研究。在研究每种参数的过程中使其独立变化, 并保持其他所有参数不变; 在研究整条廓线时, 各海拔处的输入参数均设置一个固定偏差。考虑到正负误差的可能性, 以下分析中对应的误差坐标从负值变化到正值, 气体浓度相对于输入参数的敏感性与误差的绝对值正相关。此外, 将中性点定义为在第 k 个特定输入参数相对于其真实值变化的影响下, 式(11) 计算结果为 0 时所对应的频率位置点。将敏感度定义为由第 k 个特定输入参数相对于其真实值变化而引起的浓度误差的响应, 误差绝对值越大, 敏感性越高。

4.2 温度影响

事实上, CO₂ 和 HD¹⁶O 的温度敏感性在很大程度上依赖于各自的低态能量。由于两种气体在 R16 线的低态能量较低, 其值分别为 106.1297 cm^{-1} 和 100.3909 cm^{-1} , 通过选择 R16 线进行 CO₂ 和 HD¹⁶O 探测, 以尽可能减小二者的温度敏感性。然而, 温度的变化仍会导致一定的反演误差。实际上, 温度变化的正

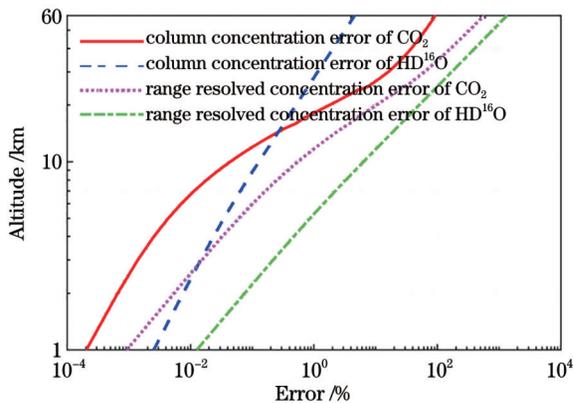


图 6 1976 年美国标准大气模型下 CO₂ 和 HD¹⁶O 的柱浓度和距离分辨浓度的反演误差随海拔的变化

Fig. 6 Inversion errors of column concentration and range resolved concentration of CO₂ and HD¹⁶O as functions of altitude under the 1976 U.S. standard atmospheric model

负偏移只会改变反演系统误差的符号,而不会影响其绝对值。图 7 展示了温度变化量为 +1 K,并将基于 1976 美国标准大气模型的温度廓线代入式(11)得到的 CO_2 和 HD^{16}O 柱浓度误差和距离分辨浓度误差随海拔的变化。在海平面高度上, CO_2 柱浓度和距离分辨浓度的误差均对应两个温度敏感度为 0 的中性点,在中性点频率附近误差的符号均发生变化。随着海拔的增加, CO_2 柱浓度误差中性点所对应的频率位置逐渐向线中心靠近:当海拔为 0 km 时,其中性点距离线中心的频率偏移为 ± 1.59 GHz;当海拔升高至 60 km 时,中性点对应的频率偏移为 ± 0.69 GHz。此外,当海拔高度低于 24 km 时, CO_2 柱浓度误差在中心线达到极大值,此后随着海拔继续升高,极大值位置沿着中心线向两端移动并在中心线处形成极小值。当海拔达到 20 km 时, CO_2 距离分辨浓度误差在中心线附近的敏感度接近 0;当海拔继续升高时,中心线的敏感度开始反向增大并在其左右两侧各形成两个极大值点,此时对应 4 个敏感度为 0 的中性点。在海拔超过 40 km 后,中性点对应的频率几乎保持不变,相对于

中心线的频率偏移量约为 ± 0.6 GHz 和 ± 0.18 GHz。 CO_2 中心线处的柱浓度误差和距离分辨浓度误差的最大值分别为 0.18% 和 0.21%,对应的海拔分别为 12.6 km 和 10.6 km。

HD^{16}O 柱浓度误差和距离分辨浓度误差相较于 CO_2 的误差表现出一定的不对称性,且整体的温度敏感度小于 CO_2 。在所研究的 0~60 km 的海拔内, HD^{16}O 柱浓度误差的绝对值均大于 0,随着海拔升高,对应的柱浓度敏感度增大。当海拔达到 23.4 km 时, HD^{16}O 柱浓度误差在中心线处达到 0.09%,并几乎不再随着海拔的改变而变化。由于其柱浓度误差分布具有非对称性, HD^{16}O 中心约 +0.2 GHz 偏移处的柱浓度敏感度最小。在海平面高度上 HD^{16}O 线中心处的距离分辨浓度误差接近中性点,且在不同的海拔下,其误差绝对值均大于 0。当海拔高度达到 40 km 时,相对于线中心频率偏移 ± 0.36 GHz 位置处的敏感度接近中性点,此后,随着海拔继续升高,对应的温度敏感度反向增大。 HD^{16}O 中心线处的距离分辨浓度误差在 13.8 km 处达到最大值 0.38%。

