

中国科学技术大学

博士学位论文



单光子探测自由空间 分布式光谱遥感技术

作者姓名： 余赛芬

学科专业： 空间物理

导师姓名： 夏海云 教授 窦贤康 教授

完成时间： 二〇二一年五月

University of Science and Technology of China
A dissertation for doctor's degree



**Single-photon distributed
free-space spectroscopy**

Author: Saifen Yu
Speciality: Space Physics
Supervisors: Prof. Haiyun Xia, Prof. Xiankang Dou
Finished time: May, 2021

中国科学技术大学学位论文原创性声明

本人声明所呈交的学位论文,是本人在导师指导下进行研究工作所取得的成果。除已特别加以标注和致谢的地方外,论文中不包含任何他人已经发表或撰写过的研究成果。与我一同工作的同志对本研究所做的贡献均已在论文中作了明确的说明。

作者签名: 余赛芳

签字日期: 2021.5.25

中国科学技术大学学位论文授权使用声明

作为申请学位的条件之一,学位论文著作权拥有者授权中国科学技术大学拥有学位论文的部分使用权,即:学校有权按有关规定向国家有关部门或机构送交论文的复印件和电子版,允许论文被查阅和借阅,可以将学位论文编入《中国学位论文全文数据库》等有关数据库进行检索,可以采用影印、缩印或扫描等复制手段保存、汇编学位论文。本人提交的电子文档的内容和纸质论文的内容相一致。

保密的学位论文在解密后也遵守此规定。

☒ 公开 ☐ 保密 (____年)

作者签名: 余赛芳

导师签名: 田海峰

签字日期: 2021.5.25

签字日期: 2021.5.25

摘 要

光谱学可追溯至 17 世纪牛顿利用三棱镜将白光色散为七彩光带。随着量子力学以及激光技术的发展, 精确的光谱分析方法已经实现了对物质的组成进行定性和定量的分析, 且已被广泛应用于化学和生物等领域并发挥了重要的作用。在大气气体遥感方面, 光谱测量的方法主要有基于被动光源的光栅光谱仪、傅里叶红外光谱仪等, 以及基于主动光源的光频梳遥感、多波长差分吸收激光雷达等。但这些用于大气气体测量的技术均只局限于柱积分式的光谱测量, 对于自由空间内的光谱遥感仍存在很大的挑战性, 从而阻碍了对大气中多种气体成分和化学过程的进一步了解。本文从碳达峰和碳中和的重要性出发, 指出温室气体排放监测和研制国产化观测设备的紧迫性。并针对目前用于大气气体探测的被动和主动遥感技术进行了介绍和对比分析, 指出不同方法所适用的领域和对应的局限性。利用超导纳米线单光子探测技术降低了传统激光雷达方法中对激光器能量的高要求, 进一步提高了信噪比; 并通过基于频梳锁定的技术对宽范围的可调谐激光器进行精确的频率控制和锁定, 在此基础上实现了自由空间分布式的光谱遥感; 在碳排放监测、泄漏预警和大气化学研究方面具有很大的潜力。论文的主要工作如下:

1. 阐述了基于单光子自由空间分布式光谱遥感的原理及设计思路。首先对分子的吸收光谱进行了理论分析, 并从激光雷达原理出发, 根据公式推导得出光谱及对应的浓度反演过程。随后介绍了基于频梳锁定的原理, 并通过结合超导纳米线单光子探测器完成了整个系统的初步设计。

2. 根据气体光谱探测的线选择标准, 通过模拟得出了既具有合适的光谱学参数又能发挥探测优势的吸收线(中心波长为 1572.335nm, R16 线)用于 CO₂ 光谱遥感, 并考虑了 HDO 作为干涉气体的影响。同时通过模拟激光雷达信号和不同的降噪方法, 反演得到了光谱和浓度的分布, 并与设置的理想值变化趋势一致, 在理论模拟的基础上分析了系统用于自由空间分布式光谱遥感的可行性。

3. 进行了距离分辨的光谱遥感实验, 对系统参数以及对应的设置进行了详细的介绍, 重点描述了基于频梳锁定的控制回路设计以及基于单光子的探测的接收系统。主要的实验包括:(1)对基于频梳锁定的不同频率采样间隔遥感了大气光谱并进行了对比, 验证了采样模式的自适应性和可控性;(2)在频梳未锁定和锁定两种情况下测得了光谱并进行了对比, 验证了频率锁定的稳定性和必要性;(3)分别在冬季和夏季两个季节遥感 CO₂ 和 HDO 的混合光谱, 验证

了 HDO 作为干涉气体对 CO₂ 有不可忽略的影响, 并通过采用三峰 Voigt 拟合的方式将 HDO 的光谱分离出来, 反演得到了 HDO 的浓度, 进一步弱化了这种影响; (4) 进行了长达 72 小时的连续观测实验, 证明了系统的昼夜观测能力, 同时反演出了 CO₂ 和 HDO 的浓度并与原位仪器对比后具有一致性, 验证了系统用于分布式光谱遥感的能力。

关键词: 二氧化碳, 半重水, 自由空间光谱学, 激光雷达, 光学频率梳, 超导纳米线单光子探测器, 同位素, 碳中和

ABSTRACT

Spectroscopy can be traced back to the 17th century when Newton used a prism to disperse white light into colorful light bands. With the development of quantum mechanics and laser technology, precise spectroscopic analysis methods can be used to analyze the substances composition qualitatively and quantificationally, which are widely applied and play an important role in the fields of chemistry and biology. In terms of atmospheric gas remote sensing, spectral measurement methods mainly include passive methods, such as grating spectrometers, Fourier infrared spectrometers, etc., and active methods, such as optical frequency comb remote sensing, and multi-wavelength differential absorption Lidars. However, these technologies for atmospheric gas measurement are limited to column-integrated spectral measurement. Challenges exist in precise spectral remote sensing in free space, which hinders the further development of various gas components and chemical processes in the atmosphere. In this paper, the importance of carbon neutrality and carbon peaking is introduced. Besides, the urgency of greenhouse gas emission monitoring and the development of localized observation equipment are pointed out. Furthermore, the currently methods used for atmospheric gas measurement including passive and active remote sensing technologies are compared from the applicable fields to limitations. The paper uses superconducting nanowire single-photon detection technology to reduce the high requirements for laser energy in traditional Lidar methods and further improve the signal-to-noise ratio. Besides, by using the comb-referenced locking technology, the emitted frequency of the tunable laser can be controlled accurately within a wide range. Hence, the distributed spectra in free-space can be realized, which holds much potential for carbon emission monitoring, leakage warning, and atmospheric chemistry researches. The main work of the thesis is as follows:

1. The principles and design of the free-space distributed spectral remote sensing based on single-photon are described. First, the theoretical analysis of the molecular absorption spectroscopy is introduced. Second, the spectrum and the corresponding concentration inversion process are derived according to the formula based on Lidar principle. Then, the principle of frequency comb locking is introduced and the whole system is preliminary designed by combining superconducting nanowire single photon detector.

2. According to the line selection criteria for gas spectrum measurement, the absorption lines (R16 line with a central wavelength of 1572.335 nm) that not only have suitable spectroscopy parameters but also have detection advantages for CO₂ spectral remote sensing are analyzed by simulations, with the influence of HDO as an interference gas considered. Besides, by simulating the Lidar signal with different noise reduction methods, the spectrum and concentration distribution are obtained by inversion algorithm. The change trend of the simulated result is consistent with the preset ideal value. On the basis of theoretical simulation, the feasibility of the system for free-space distributed spectral remote sensing is analyzed.

3. The range resolved spectral remote sensing experiment is carried out. The system parameters and corresponding experimental settings are introduced in detail. Besides, the control loop design based on frequency comb locking technology and the receiving system based on single-photon detection are also described. The experiments mainly include:

(1) The atmospheric spectrum is remotely sensed and compared with different frequency sampling intervals based on frequency comb locking technology to verify the adaptability and controllability of the sampling mode;

(2) The spectrum is measured and compared without and with the frequency locking to verify the stability and necessity of locking;

(3) The mixture spectra of CO₂ and HDO are remotely sensed in winter and summer, respectively, which verifies that HDO acting as an interference gas has a non-negligible effect on CO₂. Besides, the spectrum of HDO is separated by the three-peak Voigt fitting method with its concentration obtained, which further weakens the influence on CO₂;

(4) A continuous observation experiment over 72 hours is carried out, which further proves the system ability for day and night observation. Meanwhile, the retrieved concentrations of CO₂ and HDO are compared with the in-situ measurements, which shows good agreement. The experiment verifies the ability of the system to be used for distributed spectroscopy remote sensing.

Key Words: CO₂, HDO, Free-space spectroscopy, Lidar, Optical frequency comb, Superconducting single photon detector, Isotope, Carbon neutrality

目 录

摘要.....	I
ABSTRACT.....	III
第 1 章 绪论	1
1.1 意义和背景	1
1.1.1 辐射收支平衡.....	1
1.1.2 主要温室气体.....	2
1.1.3 精确 CO ₂ 控制对碳中和的意义	5
1.2 气体光谱遥感技术发展.....	6
1.2.1 被动探测.....	8
1.2.2 主动探测.....	14
1.3 选题意义和本文组织结构.....	25
1.3.1 选题意义.....	25
1.3.2 本文组织结构.....	26
第 2 章 自由空间光谱遥感的原理与设计	28
2.1 近红外吸收光谱.....	28
2.1.1 分子的光谱.....	28
2.1.2 光谱的线强度和展宽.....	31
2.2 激光雷达用于光谱分析的原理.....	33
2.2.1 激光与大气作用机制.....	33
2.2.2 激光雷达方程.....	34
2.2.3 浓度反演方法.....	35
2.3 基于频率锁定的光谱扫描技术.....	36
2.3.1 气体腔锁定.....	37
2.3.2 飞秒光梳锁定.....	38
2.3.3 基于光梳参考的频率锁定设计	41
2.4 单光子探测技术.....	42
2.4.1 单光子探测的介绍.....	42
2.4.2 基于单光子探测的信噪比提升	43
第 3 章 自由空间光谱遥感的模拟.....	45
3.1 吸收谱线的选择.....	45
3.1.1 气体干涉的影响.....	45
3.1.2 光学深度的影响.....	47
3.1.3 温度敏感性的影响.....	48

3.1.4	1.5 μm 吸收光谱的优势分析	49
3.2	自由空间光谱遥感的可行性分析	51
3.2.1	激光雷达信号模拟	51
3.2.2	降噪模拟	53
3.2.3	面积法和查表法反演对比	54
3.2.4	非均匀浓度反演模拟	56
3.3	基于浓度反演的讨论	56
3.3.1	拟合模型的选择	56
3.3.2	混合光谱模拟	57
3.4	本章小结	58
第 4 章	距离分辨的光谱遥感实验	60
4.1	发射系统	61
4.1.1	探测光和参考光的时分复用技术	61
4.1.2	实时校准技术	62
4.1.3	光源搭建	62
4.2	频率锁定系统	63
4.2.1	频梳重频和偏频的锁定	63
4.2.2	拍频反馈设计	65
4.2.3	自适应频率扫描与锁定	66
4.2.4	锁定结果	68
4.3	接收系统及数据处理	68
4.3.1	超导探测器	68
4.3.2	数据接收系统	69
4.3.3	数据处理流程	69
4.4	光学深度光谱分析	70
4.4.1	Lorentz 和 Voigt 拟合的影响	71
4.4.2	频率扫描间隔的影响	71
4.4.3	频率锁定与不锁定的影响	72
4.4.4	不同季节的光谱分析	73
4.5	浓度结果分析	74
4.5.1	误差分析	75
4.5.2	地表浓度与湍流强度的耦合关系	76
4.6	讨论	78
4.6.1	其他气体光谱遥感的可行性讨论	78

4.6.2 大气温度遥感的可行性讨论	78
4.7 本章小结	79
第 5 章 总结和展望.....	81
5.1 创新点总结	81
5.2 未来展望	82
参考文献.....	84
致 谢.....	102
在读期间发表的学术论文与取得的其他研究成果	104

第 1 章 绪论

1.1 意义和背景

1.1.1 辐射收支平衡

气候系统是一个复杂的、相互作用的系统，通常用温度、降水、风的均值和变化等描述^[1,2]。地球的辐射收支为气候系统提供能量，主要由三个因素决定^[3]。第一个是入射太阳辐射^[4]，该因素对估计地球辐射收支非常重要。但是，由于太阳活动不受人类的影响，因此几乎不能被用来控制或限制辐射变化。第二个是部分被反射的太阳辐射^[5]，此因素与云层、大气颗粒物负荷和表面反射率有关，如果遇到高反射性的表面（如雪或吸收性植被等），则会有较大的不同。第三个最主要的影响地球辐射收支的因素是温室效应^[6]。太阳以非常短的波长向地球辐射能量，其中一小分被直接反射回太空，而另一大部分则被大气和地表吸收，并以长波（主要是红外部分）的形式重新辐射回太空，在被大气和云层吸收后再次辐射回地表。这种效应使得地球表面和低层大气变暖，也被称为温室效应（如图 1.1 所示）。在大气层的存在下，大部分向太空发射辐射的长波都是由大气气体而不是由地表发出的，这种能吸收长波辐射并能发射辐射的气体则被称为温室气体。

The greenhouse effect

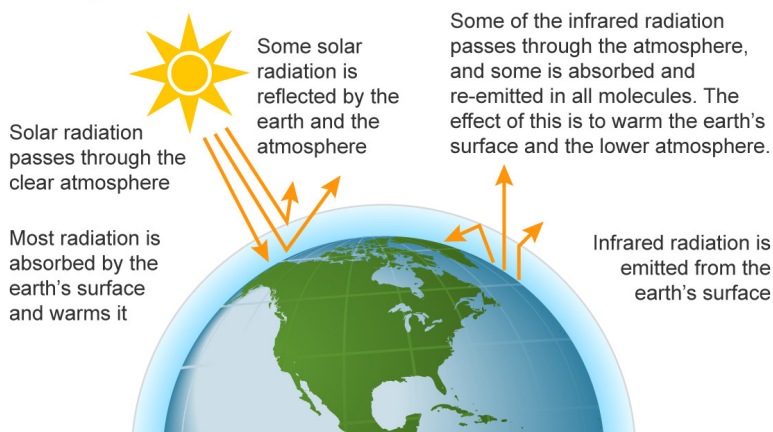


图 1.1 温室效应的理想模型^[7]

温室效应或太阳辐射的变化会导致气候系统内部发生变化，该现象被称为辐射强迫效应^[8-10]，可分为正强迫和负强迫。顾名思义，正强迫会迫使地面温度上升，而负强迫则会迫使地面温度下降。温室气体对气候变化辐射强迫的贡

献，主要取决于其分子辐射特性、大气中浓度增加量及其释放到大气中所滞留的时间等。辐射强迫从成因上又可分为自然辐射强迫和人为辐射强迫^[11-13]。自然辐射强迫是由太阳变化和火山爆发引起的，太阳能在直接加热气候系统的同时也影响着一些温室气体大气丰度。这种由自然温室效应导致的自然辐射强迫使地球表面的温度维持在正常水平，是生命存在的必要条件。但与由人类活动引起的人为辐射强迫差异相比，太阳辐照度变化和火山辐射效应在工业时代前后的差异都非常小。因此，在如今的大气中，人类活动引起的辐射强迫对全球温度的影响比自然过程变化的辐射强迫更重要。自工业时代以来，人类活动对气候的总体影响一直是正强迫的趋势，且超过了已知的自然过程的变化，因而温室效应不断加剧，对应的全球平均气温也在逐渐上升，如图 1.2 所示。

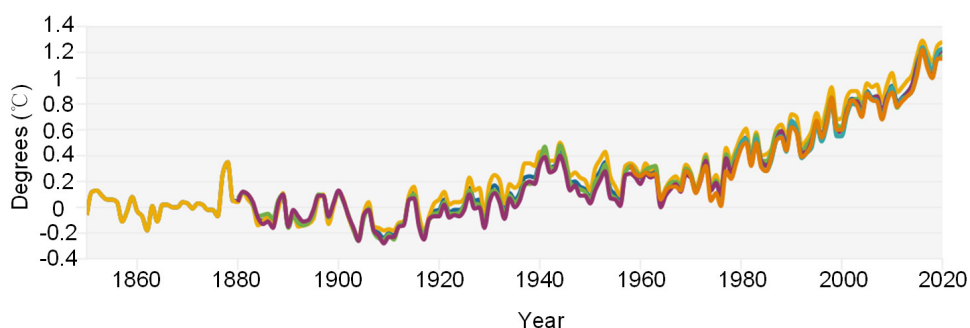


图 1.2 1850-2020 年全球温度变化

全球变暖的危害主要体现在^[14]：随着地表温度的升高，地球不同地区、不同环境的能量（潜热）增加，直接影响地球气候的剧烈变化，引发台风、海啸等自然灾害；使冰川融化速度远大于冰雪积累速度，打破了冰雪循环系统，导致淡水资源紧缺；加快海平面上升速率；北极海冰退缩以及北半球积雪减少使自然界动物生存环境面临巨大挑战，甚至面临濒临灭绝的风险；温度上升破坏了海洋生物链，并向上级食物链蔓延，导致大量生物死亡。热浪加上长期的干旱引发野火（2019 年的澳大利亚山火就是其中一例，数百万公顷的土地被火焚烧，而西伯利亚和其他北极地区也遭受了创纪录强度的野火）；多年干旱对人口的境内和跨境迁徙存在影响、世界人口因高温和污染而更多地面临健康的危害；以及因气温上升和天气极端事件增强会带来经济增长的下降，特别是在发展中国家。

1.1.2 主要温室气体

温室气体是造成全球变暖的重要因素，尽管它们的浓度相对较低，但其浓度的变化在很大程度上影响着地球气候^[6,15]。

1. 二氧化碳(CO_2)