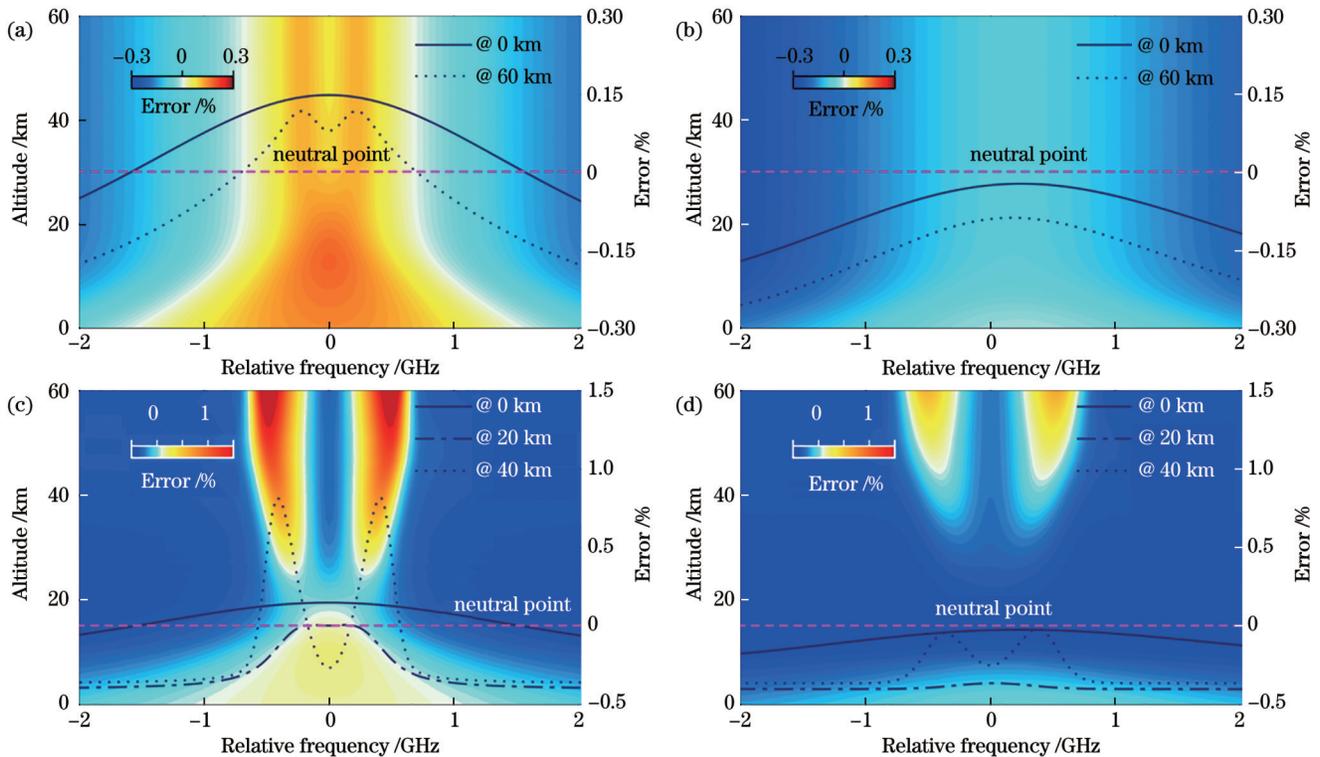


图 7 温度变化量为 +1 K 时浓度误差随相对频率的变化(不同颜色表示不同相对频率和海拔下的误差。藏蓝色线条表示几个典型海拔处的误差随相对频率变化,对应的误差值显示于右轴。红色虚线表示误差值为 0 的中性点)。(a) CO_2 柱浓度误差; (b) HD^{16}O 柱浓度误差; (c) CO_2 距离分辨浓度误差; (d) HD^{16}O 距离分辨浓度误差

Fig. 7 Concentration error as a function of frequency offset for +1 K temperature variation (Different colors represent errors at different relative frequencies and altitudes. The navy blue lines indicate the variation in errors with relative frequency at several typical altitudes, with the corresponding error values displayed on the right axis. The red dashed line represents the neutral point where the error value is zero). (a) CO_2 column concentration error; (b) HD^{16}O column concentration error; (c) CO_2 range resolved concentration error; (d) HD^{16}O range resolved concentration error

4.3 压强影响

大气压强主要通过权重函数、气体分子的光谱

展宽以及中心线频移等的作用,从而影响气体浓度反演误差。与温度敏感性不同,压强变化的正负偏移会

影响 CO_2 柱浓度的敏感性。图 8(a)、(c) 展示了压强变化量为 -0.5 hPa 时 CO_2 柱浓度误差和距离分辨浓度误差随海拔的变化。从图 8(a) 可以看出, CO_2 柱浓度误差在海平面高度上具有两个敏感度为 0 的中性点, 并在中心线处的敏感度最高。随着海拔的升高, CO_2 中心线处的柱浓度误差不断增加, 同时两个中性点对应的频率逐渐向其中心靠近, 当海拔达到 40 km 时, 柱浓度敏感度的变化不再明显。值得注意的是, 当海拔达到 53 km 时, 中心线处的柱浓度敏感度开始迅速减小且在 59 km 处达到 0, 并呈 W 形分布。此后, 随着海拔继续升高, 中心线对应的 CO_2 柱浓度误差在改变符

号的同时, 其绝对值逐渐增大, 在整条吸收线上不再存在柱浓度敏感度为 0 的中性点。由于 1976 年美国标准大气模型的压强廓线在 20 km 海拔内变化较大, 因此主要考虑 CO_2 距离分辨浓度误差在 20 km 内的变化。如图 8(c) 所示, CO_2 距离分辨浓度敏感度在海平面高度处最低, 并在其线中心两侧分别有两个中性点。随着海拔的升高, 中性点对应的频率区间内的敏感性持续增大, 同时中性点两翼处的敏感度也反向增大。在所研究的海拔范围内, CO_2 中心线处的柱浓度误差和距离分辨浓度误差最大值分别为 0.33% 和 0.54% , 对应的海拔分别为 53 km 和 20 km 。

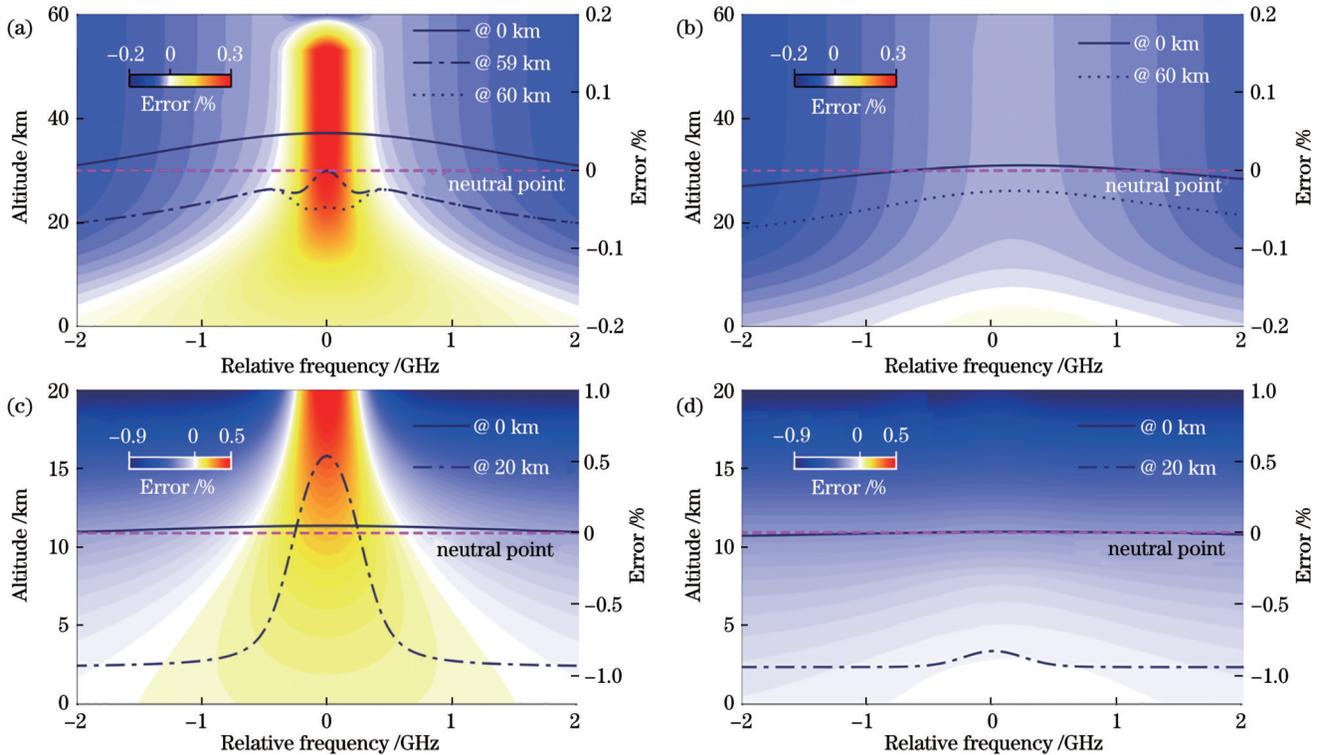


图 8 压强变化量为 -0.5 hPa 时浓度误差随相对频率的变化(不同颜色表示不同相对频率和海拔下的误差。藏蓝色线条表示几个典型海拔处的误差随相对频率变化, 对应的误差值显示于右轴。红色虚线表示误差值为 0 的中性点)。(a) CO_2 柱浓度误差; (b) HD^{16}O 柱浓度误差; (c) CO_2 距离分辨浓度误差; (d) HD^{16}O 距离分辨浓度误差

Fig. 8 Concentration error as a function of relative frequency for -0.5 hPa pressure variation (Different colors represent errors at different relative frequencies and altitudes. The navy blue lines indicate the variation in errors with relative frequency at several typical altitudes, with the corresponding error values displayed on the right axis. The red dashed line represents the neutral point where the error value is zero). (a) CO_2 column concentration error; (b) HD^{16}O column concentration error; (c) CO_2 range resolved concentration error; (d) HD^{16}O range resolved concentration error

HD^{16}O 的柱浓度误差和距离分辨浓度误差随海拔的变化如图 8(b)、(d) 所示, 二者在海平面上均具有较弱的压强敏感性。具体地, 图 8(b) 所示的 HD^{16}O 中心线处的柱浓度误差先随着海拔的升高逐渐减小, 在 5.4 km 达到中性点后, 再随着海拔的升高反向增大, 并在 60 km 处达到 0.03% 。图 8(d) 所示的 HD^{16}O 的距离分辨浓度误差则在 20 km 的海拔内一直随着海拔的升高而增大, 最大值为 0.83% , 且其误差绝对值在整条吸收线上均大于 0。

图 9 展示了压强变化量为 $+0.5 \text{ hPa}$ 时对应的 CO_2

柱浓度误差。可以看出, 当海拔低于 53 km 时, CO_2 柱浓度的误差敏感度与压强变化量为 -0.5 hPa 时的敏感度具有相似的变化趋势, 且前者的误差绝对值略小于后者, 而在海拔达到 44 km 后敏感度的变化不再明显。但不同的是, 在超过该海拔的中心线处柱浓度误差变化仍不明显, 并在 $44 \sim 60 \text{ km}$ 的海拔范围内达到最大值 0.33% 。

4.4 激光绝对频率漂移影响

激光频率的漂移通过影响气体分子的吸收截面, 进而导致浓度反演产生误差; 激光绝对频率漂移的正

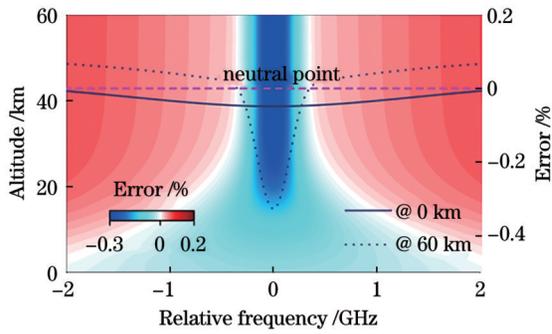


图 9 压强变化量为 +0.5 hPa 时 CO₂ 柱浓度误差随相对频率的变化(不同颜色表示不同相对频率和海拔下的误差。红色虚线表示敏感度为 0 的中性点,藏蓝色实线和虚线分别表示海拔为 0 km 和 60 km 时 CO₂ 柱浓度误差,对应的误差值显示于右轴)

Fig. 9 CO₂ column concentration error as a function of relative frequency for +0.5 hPa pressure variation (Different colors represent errors at different relative frequencies and altitudes. The red dashed line represents the neutral point with zero sensitivity. The solid and dashed lines in navy blue represent column concentration errors of CO₂ at altitudes of 0 km and 60 km, respectively, and the corresponding error values are displayed on the right axis)

负偏移只会改变反演误差的符号,而不会影响其绝对值。图 10(a)、(c)所示为激光频率漂移 +1 MHz 时计算得到的 CO₂ 柱浓度误差和距离分辨浓度误差随海拔的变化。可以看出,两种反演的 CO₂ 浓度误差分布相对于中心线基本对称,二者的误差值在其中心线处均为 0,在 CO₂ 中心线两侧敏感度呈现出相反的变化趋势且其误差绝对值保持相等。与此同时,CO₂ 柱浓度误差和距离分辨浓度误差均随着海拔的升高而增大,并在中心线两侧分别对应两个极大值,且极大值对应的频率位置随着海拔的升高逐渐向中心线靠近。在 60 km 处柱浓度最高敏感位置为 ±0.21 GHz,对应的柱浓度误差绝对值为 0.19%,而 20 km 和 40 km 处距离分辨浓度最高敏感位置分别为 ±0.33 GHz 和 ±0.39 GHz,对应的距离分辨浓度误差绝对值分别为 0.53% 和 1.58%。

图 10(b)、(d)所示为激光频率漂移 +1 MHz 时计算得到的 HD¹⁶O 柱浓度误差和距离分辨浓度误差随海拔的变化。HD¹⁶O 的频率敏感度分布曲线与 CO₂ 相比具有一定的不对称性,即 HD¹⁶O 中心线右侧的敏感度略大于左侧。HD¹⁶O 的柱浓度误差随频率的分布在 60 km 的海拔范围内几乎保持一致,最大误差值