CO_2 是大气中最主要的温室气体^[16-18], 贡献了约 66% 的温室气体辐射强迫。在工业化以前大气的通量保持平衡状态, 对应的 CO_2 浓度为 278ppm。但在 2019 年的全球估算中, CO_2 浓度已上升至 410.05ppm (如图 1.3(a)所示), 该值已达到了工业化前水平的 148%。图 1.3(a)中的曲线反映了 CO_2 在过去几十年间的变化趋势。大气中 CO_2 浓度遵循着可预测的季节性变化规律, 这与植物生长过程中吸收 CO_2 的能量息息相关。在北半球, 一般在五月份 CO_2 浓度会达到峰值, 随后由于植物进入旺盛生长期, 通过光合作用吸收 CO_2 的能量增强, 导致大气 CO_2 浓度在夏季下降, 持续到 9 月后再次回升。由于 CO_2 在大气中长时间滞留, 历年的排放累计在增加, 因而大气中的 CO_2 总量在持续升高。根据英国气象局 (MetOffice) 预测, 大气中本底 CO_2 浓度将在 2021 年底增长到 417ppm。温室气体的大气浓度及其增加取决于源 (人类活动和自然系统排放的气体) 和汇 (通过转换成不同的化合物从大气中排出的气体) 之间的平衡。 CO_2 汇的变化是高度不确定的, 没有确定的全球趋势, 但是它们可能对未来大气中的 CO_2 水平产生重大影响^[19]。

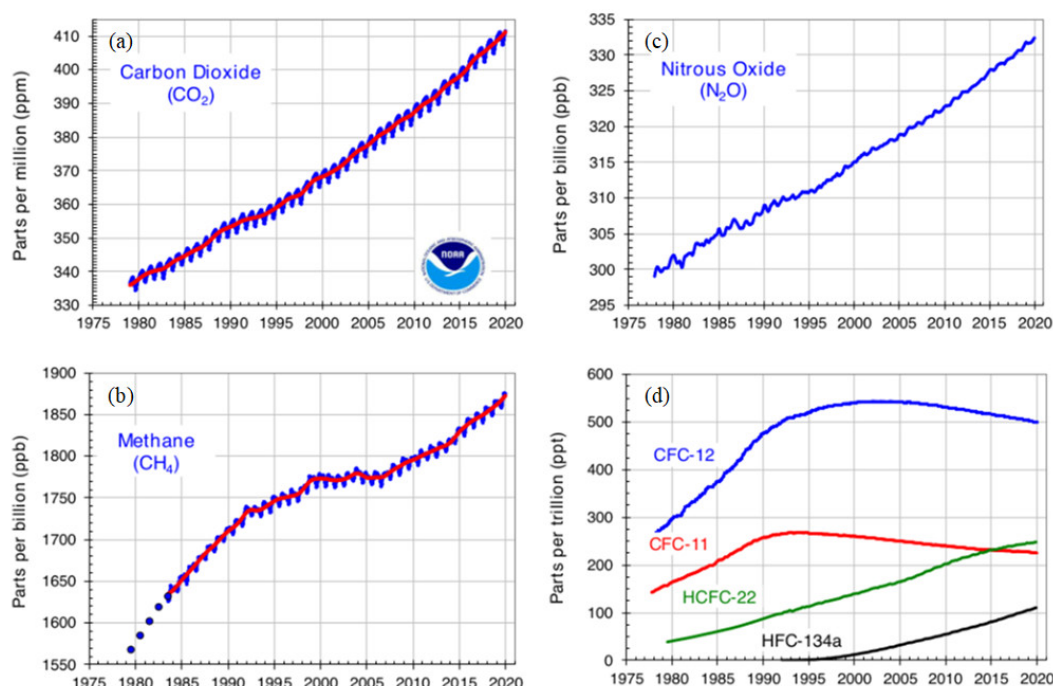


图 1.3 主要温室气体的全球平均丰度, (a) CO_2 ; (b) CH_4 ; (c) N_2O ;
(d)CFC

2. 甲烷(CH_4)

CH_4 是除 CO_2 外另一种主要的温室气体^[20], 贡献约为 17% 的温室气体

辐射强迫，其在单位体积的基础上的长波辐射效率是 CO_2 的 63 倍。在工业化以前 CH_4 的浓度为 722ppb，而 2019 年的估算中已增长至 1877ppb（图 1.3(b)）。自 1850 年以来，大气 CH_4 浓度快速增长主要由于人为来源^[21]：如水稻农业，生物质燃烧，反刍动物和化石燃料开采等。一旦排放， CH_4 在大气中停留大约 8.4 年才会通过对流层的化学氧化来去除。 CH_4 的背景浓度展示季节性和区域性变化，由于缺乏高纬度观测资料 and 低频观测资料，这些变化也存在很大的不确定性。因此，减少不确定性至关重要。要了解人为排放量与大气浓度变化之间的数量差异，就需要对源汇进行合理的估算，并对变化的原因做出良好的归因，无论是排放量还是自然储层之间的分配。

3. 氧化亚氮(N_2O)

N_2O 贡献约为 6% 的温室气体辐射强迫^[22]。在工业化以前 N_2O 的浓度为 270ppb，而 2019 年统计的平均浓度已增加至 332ppb，如图 1.3(c) 所示。 N_2O 是一种相对稳定的温室气体，通过参与大气光化学反应， N_2O 会进一步导致平流层臭氧破坏。土壤是 N_2O 的主要来源，土壤表面 N_2O 的排放是生产和消费过程的结果^[23]。土壤同时也可看做是 N_2O 的汇^[24-26]，其沉降强度取决于将 N_2O 还原成 N_2 的潜力。大气中 N_2O 含量的上升与化肥的广泛使用以及氮沉降导致的 N_2O 释放有关。

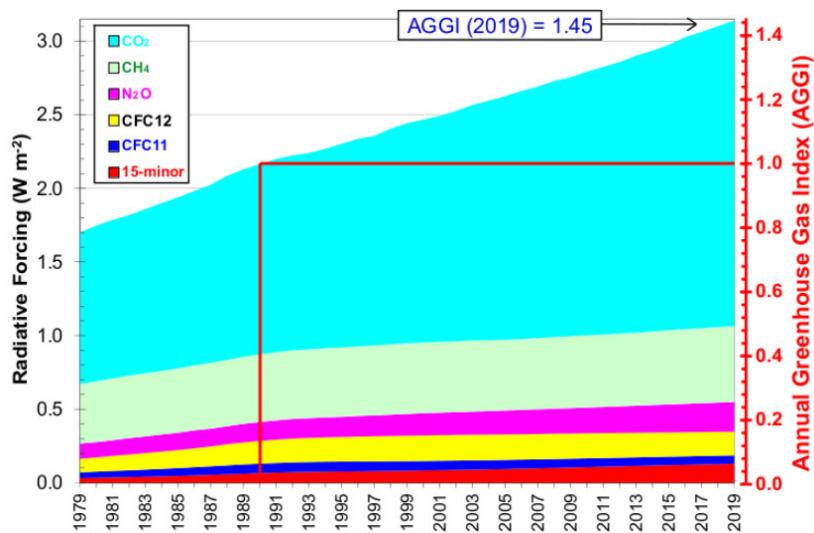


图 1.4 主要温室气体的辐射强迫

图 1.4 表示了几种主要温室气体的辐射强迫，可以看出 CO_2 、 CH_4 及 N_2O 的辐射强迫占比最大。表 1-1 列举了这几种气体的丰度变化、在大气中的寿命、温室效应潜能及增加辐射强迫效应等参数。

表 1-1 大气 CO₂、CH₄ 和 N₂O 的浓度、寿命、温室效应潜能及增加辐射强迫效应

气体	1750	2019	寿命(年)	潜能	辐射强迫效应
CO ₂	278 ppm	410.05 ppm	100~300	1	2.076 (W/m ²)
CH ₄	722 ppb	1877 ppb	12.4	28	0.516 (W/m ²)
N ₂ O	270 ppb	332 ppb	121	265	0.202 (W/m ²)

1.1.3 精确 CO₂ 控制对碳中和的意义

温室气体的排放又称为碳排放。为纪念《哥本哈根协议》签署 10 周年，联合国环境署在 2020 年发布了第十版年度排放差距报告^[27]，将《哥本哈根协议》的预期与 10 年后的现实进行了比较。这十年来政治和社会对气候变化的关注越来越多，如 2016 年多国共同签署了具有重要意义的气候变化协定——《巴黎协定》。该协定旨在将全球气温较前工业化时期上升幅度控制在 2℃ 以内^[28]，并努力将其限制在 1.5℃ 以内。但多年来，全球温室气体排放并没有得到遏制。据统计，2020 年全球平均温度比工业化前平均温度高出 1.2±0.1℃。由于未能完成 2020 年的排放预期，导致实现《巴黎协定》的任务更加艰巨，到 2030 年，温室气体排放量需在 2010 年的水平上减少 45%，并到 2050 年达到净零排放。如果不能改弦更张，立即加强缓解局势的雄心和行动，并反映在长期温室气体发展战略中，《巴黎协定》的目标将难以实现，且有可能到本世纪末，全球呈现平均气温较工业化前水平上升 2.7~3.1℃ 的灾难性后果^[29]，如图 1.5 所示。

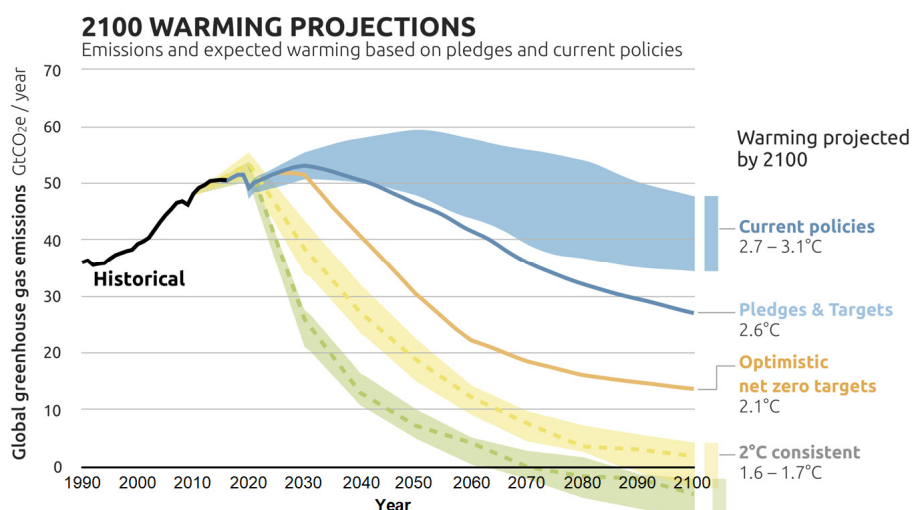


图 1.5 全球平均气温预测

控制气候变化的措施要求稳定大气中的痕量气体的浓度，通过核算并大幅度减少全球温室气体排放量来实现。近年来，我国已成为全球第一大 CO₂ 排放国，面临着严峻的气候变暖、大气污染等问题，亟需改善空气质量。中国为达成应对气候变化的贡献指出：到 2030 年，中国单位国内生产总值二氧化碳排放将比 2005 年下降 65% 以上。因而亟需以二氧化碳及其他温室气体排放达峰目标为牵引，协同控制温室气体与污染物排放，探索开展移动源温室气体排放研究和监测。开展全球温室气体排放监测，获得国际认可和数据统一的全球各国温室气体排放信息。并研制国产化温室气体观测设备，攻克温室气体及碳同位素高精度在线观测技术、温室气体自动在线分析技术、温室气体排放在线监测技术、温室气体实验室分析标定技术。研制基于拉曼散射、差分吸收、多普勒效应等原理的激光雷达，用于监测空气中的 CO₂、O₃、NO_x、CH₄ 等痕量气体和温室气体。

1.2 气体光谱遥感技术发展

为了测量气体浓度，传统的方法是在尽可能接近源的地方（原位）进行测量^[30,31]，但这种基于单点测量的方法不能对区域内时空高度变化的气体进行连续测量。遥感技术通常比原位技术更安全，例如，针对于危险气体泄漏的情况，遥感技术可以提供更快、更全面（包括空间）的采集（理想情况下包括发射区域内的所有辐射）。基于分子吸收光谱的光学遥感技术是一种主流的大气探测技术^[32,33]。其原理是基于朗伯比尔定律，描述了电磁强度 I_0 在经过长度为 L 的吸收介质后呈 e 指数衰减，可用如下公式表示

$$I(\nu) = I_0(\nu) \exp(-A(\nu)) = I_0(\nu) \exp(-N\sigma L) \quad (1.1)$$

其中 e 的指数项表示目标气体的透过率（即透射辐射 I 与入射辐射 I_0 的比值）， L 是光学路径长度（单位为 cm ）， σ 表示气体的吸收截面 ($\text{cm}^2/\text{molecule}$)， N 表示气体的数密度 (cm^{-3})。气体的吸收截面由分子的吸收线强度和光谱线型决定， $A(\nu)$ 是吸光度，与频率 ν 相关。令 $\kappa(\nu) = \sigma(\nu)/(k_B T)$ ，再根据理想气体方程 $P = nk_B T$ ，可将上式表述为

$$A(\nu) = \sigma(\nu)NL = \kappa(\nu)P_a\chi L \quad (1.2)$$

式中 P_a 是总的气体压力， χ 是目标气体的浓度，通常表示为在空气中的体积比，可用 ppm（百万分之一体积）表示。气体分子的分压可表示为 $P_i = P_a \times \chi_i$ 。另外路径积分的浓度可表示为浓度和路径长度的乘积 (ppm.m)，光学深度定义为 $OD = N\sigma L = \alpha L$ ， α 为吸收系数，单位为 cm^{-1} 。

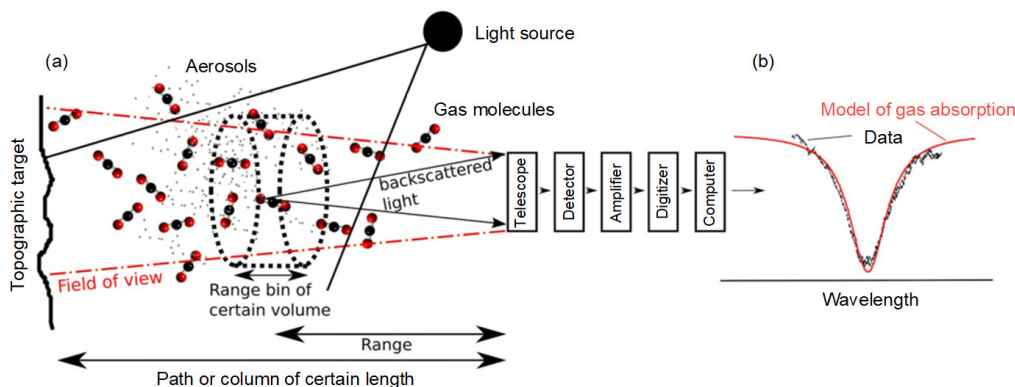


图 1.6 遥感测量原理图。(a)几何模型；(b)气体吸收模型

当光与分子相互作用时，大气中的某些分子会吸收（或发射）特定波长的光子^[33,34]。这种相互作用产生的直接影响是该波长的光学深度的改变。光谱学是研究这种相互作用的物理分析方法。光学遥感代表了一种光谱学的形式，应用于分析仪器远距离定位的目标，可以通过探测光学深度的变化来推断所涉及的气体含量。

当光通过测量路径（通常称为垂直路径柱）时，特定波长的光会被散射和吸收，并表现为该路径上的体积数密度、大气粒子、气体和气溶胶的函数^[35]。望远镜收集从地形硬目标或者空气粒子（如气溶胶）后向散射的光子数，如图 1.6 所示。入射光的强度通常以功率、通量或亮度来量化，然后由光探测器模块进行测量，对于给定的波长，光探测器模块将光子通量转换为电流和电压，然后由计算机进行数字化和处理。然后使用一个适当的物理模型，通常基于辐射传递方程^[36]，来分离和量化被测的吸收，并推导出其浓度（图 1.6(b)）。大多数遥感技术得到某种类型的绝对分子数密度，或者路径平均数密度，或距离分辨体积数密度。为了便于与环境浓度比较，数密度常被转换为混合比(ppm)。遥感方法基于光源不同可分为主动遥感和被动遥感两种，其原理示意图如图 1.7 所示。这两种方法基于平台不同又可分为地基、机载和星载遥感技术。下面将分别针对被动和主动遥感技术进行具体介绍。

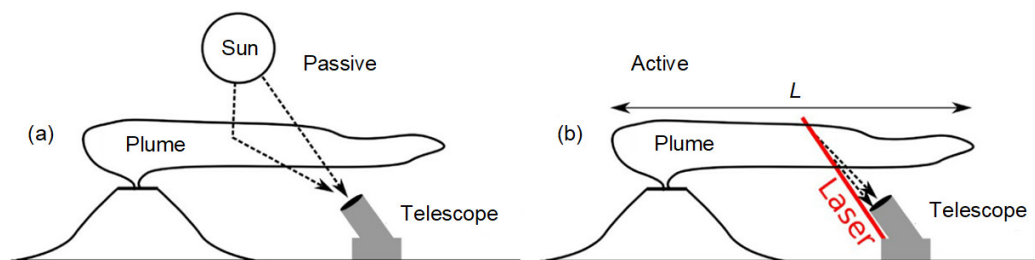


图 1.7 (a)被动遥感与(b)主动遥感对比

1.2.1 被动探测

被动遥感仪器通常使用黑体发射器(如太阳)作为光源,如图 1.6(a)所示,但也可以是其他任何可以发射红外辐射的源,如月球^[37]、热熔岩^[36,38-40]或热地^[41]等,主要可分为以下几种类型。

1. 光栅光谱仪

光栅光谱仪的原理是由望远镜收集沿着测量路径传播的光,然后通过衍射光栅将复合光色散到不同的光谱组分,形成具有大气气体光学特征的吸收光谱。影响测量精度和准度的关键参数是光谱仪的光谱分辨率 $\Delta\lambda$ 。通过使用如 MODTRAN^[42]、SCIATRAN^[43]或 FASCODE^[44]等辐射传输模型即可从光谱中反演得到气体的柱密度分布。这些正演模型首先考虑沿着测量路径的温度、压力、湿度以及来自 HITRAN^[45]数据库的光谱学参数,以计算理论下的大气气体的柱光学深度。随后将正演模型与测量的光谱进行比较,通过不断调整模型光谱的参数,使之无限接近测量的光谱^[46],从而得到气体沿测量路径的浓度分布。常用的反演算法主要有用于处理星载平台的大量数据的 WFM 0-DOAS 算法^[43]。