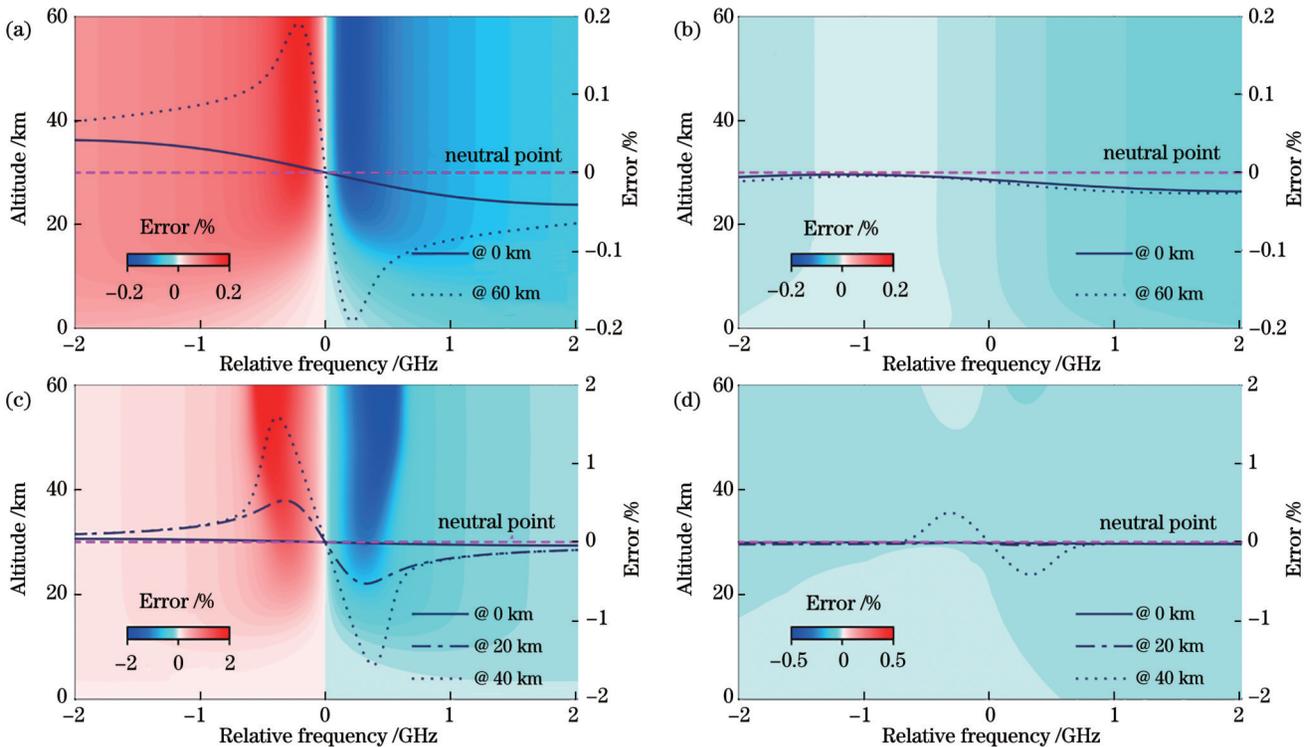


图 10 频率漂移为 +1 MHz 时浓度误差随相对频率的变化(不同颜色分布表示不同相对频率和海拔下的误差。藏蓝色线条表示几个典型海拔处的误差随相对频率变化,对应的误差值显示于右轴。红色虚线表示误差值为 0 的中性点)。(a) CO₂ 柱浓度误差;(b) HD¹⁶O 柱浓度误差;(c) CO₂ 距离分辨浓度误差;(d) HD¹⁶O 距离分辨浓度误差

Fig. 10 Concentration error as a function of relative frequency for +1 MHz frequency drift (Different colors represent errors at different relative frequencies and altitudes. The navy blue lines indicate the variation in errors with relative frequency at several typical altitudes, with the corresponding error values displayed on the right axis. The red dashed line represents the neutral point where the error value is zero). (a) CO₂ column concentration error; (b) HD¹⁶O column concentration error; (c) CO₂ range resolved concentration error; (d) HD¹⁶O range resolved concentration error

约为 0.02%。同时, HD¹⁶O 的距离分辨浓度敏感度在 20 km 海拔范围内变化不明显, 此后随着海拔的升高敏感度迅速增大, 在 40 km 海拔下其最高敏感度位置为 ±0.33 GHz, 对应的误差值分别为 0.37% 和 0.42%。

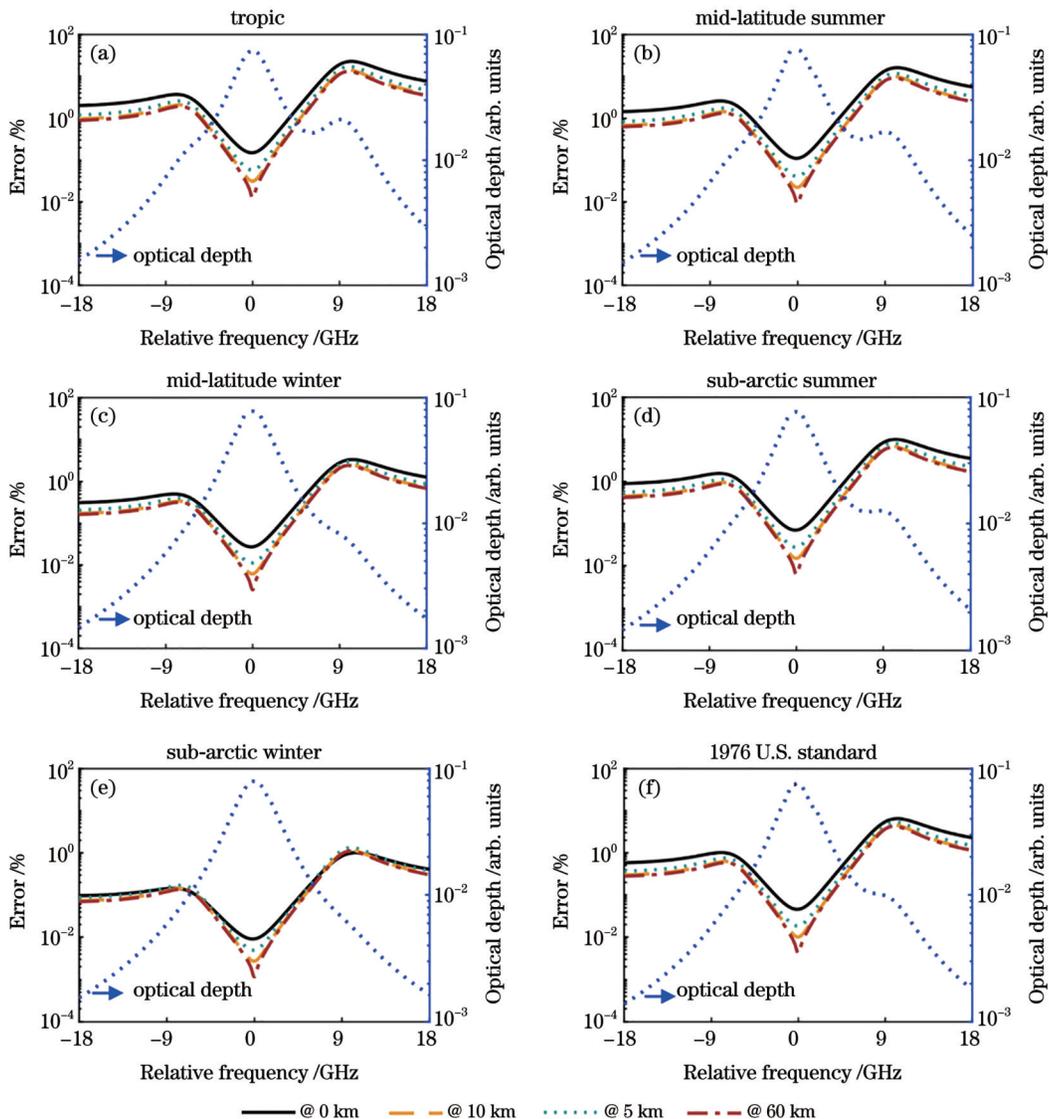
4.5 光谱重叠干扰效应影响

根据差分吸收激光雷达原理, 只有当除待测气体以外的其他气体的吸收对于所选波长可忽略不计时, 测量的光学厚度即为待测气体的光学厚度。然而, 通过以上分析, 所选择的 R16 线同时包含 CO₂ 和 HD¹⁶O 的吸收, 因此需要充分考虑两种气体间的重叠效应。考虑到 HD¹⁶O 随 H₂O 在自然界中具有强变化性, CO₂ 相对稳定, 以下重点分析 HD¹⁶O 对 CO₂ 反演的影响。图 11 所示为令 H₂O 的混合比变化 5% 时不同大气模型对应的不同海拔处 CO₂ 柱浓度和距离分辨浓度误差。可以看出, 在整个吸收线的频率范围内两种误差均大于 0, 在靠近 CO₂ 中心线处受 HD¹⁶O 的影响较小, 其中在低海拔处误差最小值对应的位置相对于中心线存在负频率偏移, 随着海拔升高, 该偏移量逐渐减小,

而当海拔达到 60 km 时, 误差最小值对应的频率位置几乎与中心线重合。两翼的误差具有非对称性, 相对于中心线负频率偏移一侧的误差整体小于正频率偏移的一侧, 并在两个 HD¹⁶O 吸收峰的位置处误差分别具有两个极大值。

由于水汽主要分布在对流层且变化迅速, 图 11(a)~(f) 所示的 CO₂ 柱浓度对 HD¹⁶O 的敏感度随着海拔的升高逐渐降低。特别地, 除亚北极冬季模型外, 其他大气模型在海拔低于 10 km 时敏感度变化幅度较大。同时, 热带模型对应的 CO₂ 柱浓度对 HD¹⁶O 的敏感度最高, 海平面高度上 CO₂ 的 on-line 和 off-line 频率处对应的误差值分别为 0.15% 和 2.00%。亚北极冬季模型对应的敏感度最低, 海平面高度上 CO₂ 的 on-line 和 off-line 频率处对应的误差值分别为 0.01% 和 0.10%。1976 年美国标准大气模型在海平面高度上两个频率位置处对应的误差值分别为 0.05% 和 0.58%。

如图 11(g)~(l) 所示, CO₂ 距离分辨浓度对 HD¹⁶O 的敏感度在两个 HD¹⁶O 吸收峰位置的误差较 CO₂ 线中心处高几个数量级, 且海拔越高, 该差异越大。此外,