20 世纪 60 年代,Naughton 等人^[38]首次利用美国夏威夷基拉韦厄火山熔岩作为光源的光栅光谱仪探测了 CO_2 和其他火山气体,进行了简单的光谱分析并得到浓度结果,如图 1.8 所示,为后续的科学研究的原理性的证明。2011 年 Krings 等人^[47]演示了一种基于机载平台的双通道光栅光谱仪(MAMAP)用于测量 CO_2 和 CH_4 的柱密度,该系统的工作波长在近红外区域(1590~1690nm),柱平均浓度反演精度为 1%。2014 年美国 NASA 发射了用于 CO_2 柱浓度观测的专用卫星—轨道碳观测卫星(OCO-2),搭

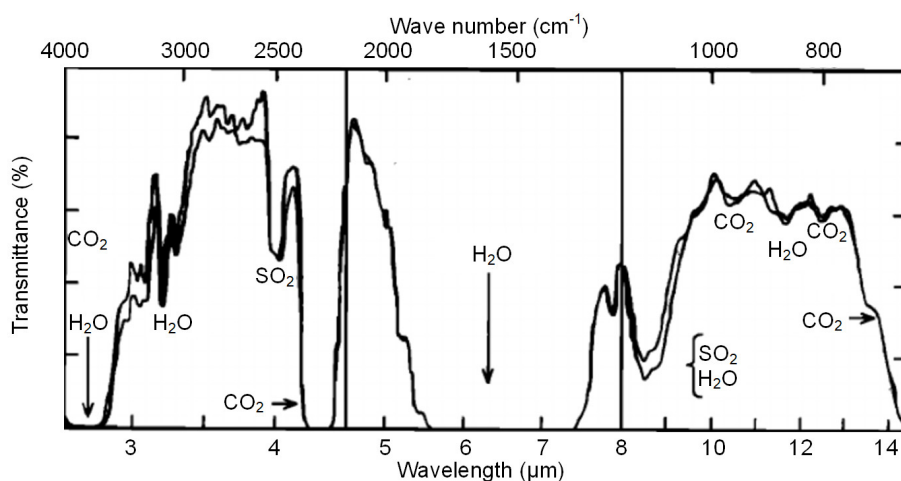


图 1.8 光栅光谱仪用于火山气体光谱分析

载的主要传感器即高分辨率光栅光谱仪。该光谱仪的工作波长为 $1.6\sim 2\mu\text{m}$ ^[48], 测量精度为 0.5ppm , 空间分辨率为 $1\times 1.5\text{km}^2$, 但它有 10km 的窄带。OCO-2 几乎每 16 天就能覆盖全球, 但是, 由于它的轨道范围很窄, 在轨道之间有一些区域无法进行测量。

2018 年 Tian 等人^[49]实现了一个相对低分辨的光谱仪 ($\Delta\lambda=0.3\text{nm}$ 或 $\sim 1.2\text{cm}^{-1}$), 工作波长在 $1587.67\sim 1690.51\text{nm}$ 。基于他们的光谱拟合算法, 测量的柱平均 CO_2 混合比误差 $<4\text{ppm}(<1\%)$ 。该系统设置包括一个带有太阳跟踪仪的望远镜, 以优化进入望远镜的太阳辐射。此外, Qin 等人^[50]使用一个现成的光谱分析仪探测了中国四川盆地的 CO_2 柱密度, 并实现了类似的测量精度。

2. 傅里叶变换红外光谱仪(FTIR)

FTIR 的原理是基于傅里叶变换红外光谱法产生宽带红外光谱, 光谱范围通常在 $4500\sim 600\text{cm}^{-1}(2.2\sim 16\mu\text{m})$, 与光栅光谱仪不同的是, FTIR 用干涉仪代替光栅。来自红外光源的光子被分束器分成两束, 这两束光分别在经过动镜和静镜的反射后互相干涉, 并由探测器测量强度信号形成干涉图, 然后再通过傅里叶变换将产生的干涉图与给定波长下的光谱能量密度联系起来, 并将其转换为光谱信息。由于移动距离可快速调节, 因此可以在短时间内($\sim 1\text{s}$)获得包含多种成分的光谱。

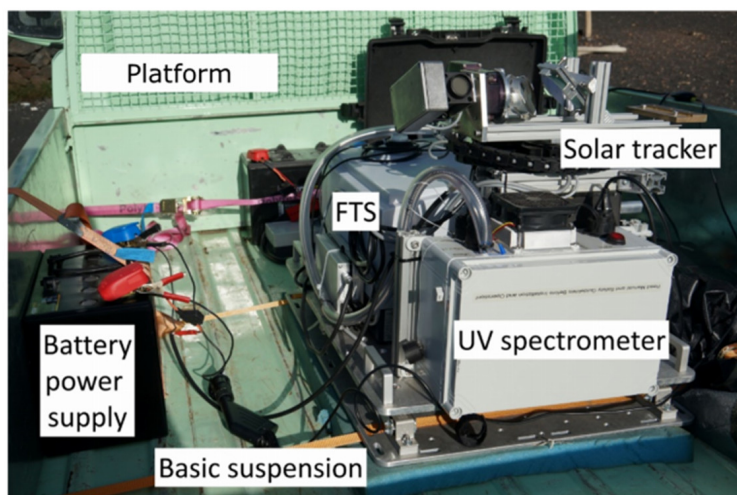


图 1.9 FTIR 的系统组成

20 世纪 90 年代, FTIR 技术通过配置望远镜实现了开放路径的测量, 这为安全距离内快速测量各种火山气体打开了广阔的应用前景^[39,51-52]。同时, 为了从光谱中得到气体的浓度信息, 不同的反演算法也得到了进一步的发展, 如 GFIT^[53]、PROFIT^[54]或 FTIR_FIT^[37,40]。2012

年, Petriert 等人^[55]使用光谱分辨率为 0.11cm^{-1} 的 FTIR, 并配备了太阳跟踪仪以确保恒定的光通量, 测量了大气中 CO_2 的浓度, 柱平均精度为 1.2ppm 。2017 年, Butz 等人^[56]使用一个商业化的 FTIR(EM27/SUN), 其光谱分辨率为 0.5cm^{-1} , 工作波长为 $5000\text{--}11000\text{cm}^{-1}$, 并通过配备商业化的太阳跟踪仪监测了位于意大利埃特纳火山的 CO_2 路径平均浓度, 其系统装置如图 1.9 所示。该系统被安装在卡车上, 当卡车在移动时太阳跟踪仪的稳定性会受到影响, 因而仅当卡车不动时才能获得光谱, 测量的 CO_2 柱密度的精度为 0.2ppm ($\sim 0.05\%$)。

此外, FTIR 技术用于大气成分变化观测网 (TDACC) 可获得气体的柱浓度或廓线信息^[57]。同时 FTIR 也被用于卫星平台的气体观测, 如 2009 年由日本发射的温室气体观测卫星 GOAST 搭载的核心传感器即为 TANSO-FTS, 其工作波长在 $0.75\text{--}14.3\mu\text{m}$ ^[58], 测量的 CO_2 精度约为 $2\text{--}3\text{ppm}$, CH_4 精度约为 $\sim 15\text{ppb}$ 。GOSAT 卫星通常会在其 700 公里长的区域内记录 3~5 个直径为 10 公里 (图 1.13) 的足迹, 并在三天内就能覆盖全球。

3. 成像光谱仪

成像光谱仪 (也称为光谱图象处理技术) 通过将光谱仪 (如光栅光谱仪) 和扫描技术相结合 (如图 1.10 所示), 可以实现有空间分辨率的光谱成像, 其空间分辨率由像素分辨率定义。

成像光谱仪由于其测绘特性, 主要用于机载或星载的地表辐射数据的测量。目前星载平台上能提供光谱分辨的传感器几乎都为成像光

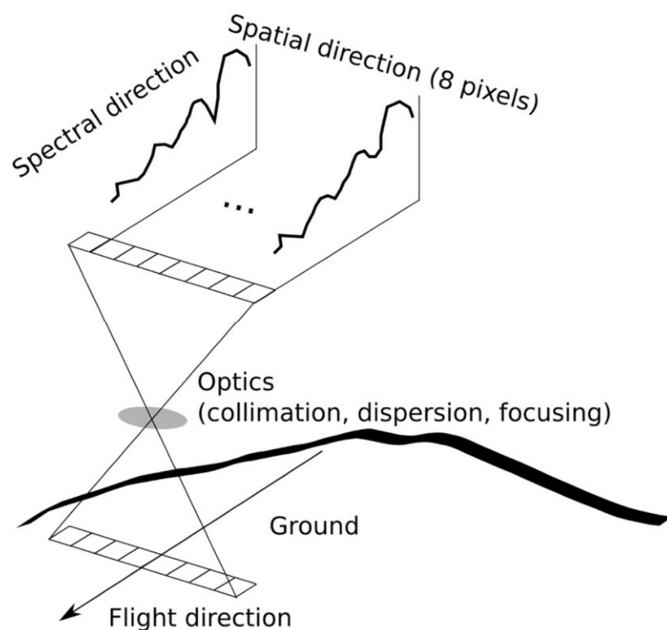


图 1.10 成像光谱仪原理示意图

谱仪。20 世纪 80 年代美国 NASA 在在喷气推进实验室 (JPL) 设计了基于机载的可见/红外成像光谱仪(AVIRIS)^[59]。2002 年由欧空局发射的致力于环境监测的卫星 ENVISAT, 其中用于痕量气体观测的传感器即为大气成像扫描成像吸收光谱仪(SCIAMACHY)^[60], SCIAMACHY 的区域宽度为 960 公里, 在标准操作中, 它每 6 天在最低点观测模式下可实现全球覆盖 (如图 1.13 所示)。此外, 2006 年由德国批准实施的 EnMAP 卫星计划中也使用了超光谱成像仪(HIS)^[61]。

4. 光学相关光谱法(OCS)

OCS 提供了一种简单、可靠的方法来遥感大气气体^[62]。其原理如图 1.11 所示, 首先利用一个带通滤波器对光源进行预选择, 使其包含一个吸收带的多条吸收线。随后将滤波后的光束分成两臂 (光源 1 和光源 2), 光源 1 经过仅含有待测气体的参考腔, 光源 2 则不经过。在此过程中, 参考腔可作为选择性光谱滤波器对光源 1 进行强度调制, 因而在光源 1 通过待测气体时几乎不被吸收, 而光源 2 则强烈依赖于待测气体的浓度, 通过比较光源 1 和光源 2 的透过率差异即可得到气体的浓度分布。

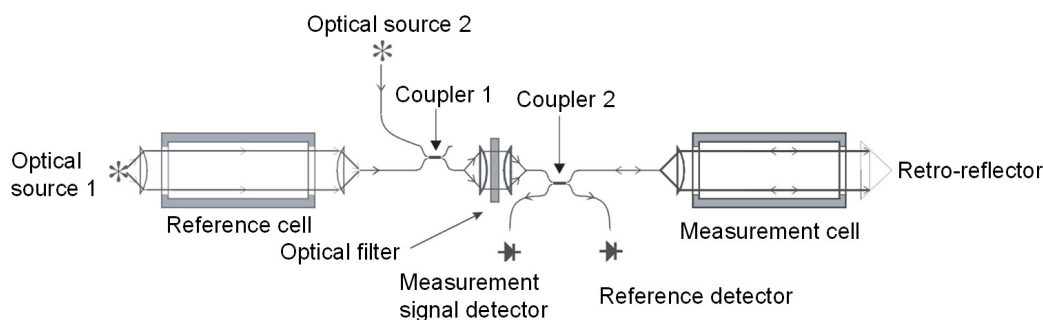


图 1.11 OCS 气体探测的原理示意图

1968 年, Goody 等人^[63]最早引出 OCS 的概念作为互相关光谱仪, 并且在过去几十年间得到了进一步的发展。1996 年, Sandsten 等人^[64]基于 OCS 方法对 CO₂ 的羽流进行了成像。2004 年, Tolton 等人^[65]提出了基于星载平台的 OCS, 进行了详细的系统分析和灵敏度研究, 测量的柱平均浓度精度为 0.5~1.1ppm。并于 2013 年研制了基于 OCS 方法的具有成像能力 (8km 像素分辨率) 的卫星载荷 (GRIPS)^[66], 且成功完成了机载测试^[67]。

5. 法布里波罗干涉仪(FPI)

对于有害或有毒气体的监测, OCS 中参考腔的使用容易带来一定

的安全隐患，1997 年 Sinclair 等人^[68]通过使用衍射光学元件来代替气体腔，这种方法也可以通过使用 FPI^[69]模拟气体参考光谱来完成类似的相关原理。FPI 的原理与 OCS 类似，首先将入射光分为两个通道。在第一个通道中，光通过法布里-珀罗标准具，改变标准具的腔长可使形成的干涉条纹发生移位，以匹配待测气体吸收的最大值（如图 1.12 所示），因而该通道主要对待测气体敏感。第二个通道不具有波长选择性，通过测量这两个通道中信号的比值或者互相关的结果即可得到待测气体的浓度。与 FTIR 相比，FPI 系统简单，没有需要移动的部件，且可以被包装成很小的尺寸，适用于作为卫星载荷。

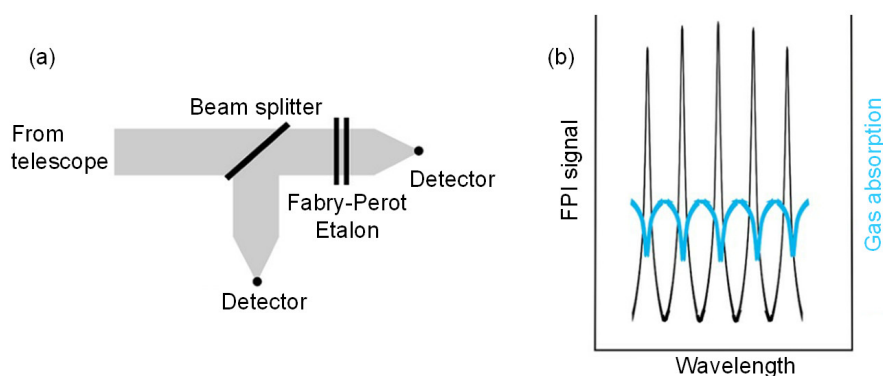


图 1.12 FPI 的原理示意图。(a)仪器的基本设置；(b)FP 的干涉条纹与气体吸收线重叠

2007 年，Wilson 等人^[70]针对机载和星载的应用提出了基于 FPI 原理的样机。该样机的工作波长在 $1.6\mu\text{m}$ ，测量精度 $<1\text{ppm}$ ，累计时间 $<10\text{s}$ 。2010 年，Kobayashi 等人^[71]使用光纤耦合的紧凑型 FPI，并实现了 0.2% 的路径平均浓度精度。

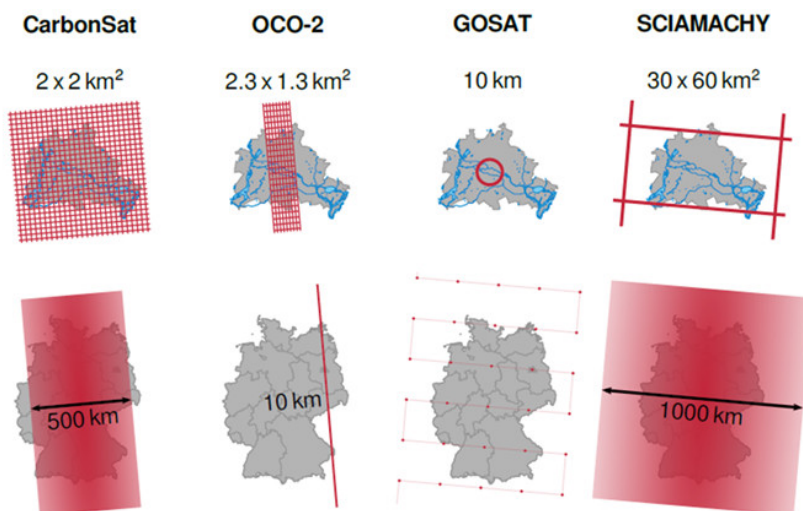


图 1.13 主要温室气体专用卫星的幅宽与地表分辨率对比

表 1-2 被动遥感技术应用

平台	名称	技术	距离 (km)	距离分 辨率	精度(%)	累积时间
地基	MIDAC ^[72]	FTIR	0.1~2.5	无	4-10	1~16s
	Bruker IFS ^[56]	FTIR	>10	无	0.3	/
	Bruker OPAG-22 ^[73]	FTIR	1	无	4-10	/
	Bruker EM27/SUN ^[57]	FTIR	>10	无	0.1	0.5s
	无	Grating	>10	无	~1	/
	FFPI ^[71]	FPI	>8	无	0.2	/
平台	名称	技术	高度 (km)	地表分 辨率	精度(%)	累积时间
机载	无	FTIR	0.15	无	/	1s
	AVIRIS ^[74,75]	IS	19	18m	~0.3	/
	MAMAP ^[47]	Grating	4.5	无	1	/
平台	卫星	载荷	高度 (km)	地表分 辨率(km)	精度(%)	国家
星载	GOSAT ^[58]	FTIR	666	22	1	日本
	GOSAT2 ^[76]	FTIR	613	1	0.1	日本
	OCO-2 ^[58]	Grating	705	1.3×2.3	0.3	美国
	OCO-3 ^[77]	Grating	408	/	0.3	美国
	TanSat ^[78]	FTIR	700	~2×2	0.3-1	中国
	CarbonSAT ^[79]	IS	693	~2×2	0.3	欧洲
	EnMap ^[61]	IS	643	30	/	德国
	GRIPS ^[67]	OCS	/	8	0.3~1	美国
	ENVISAT ^[80]	Grating	772	30×60	<4	欧洲
	Sentinel-5P ^[81]	Grating	824	/	1	欧洲
	FY-3D ^[82]	FTIR	836.4	/	/	中国
	FY-3G ^[83]	Grating	/	/	1~4	中国
	MicroCarb ^[84]	Grating	649	/	<1	法国、英国