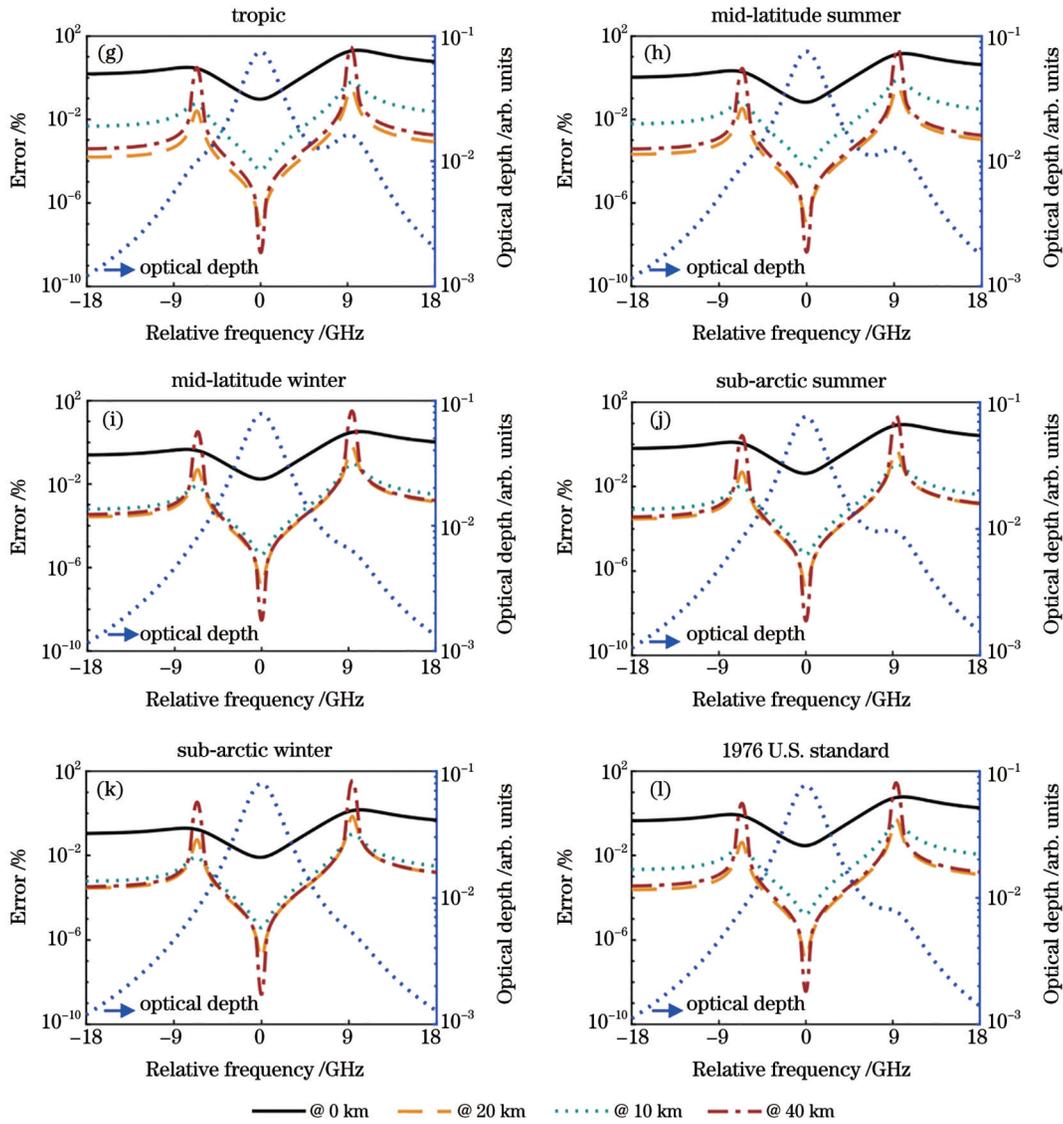


图 11 热带、中纬度夏季、中纬度冬季、亚北极夏季、亚北极冬季、1976 美国标准大气模型在水汽的混合比变化 5% 时浓度误差随相对频率的变化。(a)~(f) CO₂ 柱浓度误差；(g)~(l) CO₂ 距离分辨浓度误差

Fig. 11 Concentration error as a function of relative frequency for 5% H₂O mixing ratio variation under atmospheric models of tropic, mid-latitude summer, mid-latitude winter, sub-arctic summer, sub-arctic winter, and 1976 U.S. standard. (a)–(f) CO₂ column concentration error; (g)–(l) CO₂ range resolved concentration error

整体的距离分辨浓度分布随海拔的变化明显,尤其是在 10 km 的海拔范围内敏感度随着海拔的升高迅速降低。HD¹⁶O 吸收峰位置的距离分辨浓度在热带和中纬度夏季大气模型下分别于 15 km 和 14 km 处达到最低敏感度;对于中纬度冬季、亚北极夏季、亚北极冬季和 1976 美国标准大气模型,其最低敏感度对应的海拔约为 11 km。在此海拔以上 HD¹⁶O 吸收峰位置的距离分辨浓度敏感度随着海拔的升高而增大,而 CO₂ 中心线处的敏感度则随着海拔的升高而降低。总的来看,在海拔高度超过 5 km 后,所有大气模型对应的 CO₂ 在其线中心处的距离分辨浓度误差均小于 0.001%,此时可以忽略由 H₂O 混合比变化 5% 引起的浓度反演误差。

5 结 论

为满足温室气体精确监测需求,对 DIAL 同步遥感大气 CO₂ 和 HD¹⁶O 开展了理论分析。基于 MODTRAN 得到不同大气模型下 CO₂、H₂¹⁶O 和 HD¹⁶O 独立及混合时的光学厚度光谱,通过综合分析各气体的相对吸收强度和光谱学参数确定了适用于 CO₂ 和 HD¹⁶O 探测的吸收线。以 1976 美国标准大气模型的温压廓线为参考,计算了由碰撞效应和多普勒效应导致的 CO₂ 和 HD¹⁶O 光谱展宽,二者在 9.4~34.5 km 和 8.3~33.8 km 海拔范围内满足 Voigt 线型,并分别在不同海拔下对其吸收线型进行优化。

针对 CO₂ 和 HD¹⁶O 浓度反演中的潜在误差来源,本研究分析了基于给定的信噪比和距离分辨率同时反

演两种气体的可行性,即在中纬度地区的激光雷达原点处信噪比为 80 dB、距离分辨率为 200 m 的条件下,对流层顶的 CO₂和 HD¹⁶O 的柱浓度对海拔的敏感度分别为 0.1% 和 0.18%,距离分辨浓度的敏感度分别为 1.1% 和 6.3%。此外,分析了在大气参数、出射激光频率稳定性、两种气体的重叠效应等因素影响下,CO₂和 HD¹⁶O 距离分辨浓度和柱浓度的系统误差,并验证了在 CO₂的 R16 线处 HD¹⁶O 对 CO₂反演具有不可忽略的影响。综合考虑以上因素引起的误差,在中纬度地区的对流层内可实现 CO₂和 HD¹⁶O 柱浓度优于 1% 和 2%,距离分辨浓度优于 2% 和 8% 的反演精度。该敏感性分析有助于进一步提高 CO₂和 HD¹⁶O 两种气体的浓度廓线的反演精度,对于提升地基或机载差分吸收激光雷达系统探测能力和反演精度具有指导意义,也为“碳中和”背景下温室气体的精确遥感和深度理解气候变化提供了理论参考。