总之，被动光谱遥感技术由于其精度高、系统简单、稳健且成本低等特点，目前已广泛提出和应用用于地基、机载及星载平台（见表 1-2）。图 1.13 为几种主要的温室气体专用卫星的幅宽与地表分辨率对比。同时，被动遥感技术也存在一定的局限性，如缺乏精确控制的光源，依赖于太阳光，不能在夜晚进行探测，受云和气溶胶影响比较严重等。接下来介绍的主动遥感技术则有望克服这些问题，为机载和星载平台提供新的应用前景。

1.2.2 主动探测

主动探测由于其非接触式探测，时空分辨率高，探测距离远，不受探测时间和地点限制等特点，在气体成分探测方面有显著优势^[85-87]。与被动式遥感相比，主动探测可主动出射光源（一般为激光器，图 1.7(b)）。一方面，利用光频梳作为光源可实现宽范围的光谱扫描^[88-94]；另一方面，激光雷达技术采用相对窄的光源来测量特定的气体可获得距离分辨率的信息^[87]。下面主要针对这两方面进行介绍。

1. 双频梳光谱学(DCS)

光频梳在频域上表现为一系列等间隔分布的光谱谱线，这些谱线频率稳定性高且覆盖范围广^[95-100]。因而基于 DCS 的遥感是一种有前途的、新兴的场外测量技术，可适用于多种气体的远程探测，并具有超高的光谱分辨率和探测精度。DCS 的原理与 FTIR 类似，前者使用两个重复频率稍有差异的频梳取代了后者中

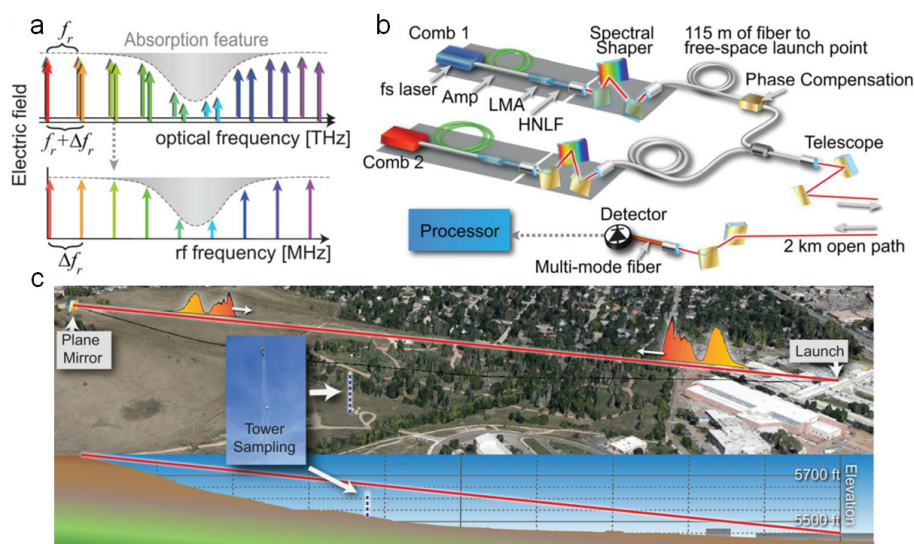


图 1.14 NIST 的双频率气体遥感。(a)双频梳概念，两个具有微小重复频率差异的光频梳在探测器上干涉，形成与光频梳一一对应的电频梳；(b)系统设置；(c)在 2km 位置处放置平面镜

的干涉仪，将两个频梳的光在通过大气气体的吸收后进行拍频（如图 1.14(a)所示），并用光电探测器采集拍频后的干涉图，随后利用傅里叶变换将其转换为气体的光谱信息。

2014 年, 美国国家标准技术研究所(NIST)的 Rieker 等人^[93]基于 DCS 在 2km 的开放路径处放置了平面镜(如图 1.14(c)所示), 使用了较长的累积时间(170min)同时探测了 $5990\sim 6260\text{cm}^{-1}$ ($1600\sim 1670\text{nm}$)范围内 $^{12}\text{CO}_2$ 、 $^{13}\text{CO}_2$ 、 CH_4 、 HDO 和 H_2O 多种气体的光谱, 并反演得到了各种气体路径积分的浓度, 其中 $^{12}\text{CO}_2$ 和 CH_4 的测量精度分别为 0.21%和 0.45%。2018 年, Coburn 等人^[90]将 DCS 装载在移动的拖车上, 在 Rieker 等人的基础上增加了平面镜的数量, 对几平方公里的区域进行了部署, 通过模拟 CH_4 的排放实现了区域的昼夜连续监测, 该系统测量 CH_4 的路径积分浓度精度为 0.35%。但考虑到基于 DCS 的遥感技术成本高, 且不能得到光谱的距离分辨率信息, 其目前在遥感方向还没有被广泛应用。

2. 光学相关激光雷达(OCS-Lidar)

OCS-Lidar 是将光学相关光谱法与激光雷达方法相结合以实现距离分辨的光谱测量^[101–106]。OCS-Lidar 的原理如图 1.15 所示，和单纯的 OCS 方法相比，该方法不再利用太阳辐射作为被动光源，而是主动出射两个宽带的激光脉冲，其中一束脉冲包含了多条待测气体的吸收线（作为相关信号），另一束在经过如类似气体腔的光束整形后不再包含待测的吸收线（作为非相关信号）。这两束脉冲在大气中经历不同的气体吸收，通过分析两者的后向散射信号来得到气体的光学深度。

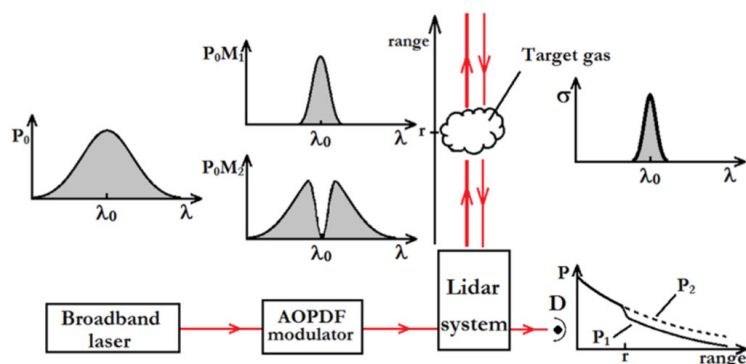


图 1.15 OCS-lidar 原理示意图

2012 年, Thomas 等人^[102]提出使用 OCS-Lidar 方法来遥感目标气体的浓度。该系统使用声光可编程色散滤波器代替了传统的气体腔对光束整形, 并对距离分辨率为 100m 的 CH₄ 浓度测量进行了理论模拟, 反演误差为 20%。2013 年, Thomas 等人^[103]首次对 OCS-Lidar 进行了场外实验, 用于 H₂O 的廓线测量。该实验的实验波长为 720nm, 位于 H₂O 的 4v 吸收带, 并在 2km 的测量范围内实现了距离分

分辨率为 250m，测量精度为 15%-40% 的 H_2O 分布。2016 年，Anselmo 等人^[105]在实验室设定了四种不同浓度（4500ppm.m、9000ppm.m、13500ppm.m 和 18000ppm.m）的 CH_4 ，并利用 OCS-Lidar 测量了路径积分的 CH_4 分布，测量精度为 24%。2018 年 Galtier 等人^[106]利用 CH_4 的 2v3 波段对 CH_4 的泄漏进行场外的遥感测量。由于 OCS-Lidar 方法是通过出射宽带光源，因而降低了气体的吸收差异，在一定程度上会影响测量的灵敏度。该方法通常适用于大气中高浓度的气体测量，如 H_2O 或 CH_4 泄漏等，且测量误差较大。目前该方法还没有应用于大气 CO_2 的测量。

3. 拉曼激光雷达(Raman Lidar)

拉曼激光雷达^[107-109]的原理是当一定频率的激光照射在不同的分子表面时会导致其能量发生转移，从而散射出不同频率的光。被散射的光频率相对于入射光频率的差异称为拉曼频移，该频移只与分子的特征有关^[110]。信号强度与散射气体浓度成正比，距离信息由光发射的时间获得，分子信息由每个分子的拉曼频移获得。因而通过分析散射光谱就可以得到待测分子距离分辨的浓度信息。但通常情况下大气气体的拉曼散射截面很弱^[103]，因而需要很高的峰值功率，并且波长需要精确校准。该方法要么适用于测量浓度高的气体，要么则需要在夜间测量。而大气中的温室气体一般含量较低，在这种情况下拉曼 Lidar 存在一定的局限性。鉴于此，另一种利用弹性后向散射的激光雷达技术（差分吸收激光雷达）在温室气体遥感方面得到了广泛的应用，接下来将重点讨论这一部分。

4. 差分吸收激光雷达(DIAL)

DIAL 是目前用于大气气体遥感的最成熟的激光雷达技术。其原理是通过主动出射两束不同波长的脉冲，其中一束位于待测气体吸收线的中心，称为 on 波长，另一束与 on 波长靠近但位于待测气体几乎不吸收的位置，称为 off 波长。这两束激光在大气中经历不同程度的吸收，并被分子或气溶胶散射后接收（如图 1.16 所示）。通过分析 on 和 off 波长的大气回波信号的比值就可反演得到有距离分辨率的气体浓度^[111-115]。

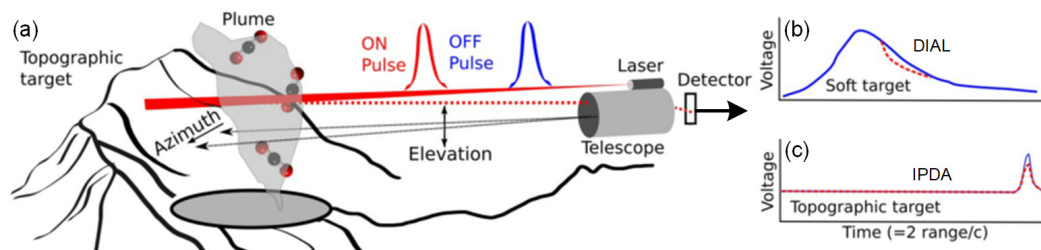


图 1.16 (a)差分吸收原理示意图；(b)信号被分子或气溶胶后向散射所对应的 DIAL；(c)信号被地形等硬目标反射所对应的 IPDA

DIAL 常用于地基遥感，其优势在于测量相对灵活。例如，仪器可以移动到离待测目标更近的地方。地基遥感在最简单的情况下，测量可以静态进行，即仪器不以任何方式移动^[38,51]。同时仪器也可以保持固定，通过扫描 Lidar 的发射和接收模块，还可以获得二维或三维的浓度分布。由于 DIAL 使用两路波长信号的比值的特性，相对来说它不需要像拉曼雷达那样精确的校准，也不需要拉曼激光雷达所需要的高脉冲能量，在同等条件下能获得更高的探测距离和精度。

在过去 50 多年间发展了很多 DIAL 系统来探测大气。针对 CH₄ 探测的情况，1993 年，英国国家物理实验室(NPL)的 Milton 等人^[116]对移动式 DIAL 进行了研究，利用染料激光器提供窄带可调辐射，该辐射可通过倍频得到紫外 UV 的输出，也能通过差频或光参量放大器转换为红外 IR 输出。NPL 的 DIAL 系统使用一对脉冲激光器进行 10m 距离分辨测量，测量范围可达 3km。1995 年，Milton 等人^[117]又使用外部气体腔对 NPL 的 DIAL 系统进行了校正，通过使用动态气体腔来检测了该系统在 3.4 μ m 附近探测 CH₄ 的性能。1997 年，Milton^[118]通过可调二极管激光器对 OPO 进行种子注入来实现单模操作，经过种子注入后能产生 1.55 μ m 附近的信号光和 3.4 μ m 附近的闲散光，同时注入两束种子频率可实现双波长操作，平均输出能量 5mJ，线宽 140MHz，并通过对大气 CH₄ 进行距离分辨测量证实了该方法可用于红外差分吸收激光雷达的测量。

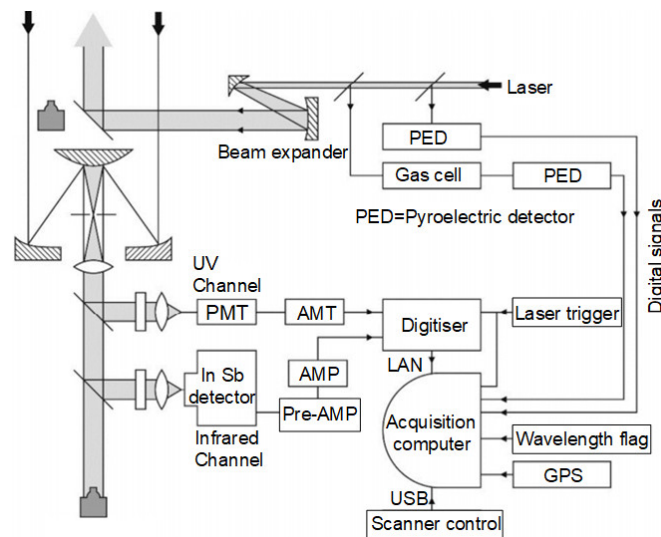


图 1.17 NPL 的 DIAL 系统设置

2011 年，Robinson 等人^[119]研究的 NPL DIAL 使用两个同步连续的 Nd-YAG 激光器提供泵浦能量和一个染料激光器提供窄带可调辐射，通过使用该系统实地测量石油化工和垃圾填埋场的总场地排放，在 3.5 米的空间分辨率测到 3km 的距离。2017 年 Innocenti 等人^[120]用 DIAL 对活动和封闭的垃圾填埋场 CH₄ 的

排放进行了研究，实现了大区域覆盖范围和距离分辨测量，对应的系统设置如图 1.17 所示。同时 Gardiner 等人^[121]也对 CH₄ 排放测量进行了场外验证。目前 NPL 的 DIAL 被集装在一个移动实验室，由 Nd-YAG 和染料激光器组合产生可调的红外波长约 3.4 μm 的脉冲作为光源，光谱带宽约为 0.1nm，脉冲重复频率为 10Hz，输出激光脉冲持续时间 8ns，脉冲能量 10mJ。

2014 年日本九州大学的 Ikuta 等人^[122]使用拉曼频移器和 Ti:sapphire 激光器组合，在 1.67 μm 附近产生可调谐光源，如图 1.18 所示。该 1.67 μm 的差分吸收激光雷达可用来探测 CH₄ 泄漏，与传统的 DIAL 系统相比具有更高的距离分辨率(15m)来探测泄漏位置，通过对光源和探测器系统的改进，可将 CH₄ 浓度为 100ppm 的探测半径可提高到 500m。

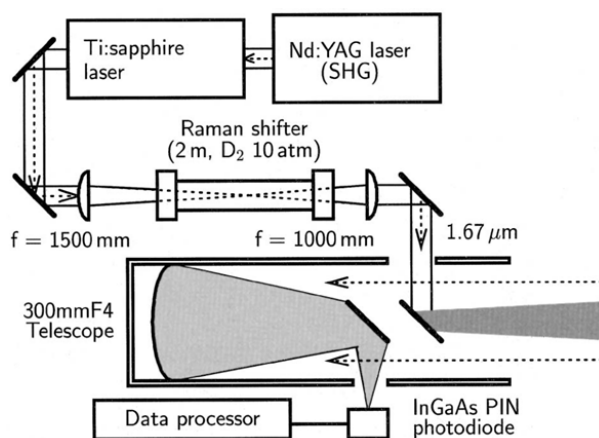


图 1.18 九州大学的 DIAL 系统设置

1983 年，Bufton 等人^[123]开发了第一台探测大气 CO₂ 的 DIAL。随着激光技术的发展，DIAL 引起了世界各国的广泛关注。2004 年，美国 NASA 兰利研究中心的 Koch 等人^[124]使用地基相干差分吸收激光雷达测量了大气 CO₂ 垂直浓度廓线。激光器工作波长为 2.05 μm ，采用重复频率为 5Hz，脉冲能量为 75mJ 的 Ho:Tm:YLF 作为发射机和双平衡 InGaAs 光电二极管作为探测器，实现了距离分辨率为 200m，1.2~2.8km 标准差为 1%~2%的 CO₂ 测量结果。2008 年，Koch 等人在此基础上研制了脉冲能量为 95mJ 的 Ho:Tm:LuLiF 激光器，并在距离分辨率为 500m，累积时间为 6.7min 的情况下测得了大气中 CO₂ 的浓度，精度标准偏差<2.4%。

2009 年，日本东京都立大学的 Sakaizawa 等人^[125]设计了 1.6 μm 波段的 DIAL 系统用于 CO₂ 探测，其实验设置如图 1.19 所示。该系统采用了种子注入式的光学参量振荡器(OPO)作为发射机。激光脉冲能量为 10mJ，重复频率为 110Hz，并使用光子计数模式的光电倍增管作为接收机。对对流层的 CO₂ 观测的结果显示，5h 的积分时间内 5.2km 范围统计误差为 2%，2km 的统计误差<1%。2017

年, Shibata 等人^[126]将 OPA/OPG 技术应用于 CO₂ 探测的 DIAL 系统中, 并通过高低两种模式出射不同能量的激光。其中高模式的脉冲能量为 20mJ, 重频为 250Hz, 实现了 6.3km 高度上距离分辨率为 500m 的 CO₂ 探测, 低模式下的脉冲能量为 2mJ, 实现了 3.8km 高度上距离分辨率为 100m 的探测, 测量精度<1.0%。