参 考 文 献

- [1] 吴鹏,单昌功,王薇,等. 基于傅里叶变换红外光谱技术观测海边大气水汽及其稳定同位素[J]. 中国激光, 2024, 51(5): 0511005.
Wu P, Shan C G, Wang W, et al. Observation of atmospheric water vapor and its stable isotopes at the seaside based on Fourier transform infrared spectroscopy[J]. Chinese Journal of Lasers, 2024, 51(5): 0511005.
- [2] 岳斌,余赛芬,董晶晶,等. 温室气体通量测量方法及进展[J]. 光学学报, 2023, 43(18): 1899906.
Yue B, Yu S F, Dong J J, et al. Measurement methods and progress of greenhouse gas flux[J]. Acta Optica Sinica, 2023, 43(18): 1899906.
- [3] 刘文清. “双碳”目标下大气环境光学监测技术发展机遇[J]. 光学学报, 2022, 42(6): 0600001.
Liu W Q. Opportunities and challenges for development of atmospheric environmental optics monitoring technique under “double carbon” goal[J]. Acta Optica Sinica, 2022, 42(6): 0600001.
- [4] 赵晓丽,袁瑞强. 大气水汽同位素观测与研究新进展[J]. 测绘科学技术, 2022, 10(2): 13.
Zhao X L, Yuan R Q. Measurement methods and progress of greenhouse gas flux[J]. Geomatics Science and Technology, 2022, 10(2): 13.
- [5] 杨晓钰,王中挺,潘光,等. 卫星遥感温室气体的大气观测技术进展[J]. 大气与环境光学学报, 2022, 17(6): 581-597.
Yang X Y, Wang Z T, Pan G, et al. Advances in atmospheric observation techniques for greenhouse gases by satellite remote sensing[J]. Journal of Atmospheric and Environmental Optics, 2022, 17(6): 581-597.
- [6] Yu S F, Guo K X, Li S H, et al. Three-dimensional detection of CO₂ and wind using a 1.57 μm coherent differential absorption lidar[J]. Optics Express, 2024, 32(12): 21134-21148.
- [7] Bösenberg J. Ground-based differential absorption lidar for water-vapor and temperature profiling: methodology[J]. Applied Optics, 1998, 37(18): 3845-3860.
- [8] Ismail S, Browell E V. Airborne and spaceborne lidar measurements of water vapor profiles: a sensitivity analysis[J]. Applied Optics, 1989, 28(17): 3603-3615.
- [9] Fan C C, Chen C, Liu J Q, et al. Preliminary analysis of global column-averaged CO₂ concentration data from the spaceborne aerosol and carbon dioxide detection lidar onboard AEMS[J]. Optics Express, 2024, 32(12): 21870-21886.
- [10] 黄琪,王晴,汪开涛,等. 基于开放路径式可调谐二极管激光吸收光谱法室内 CO₂在线监测研究[J]. 激光与光电子学进展, 2024, 61(5): 0530004.
Huang Q, Wang Q, Wang K T, et al. Indoor CO₂ online monitoring based on open-path tunable diode laser absorption spectroscopy[J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2024, 61(5): 0530004.
- [11] 陈卫标,刘继桥,竹孝鹏,等. 星载激光雷达遥感技术进展与发展趋势(特邀)[J]. 中国激光, 2024, 51(11): 1101011.
Chen W B, Liu J Q, Zhu X P, et al. Spaceborne lidar remote sensing progress and developments (invited)[J]. Chinese Journal of Lasers, 2024, 51(11): 1101011.
- [12] Han G, Gong W, Lin H, et al. Study on influences of atmospheric factors on vertical CO₂ profile retrieving from ground-based DIAL at 1.6 μm[J]. IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing, 2015, 53(6): 3221-3234.
- [13] Barria J B, Mammez D, Cadiou E, et al. Multispecies high-energy emitter for CO₂, CH₄, and H₂O monitoring in the 2 μm range[J]. Optics Letters, 2014, 39(23): 6719-6722.
- [14] Wagner G A, Plusquellic D F. Ground-based, integrated path differential absorption LIDAR measurement of CO₂, CH₄, and H₂O near 1.6 μm[J]. Applied Optics, 2016, 55(23): 6292-6310.
- [15] Wagner G A, Plusquellic D F. Multi-frequency differential absorption LIDAR system for remote sensing of CO₂ and H₂O near 1.6 μm[J]. Optics Express, 2018, 26(15): 19420-19434.
- [16] Abshire J B, Ramanathan A K, Riris H, et al. Airborne measurements of CO₂ column concentrations made with a pulsed IPDA lidar using a multiple-wavelength-locked laser and HgCdTe APD detector[J]. Atmospheric Measurement Techniques, 2018, 11(4): 2001-2025.
- [17] Sun X L, Abshire J B, Ramanathan A, et al. Retrieval algorithm for the column CO₂ mixing ratio from pulsed multi-wavelength lidar measurements[J]. Atmospheric Measurement Techniques, 2021, 14(5): 3909-3922.
- [18] Yu S F, Zhang Z, Li M Y, et al. Multi-frequency differential absorption lidar incorporating a comb-referenced scanning laser for gas spectrum analysis[J]. Optics Express, 2021, 29(9): 12984-12995.
- [19] Yu S F, Zhang Z, Xia H Y, et al. Photon-counting distributed free-space spectroscopy[J]. Light: Science & Applications, 2021, 10(1): 212.
- [20] Hamperl J, Capitaine C, Dherbecourt J B, et al. Differential absorption lidar for water vapor isotopologues in the 1.98 μm spectral region: sensitivity analysis with respect to regional atmospheric variability[J]. Atmospheric Measurement Techniques, 2021, 14(10): 6675-6693.
- [21] Hamperl J, Dherbecourt J B, Raybaut M, et al. Range-resolved detection of boundary layer stable water vapor isotopologues using a ground-based 1.98 μm differential absorption LIDAR[J]. Optics Express, 2022, 30(26): 47199-47215.
- [22] Ambrico P F, Amodeo A, Di Girolamo P, et al. Sensitivity analysis of differential absorption lidar measurements in the mid-infrared region[J]. Applied Optics, 2000, 39(36): 6847-6865.
- [23] Schreier F. The Voigt and complex error function: a comparison of computational methods[J]. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 1992, 48(5/6): 743-762.
- [24] Liou K N. An introduction to atmospheric radiation[M]. 2nd ed. Amsterdam: Academic Press, 2002.
- [25] Han G, Xu H, Gong W, et al. Simulations of a multi-wavelength differential absorption lidar method for CO₂ measurement[J]. Applied Optics, 2017, 56(30): 8532-8540.
- [26] Kiemle C, Quatrevalet M, Ehret G, et al. Sensitivity studies for a space-based methane lidar mission[J]. Atmospheric Measurement Techniques, 2011, 4(10): 2195-2211.
- [27] Ehret G, Kiemle C, Wirth M, et al. Space-borne remote

- sensing of CO₂, CH₄, and N₂O by integrated path differential absorption lidar: a sensitivity analysis[J]. Applied Physics B, 2008, 90(3): 593-608.
- [28] Berk A, Hawes F. Validation of MODTRAN@6 and its line-by-line algorithm[J]. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 2017, 203: 542-556.
- [29] Gordon I E, Rothman L S, Hargreaves R J, et al. The HITRAN2020 molecular spectroscopic database[J]. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 2022, 277: 107949.