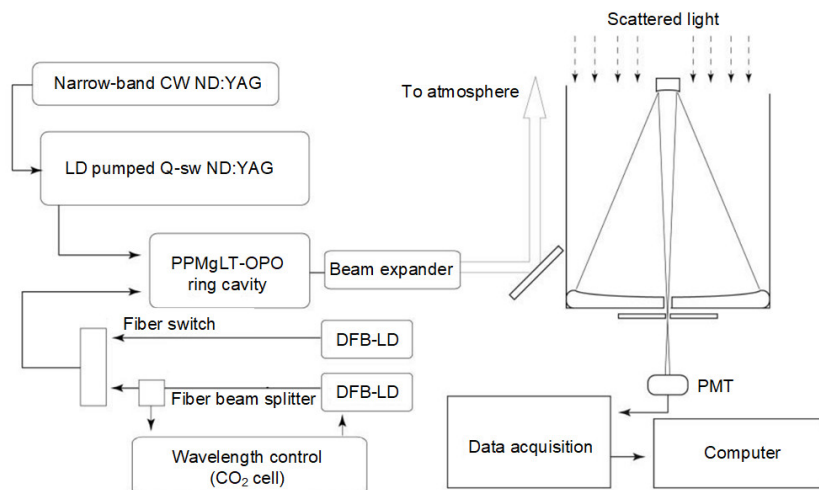


图 1.19 东京都立大学的 DIAL 系统设计

2006 年, 法国科学研究中心(CNRS)的 Gibert 等人^[127]采用 DIAL 对 CO₂ 的浓度进行了监测。该雷达系统采用 2050~2065nm 范围可调谐的 Tm:Ho:YLF 激光器, 脉冲能量为 10mJ, 脉冲宽度为 230ns, 重复频率为 5Hz, 并使用一个 CO₂ 吸收腔进行频率校准。接收装置则采用 InGaAs 光电二极管的平衡探测器。反演精度在 1min 平均后为 2%(9ppm), 5min 平均后为 1%(5ppm)。

2015 年, Gibert 等人^[128]将激光器的重复频率提高到了 2kHz, 并采用全光纤结构, 通过两个光纤耦合的分布反馈激光器(DFB)控制 on 和 off 波长的切换。该系统分别被用于水平和垂直 CO₂ 的测量, 水平探测距离为 2km, 时间分辨率为 15min。距离分辨率为 150m。垂直观测在 1km 的误差为 2%。

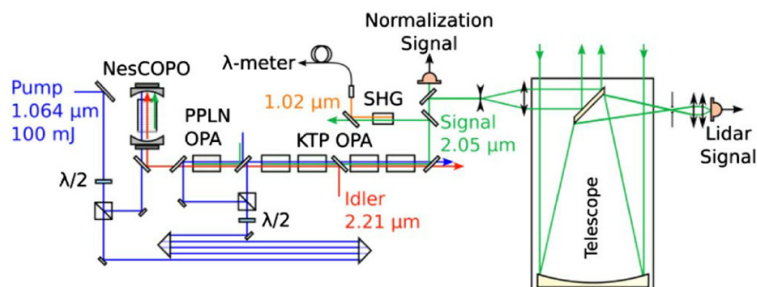


图 1.20 ONERA 的 DIAL 光源设置

2017 年, 法国航空航天研究院(ONERA)的 Cadiou 等人^[129]研制了 2.05μm 直接探测 CO₂ 差分吸收激光雷达。该系统采用了光学参量振荡器(OPO)作为激

光源,如图 1.20 所示,这种较大的光谱覆盖范围可以满足多种气体探测的需要。输出的脉冲能量为 5~10mJ,重复频率为 30Hz,脉冲宽度 10ns。探测器类型为 InGaAs PIN。CO₂ 的探测距离为 1km,距离分辨率为 150m,测量精度为 10%。

5. 路径积分差分吸收激光雷达(IPDA)

IPDA 与 DIAL 原理基本相同,但与之稍有不同的是,IPDA 是利用云、地面等硬目标将信号返回(见图 1.16(c)),通过目标反射信号反演出路径内气体分子的柱浓度^[112]。这种通过硬目标返回的回波信号信噪比较高,但是由于结果是通过积分反演而来,所以不能通过这种方式获得距离分辨率的信息。因为 IPDA 适用于机载和星载的长距离探测。例如为了监测全球 CO₂ 和 CH₄ 等温室气体的分布,各国相继提出了 ASCENDS、A-SCOPE 以及 MERLIN 等星载计划^[130-132]。

自 2004 年以来,美国 NASA 兰利研究中心一直致力于 1.5 μ m 和 2 μ m 的 IPDA 系统研发,用于进行 ASCENDS 任务所需的高精度柱状 CO₂ 混合比测量。2013 年,兰利研究中心的 Dobler 等人^[133]研发了一台 1.57 μ m 波段,强度调制的连续波 IPDA 系统,并进行了机载实验。机载实验采用的连续激光器总输出功率 5W,探测器使用 HgCdTe 光电二极管,实验飞行高度 4.6km,结果显示出极高的信噪比(>1300)和测量精度;数据采用 10s(约飞行 1km)平均,CO₂ 柱浓度测量标准差为 0.44%(约 1.7ppm)。2014 年,Refaat 等人^[134]使用 2 μ m 双脉冲 IPDA 搭载 NASA B-200 飞行器进行了机载实验,这一双脉冲激光器已被证明可将脉冲能量提高到 600mJ 以及对应 10Hz 的重复频率^[135]。

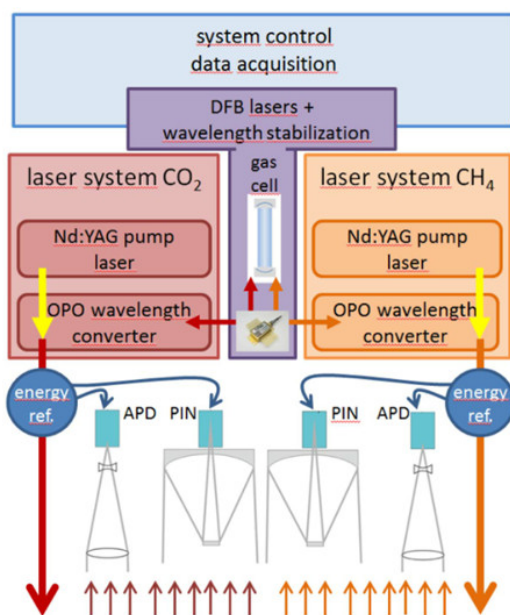


图 1.21 DLR 的 CO₂&CH₄ DIAL

德国宇航局(DLR)和法国航空航天局(CNRS)致力于推动 MERLIN 计划。2017 年 DLR 的 Amediek 等人^[136]设计了 CHARM-F 系统,用于 CO_2 和 CH_4 的同时探测。如图 1.21 所示,激光脉冲交替发射用于 CO_2 和 CH_4 测量,以避免相互干扰。激光光源为 Nd:YAG 激光泵浦的 OPO,并使用稳定的低功率连续波分布反馈激光器(CO_2 : 光纤激光器; CH_4 : 激光二极管)注入种子光。该系统搭载德国研制的 HALO 飞机进行了飞行试验,在 20km 的路径平均下柱平均混合比的精度 $<0.5\%$ 。

6. 多频率 DIAL/IPDA

以上提到的 DIAL 或 IPDA 系统的原理均是基于特定的待测气体两个出射频率的激光,不能实现整个光谱的扫描。同时每套系统只能对应一种气体的探测,在进行多气体探测时会大大增加系统的复杂度和成本。目前,多个课题组在 DIAL/IPDA 的基础上开始了多频率的研究。使用多频率的优势在于能够通过覆盖宽范围的光学厚度来测量不同大气条件和浓度下的分子^[137,138],甚至可实现多种气体的测量^[139]。与传统的 DIAL/IPDA 相比,可以提高整体精度。

2003 年, NASA 戈达德飞行中心的 Krainak 等人^[140]研制了一种用于大气 CO_2 光谱探测的雷达系统。该系统的工作波长为 1572nm,通过扫描可调谐激光器实现多波长的输出,并用掺铒光纤放大器放大至 5W,出射的光在经过 206m 的水平路径后由角反镜反射回望远镜并用

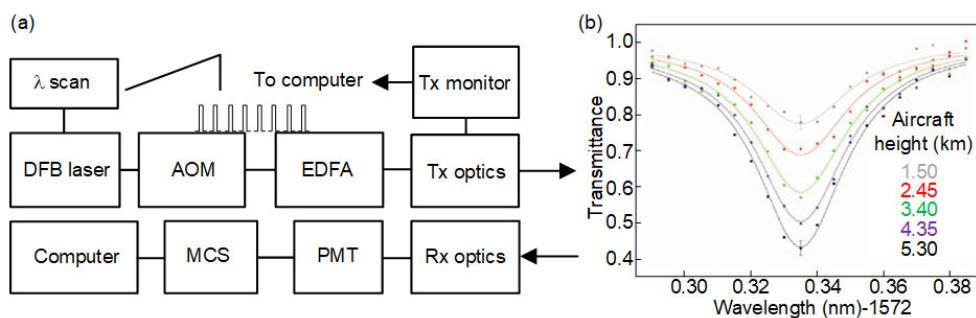


图 1.22 NASA 戈达德频率未锁定的多波长 IPDA。(a)系统设置;
(b)不同高度处测得的路径积分透过率光谱

光电倍增管接收。实验得到了 CO_2 的透过率光谱,通过反演得到的 10min 累积的浓度结果与点式仪器对比的精度为 $\pm 1.7\%$ (7ppm)。2008 年, Allan 等人^[141]在前面的基础上,增加了 CO_2 气体腔用于激光器波长的监测,如图 1.22 所示,并实现了 400m 水平路径的 CO_2 探测。同时, Abshire 等人^[142]利用 AOM 将可调激光器输出的光斩成脉冲,并用 EDFA 进行放大用于机载实验的 CO_2 柱浓度的测量。通过控制 DFB 激光

器内部的温度和电流可实现在 1572.29~1572.39nm 范围扫描 20 个波长，中心波长为 1572.335nm，并由 CO₂ 气体腔对该波长进行监测，扫描的波长经光纤放大器放大后输出功率为 25μJ，使用 PMT 作为接收机。随后在俄克拉荷马州上空飞行期间对 CO₂ 吸收进行了初步测量，通过飞行不同的高度得到了 CO₂ 的光谱分布（图 1.22(b)），在较高的海拔下，测量的柱积分光谱与理论计算光谱的误差为 2.5%。Abshire 等人^[139-142]还报道了在美国东部和中部的几次飞行实验，飞行高度在 3~13km，测量结果与拟合结果的残差为 0.7%~1.7%之间。

2011 年 Numata 等人^[146]在上述提到的多波长 IPDA 的基础上，对 DFB 激光器的输出波长的锁定技术进行了研究。该系统首先利用一个 DFB-LD 作为主激光器，将其频率通过 CO₂ 气体腔锁定在吸收线的中心，限制其频率漂移在 0.3MHz 以内。然后再将另外 4 个 DFB-LD 激光器作为从激光器分别与该主激光器拍频，利用相位锁定回路来稳定从激光器的波长。但是这种设计虽然实现了较稳定的多波长输出，但每多出射一个波长都需要额外再增加一个 DFB 激光器，导致系统的光学损耗和成本增加。2012 年，Numata 等人^[147]对该技术进行了改进。在使用一个主激光器和一个从激光器的情况下，可以实现~40GHz 范围的频率调谐。其原理如下，主激光器同样是锁定到 CO₂ 气体腔，从激光器通过光学锁相环与主激光器进行拍频锁定，通过改变从激光器的电流实现不同的频率输出。每次频率切换后，偏移频率噪声在不到 40s 的时间内被抑制到静态偏移锁定水平，使从激光器保持主激光器的绝对频率稳定性。这种技术满足了气体传感激光雷达的严格要求，可用于 ASCENDS 计划。

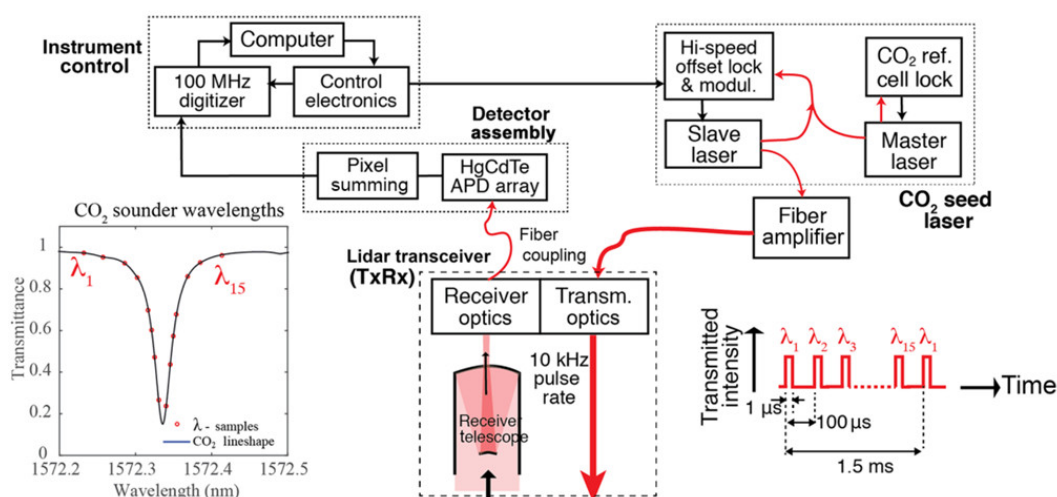


图 1.23 NASA 戈达德基于频率锁定的多波长 IPDA 系统设置。其中主激光器锁定至气体腔，从激光器拍频锁定至主激光器

2018 年, Abshire 等人^[148]在之前飞行实验的基础上, 对多波长 IPDA 系统的出射波长采用了上述的频率锁定方法, 并使用高灵敏的 HgCdTe 探测器提高了探测效率, 激光的脉冲能量为 50 μ J, 重复频率为 10kHz, 系统设置如图 1.23 所示。在最新的飞行实验中还探测到了存在于 CO₂ 光谱中弱的 HDO 吸收, 通过改进反演算法减小了 HDO 对 CO₂ 反演的影响。在 2016 年在沙漠表面进行的机载激光雷达测量的反演显示, 在 1s 的平均时间内其反演精度为 0.8ppm。

2017 年, 英国曼彻斯特大学的 Queisser 等人^[149]也开展了多波长的 IPDA 研究, 发展了一种遥感光谱仪(LARSS)。该系统同样采样了一个连续可调谐激光器, 通过改变其电流出射了 20 个波长来扫描 CO₂ 的吸收线, 其中中心波长也由 CO₂ 气体腔进行参考。激光器出射功率为 1W, 重复频率为 10kHz, 探测器为 InGaAs PIN。通过由 2km 处屋顶反射的回波信号, 得到了路径积分的光谱, 测量误差为 10%。此外该系统被安装在飞机上并在印度尼西亚进行了机载测试, 对各种高度(光学范围)到各种表面和地形(包括土地, 农业和森林, 海洋以及小块水域)进行了 CO₂ 的测量。同时该系统被安装在离地面 5.3m 的塔上进行了地基的 IPDA 测试, 通过从塔上以不同的角度出射激光至地面的泥火山, 测量了该处路径积分的 CO₂ 浓度。

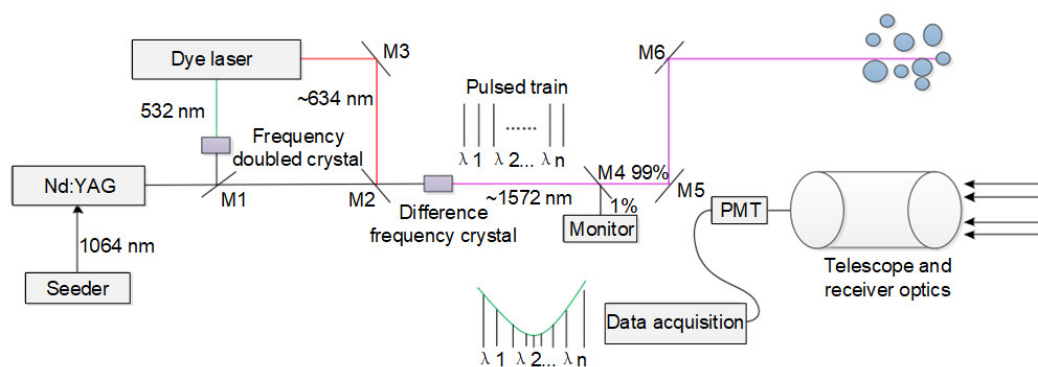


图 1.24 武汉大学多波长 DIAL

武汉大学近年来针对多波长的 DIAL 进行了一系列的模拟工作^[150-153]。2013 年, Xiang 等人^[151]对多波长 DIAL 的可行性进行了模拟和实验研究。系统设置如图 1.24 所示, 目标波长是通过 1064nm 的 Nd:YAG 激光器和 634nm 的染料激光器进行差频, 再由 Nd:YAG 激光器的二次谐波(532nm)泵浦得到的。因而通过步进电机来调节染料激光器就可以得到多波长的输出。Xiang 等人在对该系统进行理论模拟后, 随后在实验室对 CO₂ 气体腔进行了双波长和多波长的对比实验, 二者

的测量误差分别为 8.0469% 和 1.5204%。2017 年, Han 等人^[152]针对多波长 DIAL 系统的不同参数设置进行了正反模拟。结果显示当频率扫描的个数为 30, 间隔为非均匀分布时能减小测量误差, 同时选用洛伦兹线型拟合时能进一步减小反演误差。但目前该多波长 DIAL 系统还未能用于大气中 CO₂ 的测量。

2016 年, 美国 NIST 的 Wagner 等人^[154]研究了多频率的地基 IPDA 系统。实验设置如图 1.25 所示, 系统使用了一个外腔半导体激光器 ECDL, 调节范围为 1585~1646nm, 重复频率为 10kHz, 通过放大器将其输出功率放大至 10~13mW 并由光电倍增管接收。ECDL 的频率通过 PHD 锁定技术进行锁定, 稳定度在 ± 3 MHz。该系统被用于 CO₂ 和 CH₄ 的光谱测量, 在 5.5km 的光学路径上, 其路径积分反演误差分别为 $\pm 0.7\%$ 和 $\pm 1.2\%$ 。2018 年, Wagner 等人^[111]针对该系统做了多波长 DIAL 的实验, 实现了距离分辨的 CO₂ 和 H₂O 的测量。频率锁定技术是基于 OPO 的种子注入, 脉冲能量为 7mJ, 重复频率为 100Hz, 距离分辨率为 250m, 时间分辨率为 10min, CO₂ 和 H₂O 的精度分别为 1.5% 和 11%。

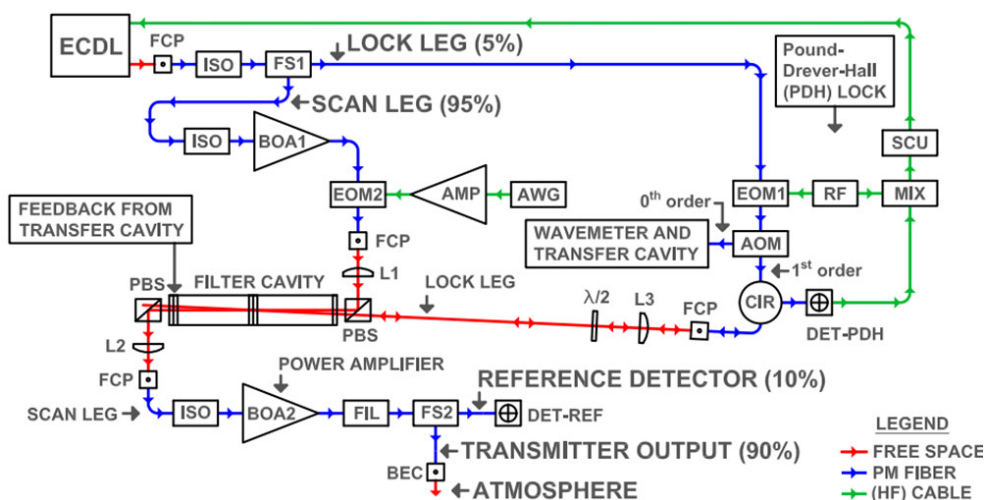


图 1.25 NIST 多波长 DIAL 系统设置

表 1-3 列举了一些具有代表性的 IPDA 和 DIAL 的系统参数^[155], 通过比较可以发现, 表中的多波长 IPDA 通过飞机出射激光至云层、地形等硬目标保证足够的信噪比, 实现了路径积分式的光谱扫描, 但其与双波长的 IPDA 一样均无距离分辨率。DIAL 虽然能得到距离分辨的浓度信息, 但其对激光器的要求高, 通常需要高功率的激光器和增加累计时间来提高信噪比。此外, 表中所列的 IPDA 和 DIAL 所用的探测器要么效率较低, 要么暗计数较高, 在一定程度上阻碍了信噪比的提升。

表 1-3 IPDA 与 DIAL 系统参数对比

参数	IPDA		DIAL	
	$2\text{-}\lambda^{[136]}$	$N\text{-}\lambda^{[148,156]}$	$2\text{-}\lambda^{[129]}$	$N\text{-}\lambda^{[111]}$
波长数量	2	15 or 30	2	10
波长范围 (nm)	on:1572.020 off:1572.120	1572.235~ 1572.440	on:2050.972 off:2050.888	1602.039~ 1602.360
脉冲重频	50Hz	10kHz	30Hz	100Hz
脉冲能量	10mJ	25 μ J	5-10mJ	7mJ
脉冲宽度	20ns	1 μ s	10ns	3ns
频率精度	/	1 MHz	/	20MHz
望远镜直径	60&200mm	200 mm	254mm	258mm
滤波器	/	0.7nm, 0.5dB	/	2nm, FWHM
探测器类型	APD&PIN	HgCdTe APD	InGaAs PIN	InGaAs PMT
量子效率	10%	70%	10%	3% - 8%
每秒暗计数	/	2.2×10^6	/	2.5×10^5
噪声等效功率 (W/Hz ^{1/2})	/	0.5×10^{-15}	3.0×10^{-12}	/
CO ₂ 精度	0.5%	0.2%	10%	1.5%
时间分辨率	1 s	1 s	9 min	10 min
距离分辨率	无	无	150 m	250 m
路径方向	垂直	垂直	45°仰角	18.4°仰角
探测距离	20 km 飞机高度	13 km 飞机高度	1 km	5.5 km

1.3 选题意义和本文组织结构

1.3.1 选题意义

随着大气中温室气体浓度的不断升高，全球气候也在不断升温，亟需对这些温室气体进行精确探测和进一步的控制以实现碳达峰和碳中和。目前主要的探测方法有被动遥感和主动遥感技术。但被动测量受到光源和太阳角度等因素的限制，不能在夜间进行探测，且只能进行单点测量，无法得到距离分辨的信息；而主动遥感主要是基于激光雷达技术，其优势在于具备高时空分辨率和高灵敏度的探测能力。差分吸收激光雷达(DIAL)和路径积分差分吸收雷达(IPDA)

是目前在世界范围内应用最广泛的用于大气遥感的激光雷达，并在地基和机载系统中实现了高灵敏度和高精度的气体测量，同时世界各国也在积极地研制基于卫星平台的气体探测雷达。传统的 DIAL/IPDA 技术是基于双波长差分吸收的原理，因而只能获得气体光谱上两个点的信息，且每套系统只能对应测量一种气体。

为了提高该方法的测量精度，在基于传统 DIAL 技术的基础上，研究人员们开始研究采用多波长 DIAL/IPDA 技术以实现扫描待测气体光谱的测量的方法。但是目前的多波长差分雷达系统多采用路径积分的方式，即只能获得柱积分式的光谱。同样地，由于受到光源调谐范围的限制，一般这种多波长差分雷达只能实现一条吸收谱线的扫描($\sim 40\text{GHz}$)。

本文研究的目的在于结合激光雷达主动探测的优势和光谱学高精度探测的优势，利用光频梳锁定技术和单光子探测技术以实现自由空间内距离分辨的多种气体光谱扫描和分析(多维度气体遥感)。考虑到气体在大气中的时空分布是多变的，这种距离分辨的光谱对于分析这种变化尤为重要。该技术将在大气气体探测、污染气体探测及有害气体泄漏探测等领域有很大的研究和应用价值。

1.3.2 本文组织结构

本文的研究对象是自由空间分布式光谱遥感的激光雷达。

本文的基础理论是激光雷达技术和光谱学理论。

本文的研究目的是实现自由空间内距离分辨的多种气体光谱的扫描和分析。

第一章 指出了大气温室气体，尤其是 CO_2 对全球气候的影响以及探测的必要性、紧迫性。并总结了气体光谱遥感技术的发展和應用，重点介绍了主动探测技术中差分吸收激光雷达的应用。

第二章 从分子吸收光谱理论、激光雷达原理、基于光频梳参考的频率锁定技术以及单光子探测技术出发，阐述了单光子自由空间分布式光谱遥感的原理与设计。

第三章 介绍了自由空间光谱遥感的模拟方法。首先分析了由气体干涉、光学深度及温度敏感性造成的系统理论误差来选择合适的氣體吸收线。并模拟了不同信噪比的雷达回波信号和降噪方法，通过采用不同的反演方法得到浓度的分布并与理想浓度对比，分析了系统用于自由空间分布式光谱遥感的可行性。

第四章 介绍了距离分辨的光谱遥感实验。首先从系统设置出发，介绍了整个实验的搭建过程。同时详细描述了基于频梳锁定的原理和系统设计，以及利用超导单光子探测器的接收模块。此外对距离分辨的 CO_2 和 HDO 的混合光学

深度光谱进行了分析，主要有：不同采样模式的光谱对比、频率锁定和未锁定对应的光谱对比、不同季节的光谱对比。最后由所得的光谱反演得到了 CO_2 和 HDO 的浓度信息，通过与地表的湍流强度以及温度的对比解释了其中的关联性。

第五章 回顾论文主要内容，总结论文的创新点，展望论文的后继研究工作。

第2章 自由空间光谱遥感的原理与设计

2.1 近红外吸收光谱

2.1.1 分子的光谱

通过应用吸收光谱，可以在实验室内进行精确的光谱分析^[157-160]，也可以对于大气中的气体进行遥感监控^[161-163]。吸收光谱法基于分子从基态到激发态的激发，并吸收光子能量。根据光子能量的不同，分子会改变其转动、振动或电子能。由于不同分子的独特性质，其在红外光谱区域的吸收光谱也表现出不同的特征^[164-168]，这种特征有助于对未知分子进行分析并反演得到对应的分子浓度。当出射的频率被分子吸收后会使分子的振动和转动量子数的增加，对应的红外区域范围为 13000cm^{-1} 至 10cm^{-1} （介于 $\lambda=780\text{nm}$ 和 $\lambda=1\text{mm}$ 之间）。该区域可被分为三个子区域（近红外，中红外和远红外）。一般近红外区域范围为 13000cm^{-1} 至 3300cm^{-1} ，中红外区域的范围为 3300cm^{-1} 至 200cm^{-1} ，远红外区域范围为 200cm^{-1} 到 10cm^{-1} 。这些区域对应不同的测量仪器并具有不同的用途，在本文中，我们将仅考虑在近红外光谱区域中具有相应波长 λ 的气相和光子能量中的分子相互作用。

1. 能级

正如量子理论所述，分子的状态由其能量定义，这些能量值称为能级^[169]。仅当分子的能量 $h\nu$ （ h 为普朗克常数）与分子的两个能级之间的能量差相对应时，分子才最有可能吸收频率为 ν 的光子。当发生这种吸收时，分子会达到更高的能级。类似地，当分子返回到较低的能级时，会以相应的能量发射光子，这种现象这称为能级跃迁。

跃迁波数 $\tilde{\nu}_0$ 由初始状态能量 E_i 、最终状态的能量 E_f 以及普朗克-爱因斯坦关系确定：

$$\tilde{\nu}_0 = \frac{1}{hc}(E_f - E_i) \quad (2.1)$$

波数和波长之间的关系为：

$$\lambda = \frac{1}{n\tilde{\nu}} \quad (2.2)$$

其中 n 是介质的折射率。Born-Oppenheimer 近似下的分子能量表示为三个贡献的总和：

$$E = E_{el} + E_{vib} + E_{rot} \quad (2.3)$$

E_{el} 是激发电子构型中存储为势能的电子能， E_{vib} 是振动能（分子中的原子或基

团处于周期性运动), E_{rot} 是转动能 (与分子的翻滚运动相关的动能)。方程右边的每一项都比前一项小, 即 $E_{el} \gg E_{vib} \gg E_{rot}$ 。根据普朗克定律, 与光谱跃迁相关的能隙被写成:

$$h\nu = \Delta E = \Delta E_{el} + \Delta E_{vib} + \Delta E_{rot} \quad (2.4)$$

其中 ΔE_{el} 、 ΔE_{vib} 和 ΔE_{rot} 的不同会导致相对分离的三个光谱区域的吸收跃迁, 可分别表述如下:

(1) 当 $\Delta E_{el} \neq 0$ 时为电子光谱, 其范围从紫外线到可见光波段 ($10^4 \sim 10^5 \text{ cm}^{-1}$);

(2) 当 $\Delta E_{el} = \Delta E_{vib} = 0$ 时为纯转动光谱, 其范围从远红外到微波波段 ($0.5 \sim 10 \text{ cm}^{-1}$);

(3) $\Delta E_{el} = 0$ 时为振动-旋转光谱, 其范围从近红外到远红外波段 ($10 \sim 10^4 \text{ cm}^{-1}$)。

对于近红外区域的振转贡献, 分别用量子数 J 和 V 表示转动和振动能级。

2. 转动光谱

与液相和固体热力学相相反, 在气相中, 由于没有分子间作用力, 分子可以自由旋转。如果考虑双原子分子, 转动能级 E_{rot} 取决于转动量子数 J 和取决于分子惯性矩的常数 B :

$$E_{rot}(J) = h \cdot c \cdot B \cdot J \cdot (J+1) \quad (2.5)$$

其中 c 为光速。此外, 两个转动能级之间的某些跃迁是不可能的, 与旋转跃迁相关的量子理论隐含了选择规则。这些选择规则取决于分子的偶极动量。当偶极动量平行于分子轴, 那么选择规则由 $\Delta J = \pm 1$ 给出; 如果垂直, 那么 $\Delta J = 0, \pm 1$ 。排除拉曼效应, 引起吸收光谱的 ΔJ 值有以下几种: 当 $\Delta J = -1$ 时为 P-分支; 当 $\Delta J = 0$ 时为 Q-分支 (仅发生在不对称的分子中); 当 $\Delta J = +1$ 时为 R-分支。

3. 振动光谱

分子会在周期性运动时发生振动, 振动的频率记为 ν_{vib} , 其中简单的分子的振动可看做是简谐振子, 振动能级 E_{vib} 可近似表示为 ν_{vib} 和量子数 V 的函数:

$$E_{vib}(V) = h \cdot \nu_{vib} \cdot \left(V + \frac{1}{2} \right), \quad \nu = 0, 1, 2, \dots \quad (2.6)$$

当考虑多原子分子时, 可能会存在多种不同的振动模式。当原子数为 N_a 时, 多原子线性分子的振动模式共有 $3N_a - 5$ 种, 例如 CO_2 具有 4 种振

动模式（对称伸缩、面内变形、面外变形、反对称伸缩运动），其中面内变形和面外变形均可归类为变形运动，因此 CO_2 的振动模式可表示为 ν_1 , ν_2 , ν_3 ；而多原子非线性分子具有 $3N_a-6$ 种可能的振动模式。例如， H_2O 有三种振动模式， CH_4 具有九种振动模式。然而，由于其球形对称性，这些模式中只有四个是独立的，如图 2.1 所示。

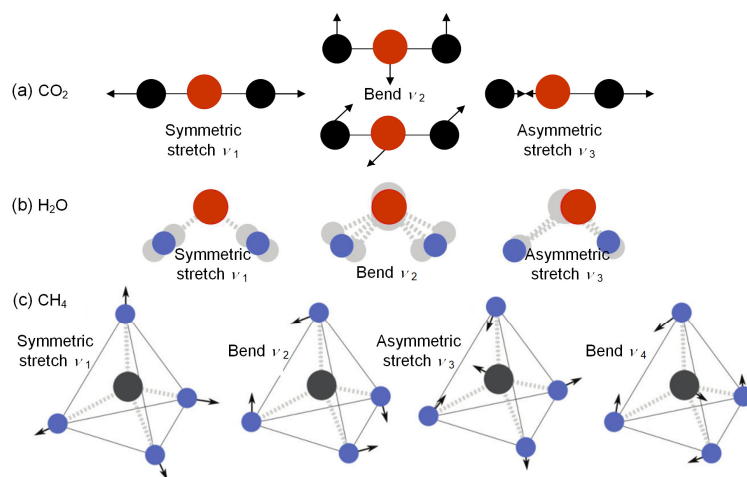


图 2.1 (a) CO_2 ；(b) H_2O ；(c) CH_4 的振动模式

4. 振转光谱

振动和旋转跃迁可以同时发生，并且可对应于量子数为 (V'', J'') 和振转量子数为 (V', J') 的能级之间的跃迁，这种跃迁被称为振转跃迁。在基态 (V'', J'') 和激发态 (V', J') 中当 $\Delta J = J' - J'' = 0$ 时的振动跃迁的所得光谱称为 Q-分支；当 $\Delta J = +1$ 时对应为光谱的 R-分支；当 $\Delta J = -1$ 时则对应为 Q-分支。跃迁能级如图 2.2 所示。

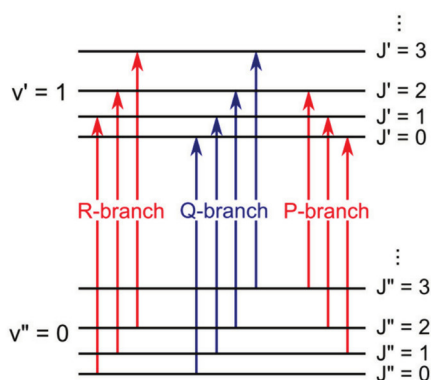


图 2.2 不同分支的跃迁能级

对于 CO_2 分子而言，他的 ν_1 振动红外不活跃，因而不产生吸收； ν_3 振动是一个平行带，即偶极矩平行于对称轴振荡， $\Delta J = 0$ 的跃迁是被禁止的，因而没有 Q-分支。 ν_2 振动是较特别的带，同时具有 P、Q 和 R 分支。尽管 ν_3 是最强的振

动带，但 ν_2 带由于其振动频率与普朗克发射函数相匹配因而是光谱分析有效的吸收带。此外 1.6-2.06 μm 区域常用于遥感测量^[45]。

2.1.2 光谱的线强度和展宽

鉴于每种分子均具有特有的吸收光谱，因而每条谱线均对应不同的跃迁波数 $\tilde{\nu}_0$ 和线强度 $S(T)$ ，且具有有限的谱线宽度^[170-178]。谱线的宽度可通过线型函数 g 表示，其中 g 依赖于温度 T 和压强 P 。单条吸收线的吸收截面定义为温度相关的线强度 $S(T)$ 和线型函数 $g(\tilde{\nu})$ 的乘积，并表示为^[179]：

$$\sigma(\tilde{\nu}, T, P) = S(T) \cdot g(\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_0, T, P) \quad (2.7)$$

1. 线强度

每个振转跃迁都具有吸光概率的特征并可对应为线强度 ($\text{cm}^{-1}/\text{molecule} \cdot \text{cm}^{-2}$)，该概率与温度有关，在热力学平衡时可表示为^[179]：

$$S(T, \tilde{\nu}_0) = S_0 \left(\frac{T_0}{T} \right)^{3/2} \left\{ \frac{1 - \exp[hc\tilde{\nu}_0/k_B T]}{1 - \exp[hc\tilde{\nu}_0/k_B T_0]} \right\} \times \exp \left[\frac{E'' hc}{k_B} \left(\frac{1}{T_0} - \frac{1}{T} \right) \right] \quad (2.8)$$

其中 S_0 为 $T_0=296\text{K}$ 时对应的跃迁强度，可从 HITRAN 中获得， h 和 k_B 分别为普朗克和玻尔兹曼常数， c 为真空中的光速， E'' 为低态能量，跃迁波数 $\tilde{\nu}_0$ 由两种能态之间的能量差决定。通常 E'' 和 $\tilde{\nu}_0$ 的单位均为 cm^{-1} 。