Sensitivity Analysis of Simultaneous Remote Sensing of Carbon Dioxide and Water Vapor Isotope Using LiDAR

Yu Saifen^{1,2}, Zhang Zhen^{1,2*}, Xia Haiyun^{1,2}

¹*School of Atmospheric Physics, Nanjing University of Information Science and Technology, Nanjing 210044, Jiangsu, China;*

²*National Center of Carbon Metrology (Fujian), Nanping 353011, Fujian, China*

Abstract

Objective Carbon dioxide (CO₂) and water vapor (H₂O) play crucial roles in global climate change through the carbon-water cycle. Semi-heavy water, as a stable isotope of water vapor, helps deepen our understanding of the water cycle process. A large number of active and passive remote sensing technologies based on absorption spectroscopy have been applied to the detection of atmospheric CO₂ and H₂¹⁶O. However, passive remote sensing, which relies on sunlight, cannot provide continuous day-and-night monitoring, while active remote sensing based on differential absorption LiDAR (DIAL) can effectively compensate for this limitation. Research has shown that H₂¹⁶O is the primary interfering gas in CO₂ detection that causes measurement errors. Since dual-wavelength DIAL can only measure one type of gas, the interference effect of H₂¹⁶O on CO₂ is minimized by selecting an appropriate absorption line, where the absorptions of H₂¹⁶O at the on-line and off-line wavelengths are almost equal. However, HD¹⁶O, a stable isotope of H₂¹⁶O, also affects the detection accuracy of CO₂, though this is rarely addressed. In addition, in terms of vertical height, especially within the troposphere, H₂O and atmospheric parameters can vary significantly. To date, no DIAL system can simultaneously provide vertical profile measurements for CO₂ and HD¹⁶O, and there has been limited theoretical analysis and feasibility verification of this. In the present study, we report the sensitivity analysis of simultaneous remote sensing of atmospheric CO₂ and HD¹⁶O profiles using LiDAR. This analysis is based on the MODTRAN atmospheric model. This sensitivity analysis aids in improving the inversion algorithm for the concentration profiles of CO₂ and HD¹⁶O, which is significant for enhancing the detection capability and inversion accuracy of both ground-based and airborne DIAL systems. It also provides a theoretical framework for accurate remote sensing of greenhouse gases and a deeper understanding of climate change in the context of carbon neutrality.

Methods The sensitivity analysis of simultaneous remote sensing of atmospheric CO₂ and HD¹⁶O profiles using LiDAR, based on the MODTRAN atmospheric model, is conducted. First, the mixed spectral lines of CO₂ and HD¹⁶O under different atmospheric models are calculated using HITRAN spectroscopy parameters, and the feasibility of simultaneous measurement of these two gases by LiDAR is verified by selecting appropriate absorption lines. Next, considering the variation of atmospheric parameters with vertical height, the column and range-resolved concentration inversion errors of CO₂ and HD¹⁶O are evaluated based on the optimization of weight functions and spectral line shapes. Further investigation is conducted on atmospheric factors, the frequency stability of LiDAR laser emissions, the overlapping effects of CO₂ and HD¹⁶O, and the influence of altitude changes on concentration inversion errors.

Results and Discussions In response to potential sources of error in the inversion of column and range-resolved concentrations of CO₂ and HD¹⁶O, we comprehensively consider atmospheric factors, laser frequency stability, the overlap effect of the two gases, and altitude-induced changes in concentration inversion. When the temperature variation is ±1 K, the column concentrations of CO₂ and HD¹⁶O reach their maximum temperature sensitivity of 0.18% and 0.09% at altitudes of 12.6 km and 23.4 km, respectively. The range-resolved concentrations of the two gases show maximum sensitivity of 0.21% and 0.38% near the tropopause. At a pressure variation of ±0.5 hPa, the sensitivity of both column and range-resolved concentrations of CO₂ and HD¹⁶O gradually increases with altitude. The column concentration errors for CO₂ and HD¹⁶O reach 0.33% and 0.03% at the top of the stratosphere, while the range-resolved concentration errors reach

0.54% and 0.83% at 20 km. The frequency sensitivity for CO₂ column and range-resolved concentrations is generally higher than that of HD¹⁶O, and the frequency sensitivity at the center of both gas absorption lines is close to zero at any altitude. When the H₂O mixing ratio variation is 5%, errors in CO₂ column and range-resolved concentrations due to overlapping effects decrease with increasing altitude, reaching 0.15% and 0.01% at sea level in tropical and sub-arctic winter models, respectively. For altitudes greater than 5 km, the range-resolved concentration error of CO₂ at the line centers for all atmospheric models is less than 0.001%, and the error caused by the overlapping effect can be ignored. When the tropic model and the 1976 U.S. standard atmospheric model are used, without considering the absorption of HD¹⁶O, the errors for the range-resolved CO₂ concentrations at sea level are 1.87% and 0.60%, respectively. Even under the sub-arctic winter model, the column concentration error at the center line reaches 0.17%, which confirms the non-negligible role of HD¹⁶O in CO₂ inversion. In addition, with an 80 dB signal-to-noise ratio at the LiDAR origin in mid-latitude regions, the altitude sensitivity of CO₂ and HD¹⁶O column concentrations at the top of the troposphere is 0.10% and 0.18%, respectively, while the sensitivity of range-resolved concentrations is 1.1% and 6.3%, respectively.

Conclusions To meet precise greenhouse gas monitoring requirements, we conduct a theoretical analysis on the simultaneous remote sensing of atmospheric CO₂ and HD¹⁶O using LiDAR. Based on the MODTRAN atmospheric model, independent and mixed optical depth spectra of CO₂, H₂¹⁶O, and HD¹⁶O are derived under different models. The absorption lines suitable for detecting CO₂ and HD¹⁶O are identified by analyzing the relative absorption intensities and spectral parameters of each gas. The spectral broadening of CO₂ and HD¹⁶O caused by collision and Doppler effects is calculated based on temperature and pressure profiles from the 1976 U.S. standard atmospheric model. The two spectra exhibit Voigt line shapes in the altitude ranges of 9.4–34.5 km and 8.3–33.8 km, and their absorption lines are optimized for different altitudes. The systematic errors in range-resolved and column concentrations of CO₂ and HD¹⁶O, considering factors like atmospheric conditions, laser frequency stability, and the overlapping effect of the two gases, are analyzed. Our findings confirm that HD¹⁶O plays a critical role in CO₂ inversion at the R16 line. Considering the errors introduced by these factors, inversion accuracy for CO₂ and HD¹⁶O column concentrations of better than 1% and 2%, respectively, and range-resolved concentrations of 2% and 8%, respectively, can be achieved in the troposphere of mid-latitudes.

Key words atmospheric optics; differential absorption LiDAR; carbon dioxide; water vapor isotope; vertical profile; sensitivity