2. 自然展宽

根据 Heisenberg 不确定性原理 $\Delta t \cdot \Delta E \geq \hbar$ ，由于有限的寿命 Δt ，原子或离子激发态的能级永远无法精确确定。振转跃迁的自然展宽可将激发态的寿命与其能量的不确定性联系起来，因而波数的差异可通过普朗克-爱因斯坦关系表示为：

$$\omega_N = \frac{1}{2\pi c} \left(\frac{1}{\Delta t_i} + \frac{1}{\Delta t_f} \right) \quad (2.9)$$

其中 Δt_i 和 Δt_f 分别为基态和激发态的寿命。较短的寿命 Δt 将导致较大的能量不确定性 ΔE ，从而使谱线加宽。这种自然展宽导致的线型 g_N 可由洛伦兹函数表示：

$$g_N(\tilde{\nu}) = \frac{2A}{\pi} \frac{\omega_N}{\omega_N^2 + 4(\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_0)^2} \quad (2.10)$$

上式中 $A = H\omega_L\pi/2$ 为谱线积分面积， H 为谱线峰中心的高度， ω_N 为半高全宽 (FWHM)。在红外光谱区域，分子振动跃迁发生的寿命很长

($\sim 10^{-3}\text{s}$), 因而其谱线宽度很窄, 自然展宽在 100Hz 以内。当实际测量时, 气体吸收截面比预期的自然展宽要更宽, 这是由于除了自然谱线加宽之外, 吸收线通过多普勒加宽和碰撞加宽进一步加宽。这些由气体温度和压力导致的光谱展宽形式详述如下。

3. 多普勒展宽

多普勒展宽是由于分子的热运动导致的。由于电子基态的转动和振动态分布随温度变化, 因而吸收线强度随气体温度变化。根据麦克斯韦-玻尔兹曼统计分布, 温度 T 和两个能级 E_2-E_1 之间的差定义了粒子数的比值 N_2/N_1 , 即

$$\frac{N_2}{N_1} = \exp\left(-\frac{E_2 - E_1}{k_B \cdot T}\right) \quad (2.11)$$

当考虑到气相分子系综时, 每个分子的速度分布都会引入多普勒效应, 气体温度越高, 其速度分布越宽。假设每种分子的运动方向随机, 那么多普勒频移就可被看成是一种展宽效应。多普勒展宽适用于对高层大气或低压状态下的分子线型进行描述, 该线型可用高斯函数 g_D 表示为

$$g_D(\tilde{\nu}) = \frac{2A}{\omega_D} \sqrt{\frac{\ln 2}{\pi}} \cdot \exp\left[-4 \ln 2 \left(\frac{\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_0}{\omega_D}\right)^2\right] \quad (2.12)$$

式中, ω_D 为 FWHM, 谱线积分面积 $A = H\omega_D\pi^{1/2}/(8\ln 2)^{1/2}$, ω_D 可表示为

$$\omega_D = \tilde{\nu}_0 \sqrt{\frac{8k_B T \ln 2}{mc^2}} \approx 7.16 \times 10^{-7} \sqrt{\frac{T}{M}} \tilde{\nu}_0 \quad (2.13)$$

其中 m 为分子质量, M 为分子量。

4. 碰撞展宽

当压力增加时, 分子之间的碰撞会更加频繁。碰撞过程中转移的动能导致激发态的电子下降到较低的能级。因此, 激发态的特征寿命变短, 从而导致谱线加宽。这种由大气压力和气体分压导致的展宽的线型可由洛伦兹函数描述为

$$g_c(\tilde{\nu}) = \frac{2A}{\pi} \frac{\omega_c}{\omega_c^2 + 4(\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_0)^2} \quad (2.14)$$

式中, ω_c 为 FWHM, 在气体混合物的总压强为 P_a 和每种气体的分压为 P_i 的情况下, 总展宽表现为每种气体分子之间碰撞产生的自展宽贡献和与其它分子碰撞产生的空气展宽贡献之和, 即

$$\omega_c = 2 \sum_i P_i \gamma_i(T_0) \left(\frac{T_0}{T} \right)^{n_i} \quad (2.15)$$

其中 $\gamma_i(T_0)$ 为 $P_0=1\text{atm}$, $T_0=296\text{K}$ 时每种气体的碰撞展宽系数, n_i 为温度指数。在气体压力较大的情况下, 一般可考虑用洛伦兹线型来分析光谱。

5. 综合展宽

如上所述, 当气体压力较低时, 多普勒展宽占主导地位, 当 $\omega_D > 10\omega_c$ 时可用高斯函数来描述光谱; 当气体压力较高时, 碰撞展宽占主导地位, 当 $\omega_c > 5\omega_D$ 时可用洛伦兹函数来描述光谱; 对于中间情况, 则考虑用 Voigt 函数来描述, 如图 2.3 所示。该函数为高斯函数和洛伦兹函数的卷积, 与分子的热运动和碰撞均有关, 可表示为

$$g_V = A \frac{2\sqrt{\ln 2} y}{\omega_D \pi^{3/2}} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{-t^2}}{y^2 + (x-t)^2} dt \quad (2.16)$$

其中 $x = (4 \ln 2)^{1/2} (\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_0) / \omega_D$, $y = (\ln 2)^{1/2} \omega_c / \omega_D$, 该线型的 FWHM 可表示为

$$\omega_V = 0.5346 \omega_c + \sqrt{0.2166 \omega_c^2 + \omega_D^2} \quad (2.17)$$

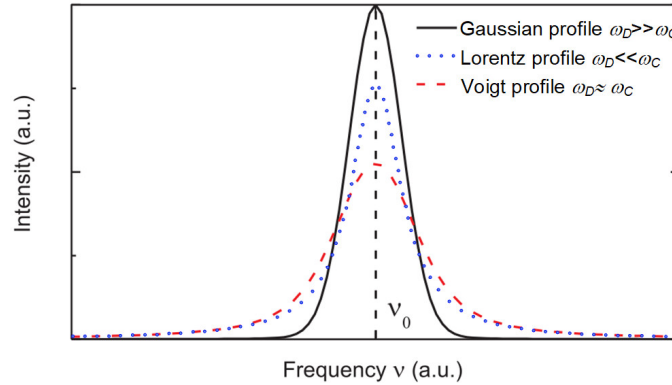


图 2.3 Gaussian、Lorentz 和 Voigt 的吸收线型对比

2.2 激光雷达用于光谱分析的原理

2.2.1 激光与大气作用机制

当激光雷达系统发射的光脉冲在大气中传播时, 一部分光被向后散射并传播回激光雷达系统。在只考虑单次散射的情况下, 出射光脉冲在经过距离 R 后和该处后向散射的光脉冲的延迟为 $\tau=2R/c$ 。通过该表达式可将返回时间与散射体的距离信息联系起来, 同时最小可分辨的距离为 $\Delta R \geq c \cdot \Delta \tau / 2$, 即距离分辨率, 其主要由光脉冲的持续时间决定。除此之外, 连续的光脉冲之间的延迟时间必须大于无法检测到返回信号的距离 $2/c$ 倍, 所对应的距即为最大探测距离。

激光雷达回波信号的廓线 Q 依赖于大气特性，其强度会因空气分子以及气溶胶和云粒子的散射和吸收而衰减。在红外波段，大气散射中的非弹性贡献很小，因而主要考虑瑞利散射^[180-182]和米散射^[183-185]。后向散射强度可用 λ^{-b} 表示，对于瑞利散射 $b=4$ ，适用于纯分子大气的情况，而对于米散射 $1.2 < b < 2.5$ ，适用于由气溶胶主导的散射。在紫外波段($\lambda \approx 300\text{nm}$)，后向散射即包含瑞利散射，也包含米散射。同样地，对于红外区域($\lambda > 1\mu\text{m}$)瑞利散射为 λ^{-4} 几乎可忽略不计，因而只考虑米散射情况，后向散射系数可表示为 β 。另外激光雷达接收的信号还与大气的消光系数有关，其基于朗伯-比尔定律描述了当激光脉冲通过距离 R 附近的 ΔR 的大气薄层时光强 I 被衰减的分数 dI/I ，消光系数的单位为 m^{-1} 。由于每种气体分子均有特定的吸收光谱，其对信号光的吸收包含在消光系数项中，因而通过出射对应波长的光脉冲就可从激光雷达的回波信号中分析得到待测分子的信息。

2.2.2 激光雷达方程

激光雷达方程可表示为^[87]

$$Q(\nu, R_j) = \frac{E}{h\nu} \eta_0 \eta_q \frac{A_t}{R_j^2} O(R_j) \frac{c\tau}{2} \beta(\nu, R_j) T_r^2(\nu, R_j) \quad (2.18)$$

其中 E 为出射的单脉冲能量， η_0 为传输信号的光学效率， η_q 为量子效率， h 为普朗克常数， A_t 为望远镜面积， R_j 为距离， j 表示距离的指引， ν 为出射频率， $O(R_j)$ 为几何重叠因子， β 为米散射后向散射系数。 T_r 为大气传输的透过率，可表示为消光系数的函数，即

$$T_r(\nu, R_j) = \exp \left\{ - \int_0^{R_j} [\alpha_a(\nu, R_j) + \alpha_m(\nu, R_j)] dr \right\} \quad (2.19)$$

式中 α_a 为气溶胶的散射和吸收引起的消光系数， $\alpha_m = \alpha_g + \alpha_s$ 为分子的消光系数， α_g 为待测气体的吸收系数， α_s 为除了待测气体吸收外其他的分子消光系数。

当出射一系列频率为 ν_i ($i=1,2,3,\dots,m$) 的光脉冲对待测气体吸收线进行扫描时，对应的雷达回波信号为 $Q_i(\nu_i, R_j)$ ；同时在吸收线的边缘取一个几乎不受气体吸收影响的频率 ν_{off} 作为参考光脉冲，对应的雷达回波信号为 $Q_{\text{off}}(\nu_{\text{off}}, R_j)$ 。 ν_i 和 ν_{off} 的选择需要满足一定的标准（见第3章3.1），使得所有频率对应的 α_a ， α_s 和 β 均相等，那么频率在回波信号上的差别只体现在待测气体吸收系数 α_g 的不同。将公式(2.19)中的消光系数对距离的积分离散化为 R_1 到 R_n ，距离分辨率 $\Delta R = R_j - R_{j-1}$ 的 j 个距离点的平均消光系数 $\bar{\alpha}_g$ 的求和。通过将扫描的频率对应的一系列回波信号 $Q_i(\nu_i, R_j)$ 分别与参考频率对应的 $Q_{\text{off}}(\nu_{\text{off}}, R_j)$ 相除且取对数，那么对于距离 R_j 处有

$$\ln \frac{Q_i(\nu_i, R_j)}{Q_{\text{off}}(\nu_{\text{off}}, R_j)} = -2 \cdot \Delta R \left[\sum_{j=1}^n \bar{\alpha}_g(\nu_i, R_j) - \sum_{j=1}^n \bar{\alpha}_g(\nu_{\text{off}}, R_j) \right] \quad (2.20)$$

$$DOD(\nu_i, R_j) = \Delta R \left[\sum_{j=1}^n \bar{\alpha}_g(\nu_i, R_j) - \sum_{j=1}^n \bar{\alpha}_g(\nu_{\text{off}}, R_j) \right] \quad (2.21)$$

其中 $DOD(\nu_i, R_j)$ 为距离 R_j 处扫描频率与参考频率的差分光学深度，所以由 R_1 到 R_j 的光学深度总和减去由 R_1 到 R_{j-1} 的光学深度总和可得到距离 R_j 处的距离分辨率为 ΔR 的差分光学深度，即

$$\Delta DOD(\nu_i, R_j) = -\frac{1}{2} \ln \frac{Q_i(\nu_i, R_j) \cdot Q_{\text{off}}(\nu_{\text{off}}, R_j)}{Q_{\text{off}}(\nu_{\text{off}}, R_j) \cdot Q_i(\nu_i, R_{j-1})} \quad (2.22)$$

当 i 从 $1 \sim n$ 取值时，上式就对应了一系列与频率 ν_i 有关的距离分辨的 ΔDOD ，在频域上表现为光学深度的光谱，并可由雷达回波信号反演得到。

2.2.3 浓度反演方法

在得到了待测气体的光谱信息之后，接下来需要通过光谱对气体的浓度进行反演，主要的反演方法有两种。

1. 查表法

查表法是目前激光雷达用于路径积分光谱分析的常用方法^[145,148]。光学深度与气体吸收截面的关系可表示为

$$\Delta DOD = \Delta R \cdot N \left[\sigma_i(\nu_i, R_j) - \sigma_{\text{off}}(\nu_{\text{off}}, R_j) \right] \quad (2.23)$$

式中的吸收截面 σ 与温度、压强均有关，单位为 m^2 ， N 为待测气体的数密度，表示单位体积内粒子的数量单位为 m^{-3} 。气体浓度的含义为该气体在混合气体中的比例，气体的分压对应了该气体的真实浓度 χ ，单位为 ppm。根据理想气体方程，在单位体积内有

$$\chi = \frac{NR \cdot T}{NA \cdot P} \cdot 10^6 \quad (2.24)$$

其中 $R=8.314\text{Pa} \cdot \text{m}^3/(\text{mol} \cdot \text{K})$ 为气体常数， $NA=6.022 \times 10^{23}$ 为阿伏伽德罗常数， T 为测量温度， P_a 为总的气体压力。结合式(2.23)和式(2.24)，可将浓度与测量的光学深度之间的关系表示为

$$\chi = \frac{\Delta DOD \cdot R \cdot T \cdot 10^6}{\Delta R (\sigma_i - \sigma_{\text{off}}) NA \cdot P_a} \quad (2.25)$$

查表法的具体操作过程如下：

(1) 首先预估计一个初始的浓度值，并根据原位仪器测量的温度及压强数据计算得到一条理想状态下的吸收截面曲线；

- (2) 根据式(2.23)计算得到该浓度下的理想的光学深度曲线;
- (3) 将理想光学深度与测量得到的 ΔDOD 比较并计算二者的残差;
- (4) 不断调整初始浓度的值,使(3)中的残差达到最小值;
- (5) 此时对应的初始浓度即为所求的气体的浓度。

2. 面积法

鉴于大气中的碰撞展宽和多普勒展宽同时存在,首先用 Voigt 函数对测量的光谱拟合,对于同时存在多种气体吸收的情况下,可表示为 $\Delta DOD' = b_0 + g_{v1} + g_{v2} + \dots$, b_0 为拟合的光谱基线。 $\Delta DOD'$ 为混合气体光谱拟合后的 Voigt 线型,通过拟合不同待测气体的光学深度线型 g_{v1} , g_{v2} 从混合光谱中被分离,以便减弱气体间的相互影响并单独反演出各自的浓度。同时,经过拟合后可得到不同气体光学深度光谱对应的面积 A 。由朗伯-比尔定律可知, A 还可以表示为

$$A = \int_{line} \Delta DOD'(\nu) d\nu = S(T) N \Delta R \quad (2.26)$$

其中 T 为实验温度, E'' 为分子的低态能量。令 P_a 为气体总压力,那么待测气体的浓度与拟合所得的面积之间的关系为

$$\chi = A \frac{k_B T}{S(T) P_a} \cdot 10^6 \quad (2.27)$$

2.3 基于频率锁定的光谱扫描技术

利用激光雷达方法对大气中的光谱进行扫描时,对出射激光的频率的准确性和稳定性有一定的要求,因而需要对激光器出射脉冲的每个光频率均进行控制和锁定。一条气体吸收线可分为三个区域,即中心位置、两条边带及两翼,如下图所示。其中中心位置和两翼的斜率较小,两条边带的斜率较大,因而对边带的频率精度要求更高。对于压力展宽的吸收线,边带的频率锁定要求为 $<2\text{MHz}$,中心和两翼为 $\sim 30\text{MHz}$ 。

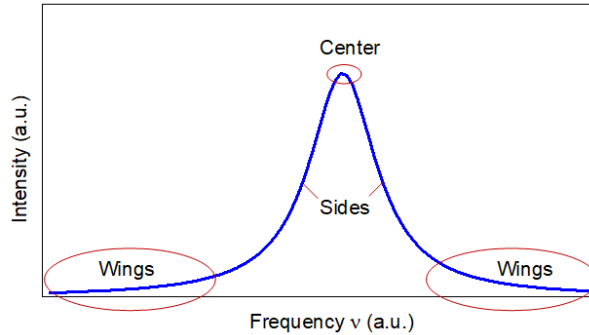


图 2.4 气体吸收光谱的区域划分

2.3.1 气体腔锁定

选择分子或原子的跃迁作为波长参考是有效的限制频率漂移的方法。其原理是通过选择充满待测气体的吸收腔，将激光器的频率锁定在吸收线的中心，基于气体腔的频率锁定是目前激光雷达技术普遍采用的方法。

2008年，德国DLR的Amediek等人^[112]采用Nd:YAG泵浦的OPO种子注入系统作为发射器来进行CO₂的探测，该OPO系统可看做是可调频率转换器来产生所需的波长，种子激光器通入36m的气体腔进行频率稳定，中心频率的稳定性为5MHz。此外美国兰利研究中心的Dobbs等人^[186]将一个参考激光器锁定到气体腔，并将种子激光器与该参考激光器拍频来实现其他频率的监测锁定用于CO₂探测，锁定后的频率精度为25MHz。同年，Koch等人^[187]同样将参考激光器锁定到气体腔，首先通过选择或倾斜腔内标准具进行粗调，当波长接近气体吸收线时，再通过控制压电陶瓷(PZT)进行细调。其他的出射波长通过设置所需的偏移量拍频锁定至参考激光器，由于控制回路仅用来维持频率差，无法确定频率偏移是在中心线的哪一侧，因而还需要波长计辅助测量，该锁定系统的中心频率精度为1.9MHz。

2011年，美国NASA戈达德的Numata等人^[187]基于频率调制技术，其锁定原理如图2.5所示，通过选择充满待测气体的吸收腔，将激光器的频率锁定在吸收线的中心。与常用的Pound-Drever-Hall(PDH)技术类似，这种频率调制技术使用外部相位调制和相位敏感检测来生成鉴频误差信号。

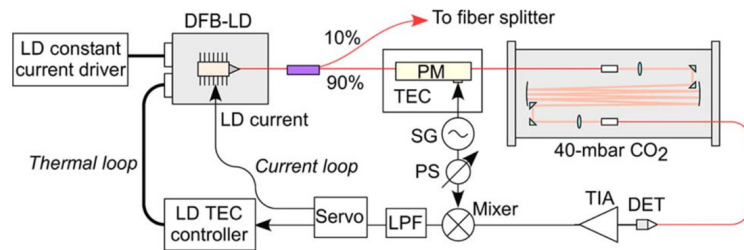


图 2.5 NASA 戈达德的气体腔锁定示意图

2015年，武汉大学龚威等人^[188]首先用波长计粗略估计波长位置进行粗校准（如图2.6所示），然后利用16m的CO₂吸收腔寻找峰值位置，同时用一个真空的气体腔作为参考，通过对比两个腔的信号得到消除误差后的光学深度信息，从而确定中心波长的精确位置来进行细校准，锁定的精度为30MHz。

然而这种气体腔锁定方法只能对待测气体的中心频率进行锁定。对于其他的出射频率则需要通过拍频等方式偏移锁定至该中心或者不锁定，这些频率的精度均受中心频率稳定性的限制。此外，所需的气

体腔一般需要十几至几十米，不利于系统的小型化设计。当待测气体为污染或危险气体时，这种气体腔锁定也存在一定的限制。

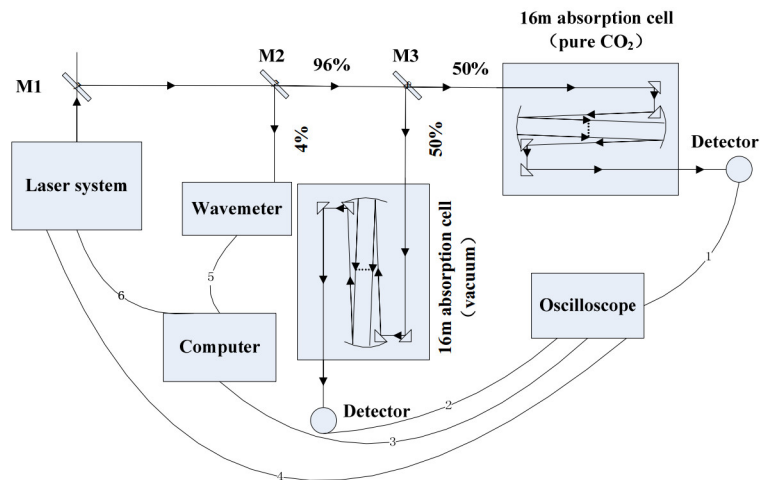


图 2.6 武汉大学气体腔锁定示意图

2.3.2 飞秒光梳锁定

1. 飞秒光频梳

基于锁模激光器的光学频率梳能够在时域上产生一系列飞秒的超短脉冲（图 2.7(a)），同时在频域上表现为梳齿状的等间隔频率分量，因此它也被称为频率梳（图 2.7(b)），其中梳状线的间距即为脉冲重复频率 ν_r 。当载波 ν_c 以相速度移动时，对应的包络会以群速度移动，每次往返图 2.7(a) 中蓝色的载波相对于红色的包络就偏移了 $\Delta\phi$ 的相位，这种连续的相移就导致了偏频即载波包络偏移频率的存在，可表示为 $\nu_{ceo} = \Delta\phi\nu_r/2\pi$ 。

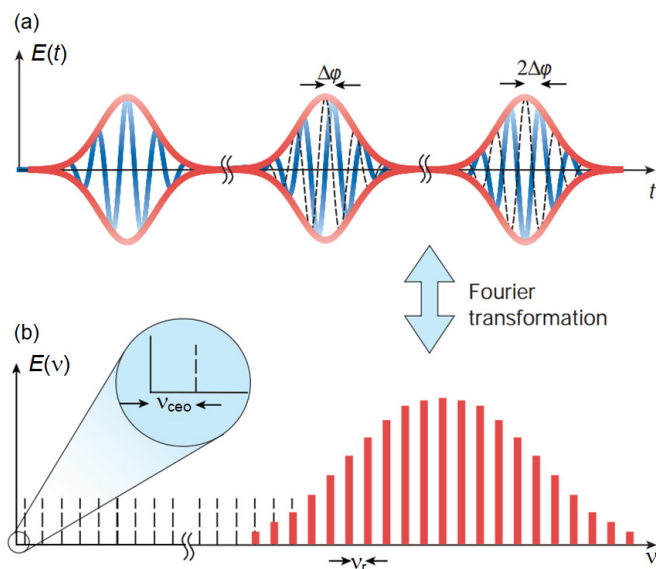


图 2.7 飞秒脉冲在(a)时域和(b)频域的示意图

由于 ν_c 不一定为 ν_r 的整数倍，因而频梳模式相对于精确的谐波产生了一定的频移，可表示为 $\nu_n = n\nu_r + \nu_{ceo}$ ，其中 n 为 $10^5 \sim 10^6$ 的整数，表示第 n 根梳齿模式，因而确定了 ν_r 和 ν_{ceo} 就可以确定光梳中每一个梳齿的频率。利用飞秒光梳可以对激光器的频率进行精确的锁定，在精密光谱测量等领域有着重要的应用。

2. 相位锁定

2002 年，科罗拉多大学的 Jost 等人^[189]将连续可调谐激光器与飞秒频梳进行拍频（如图 2.8 所示），旨在目标光谱的频域范围内得到连续的、精确的频率调谐和任意的单频光输出，并实现可控制的调谐步长，用于精确的原子和分子光谱分析。首先由波长计（ $<100\text{MHz}$ 精度）来粗略估计波长的位置，由于该位置可对应两个相邻的频梳线，因而用滤波器只保留 300~400MHz 的拍频信号，再用反馈回路对拍频信号进行锁定，并用自适应软件控制可调谐激光器的频率，同时用单独的光腔的透过率信号对波长位置进行验证。

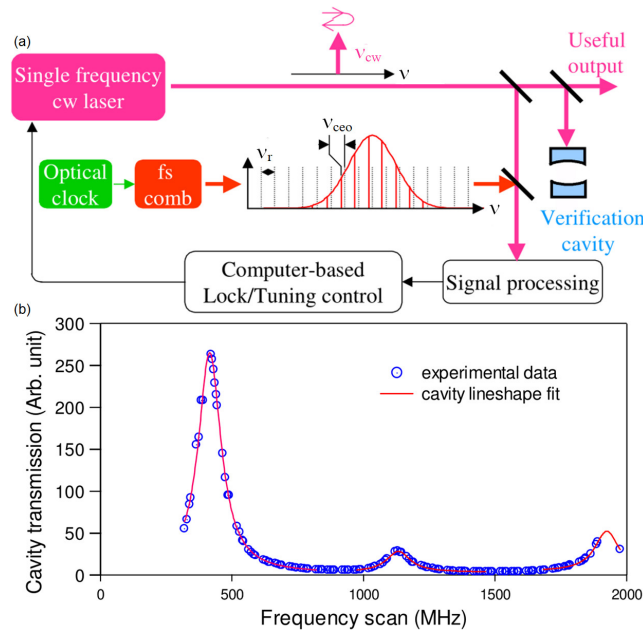


图 2.8 Jost 等人的频梳锁定示意图。(a)锁定原理；(b)在相位稳定光学梳的引导下，以精确的步长连续调谐单频激光器，独立的光学腔提供频率标记以供参考

由于所用的飞秒光梳重频为 100MHz，因而在拍频信号为 350MHz 的位置时会出现重叠并相向而行，导致在 345-355MHz 范围内的拍频信号很难处理。当拍频信号接近该位置（“死区”）时需要暂时冻结反馈控制系统，调节激光器波长使其跳过该区域，随后再启动反馈回路。

“死区”的存在使得拍频信号在位于 $1/2\nu_r$ 的整数倍位置处相位锁定需要短暂

关闭，导致调谐过程不能连续，且锁定关闭时容易跳过多条频梳线。2005 年，日本国家先进工业科学技术研究所的 Schibli 等人^[190]针对这种不足提出了改进。如图 2.9 所示，通过用声光调制器(AOM)对可调激光器产生移频 ν_{RF} ，并同时与飞秒频梳进行拍频，产生两个拍频频率。当 $\nu_{RF} \approx \nu_r \times (2n+1)/4$ 时，那么两个拍频信号中必有一个是位于 $1/8\nu_r$ 和 $3/8\nu_r$ 之间的，这样就可以避免由于“死区”造成的频率不能锁定的情况，从而实现任意位置的连续调谐。

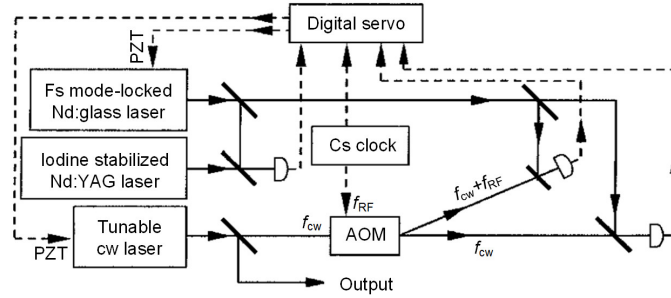


图 2.9 Schibli 等人经移频后的频梳锁定示意图

2004 年，美国 NIST 的 Washburn 等人^[191]通过改变频梳的重复频率（ $\sim 800\text{kHz}$ ）对激光器进行精确调谐。如图 2.10 所示，首先对偏频 ν_{ceo} 进行相位锁定，并将重频 ν_r 变到 $\nu_r + \delta\nu_r$ 。对应地，第 n 根梳齿移动了 $n\delta\nu_r$ ，因而频梳就像手风琴状展开，高频分量的绝对频率变化更大。若此时可调激光器的频率仍锁定在第 n 根频梳上，那么其对应的光频也移动了 $n\delta\nu_r$ 。其中重复频率的可调范围为 $49.3\text{--}50.1\text{MHz}$ (800kHz)，对应的可调激光器的调谐范围为 3THz (25nm)。

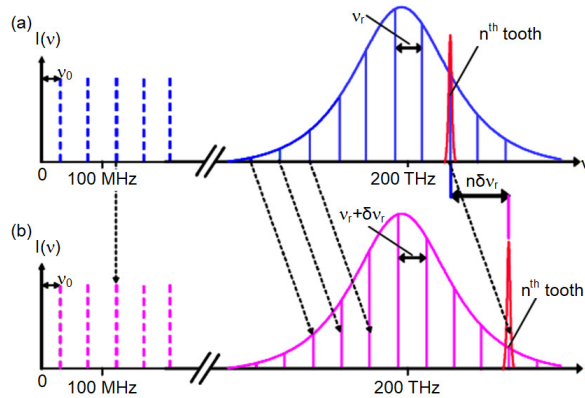


图 2.10 NIST 基于改变重频的频梳锁定。(a)可调激光器的频率锁定在初始频梳的第 n 根梳齿上；(b)将光频梳的重复频率改变 $\delta\nu_r$ ，对应的第 n 根梳齿对应的频率改变了 $n\delta\nu_r$

3. 注入锁定

注入锁定的单频激光器可作为单频滤波器和高增益放大器对光频梳进行放大，并与频梳的稳定性和窄线宽特性保持一致。该方法与上述相位锁定方法一

样均能实现光谱测量。首先将模式锁定的飞秒激光器的输出经过衍射光栅分为 0 级和 1 级衍射光，其中 1 级光经过粗滤波后再经过扫描法布里玻罗干涉仪进行细滤波，只允许一个频梳模式通过。单模滤波后该频梳模式作为种子注入锁定至可调激光器，并进行背景抑制和光功率放大。同时 0 级衍射与注入锁定并频移后的频率进行拍频，用来监测其光束质量^[192]。

如图 2.11 所示，韩国标准与科学研究所的 Park 等人^[193]将两个 DBR 激光器均注入锁定到同一个飞秒频梳上，并将其中一个 DBR 激光器经 AOM 频移 80MHz 与另一个 DBR 拍频，观察稳定性。Cs（铯）蒸汽气体饱和吸收光谱用来分析注入锁定及可调谐性能。该注入锁定的激光器的光学频率可通过改变重频来控制，该方法可对光频梳的任一频率进行选择 and 放大。但由于频梳重频的调节范围受压电陶瓷的限制，因而可调激光器的扫描范围被限制在 1GHz 左右。

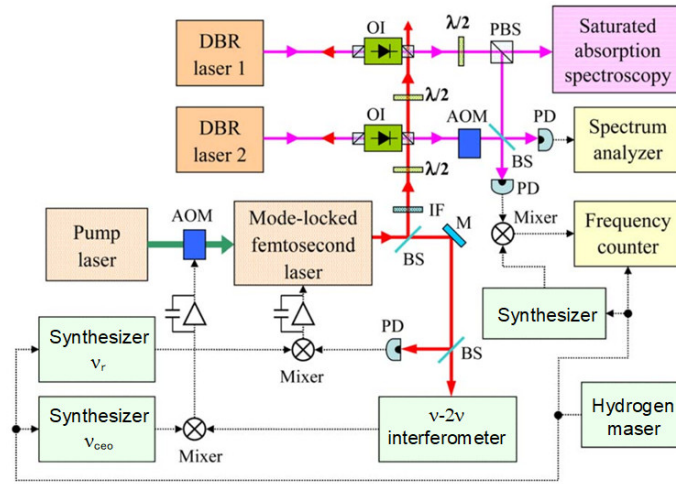


图 2.11 Park 等人的基于频梳的注入锁定系统

2.3.3 基于光梳参考的频率锁定设计

由于飞秒光梳的重复频率 ν_r 和偏移频率 ν_{ceo} 均在射频范围，因而光频梳可在光频率和微波频率建立连接。通过将 ν_r 和 ν_{ceo} 均相位锁定在微波时钟上，光频梳即可被看做是精确的频率标尺，它可以通过使用如上所述的锁相环来稳定其他激光器的相对相位。目前在激光雷达领域几乎没有使用到光频梳锁定技术，在本文中，通过结合光频梳的宽光谱范围和高频率稳定性，可实现对调节范围为 1530~1620nm 的外腔半导体激光器(ECDL)进行精确频率调谐和锁定，为实现宽带多气体的光谱扫描提供稳定的光学频率。在扫描待测气体的光谱时，首先将 ECDL 的频率调节至气体吸收线上，如图 2.12 所示，同时将 ECDL 与飞秒频梳进行拍频，拍频信号为 ν_b ，那么 ECDL 的频率可用飞秒频率和拍频信号表示为 $\nu_e = \nu_n + \nu_b$ 。由于 ν_n 是十分稳定的，因而通过反馈回路对 ν_e 进行锁定，就可以精

确控制 ν_e 。

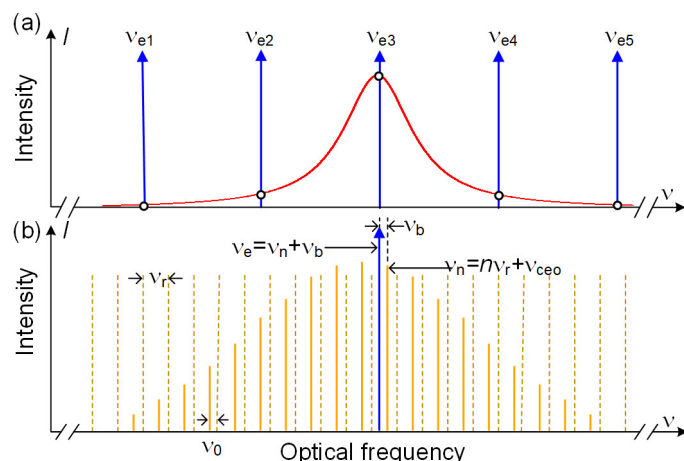


图 2.12 飞秒频梳与可调激光器拍频示意图。(a)可调谐激光器频率锁定至(b)飞秒光频梳的第 n 根梳齿

ECDL 和飞秒频梳的拍频由计数器进行监测，ECDL 和计数器均接入计算机。然后通过计算机程序将 ν_b 与设定的锁定值进行比较，并生成反馈信号用于控制 ECDL 内部的 PZT 对其频率进行微调，使之锁定在设定的值上。待该处的 ν_e 稳定的锁定一段时间后，计算机再次控制 PZT 使 ν_e 调节到吸收线上的下个频率点，再重复相同的锁定过程。由于在锁定过程中所以频率点的相对位置是由频梳精确控制的，因而就根据拟合后的中心频率得到所有扫描点的准确频率值。基于此，使用宽范围的 ECDL 就可实现精确的待测气体光谱扫描。

2.4 单光子探测技术

2.4.1 单光子探测的介绍

光子是光能量的最小单位，单光子探测器(SPD)以其超低噪声的优势可以实现单光子的测量，进而对微弱的信号进行提取。单光子探测可应用于光纤通信、量子信息科学、量子加密、激光雷达等诸多领域。由于模拟信号输出与光子数量之间的比例常数是随机变化的，基于单光子的探测器消除了这种增益噪声，因而其“过剩噪声因子”是一致的，并且对于固定数量的光子，可实现的信噪比通常高于不进行光子计数的情况。此外，单光子探测可以提高时间分辨率。在传统的探测方式中，多个到达的光子会产生重叠的脉冲响应，从而将时间分辨率限制在探测器的脉冲衰减时间附近。然而，如果已知检测到单个光子，则可以评估脉冲响应的中心，以精确确定光子的到达时间。对于理想的单光子探测器而言，应满足以下指标，即表征光电转换能力的量子效率接近 100%；杂散光（非信号光）和电噪声引起的暗计数接近 0Hz；信号达到时间与

理想达到时间一致（无时间抖动）；探测某个光子和准备探测下一个光子的恢复时间（死时间）趋于 0；产生的非光子探测的后脉冲概率为 0。

目前半导体雪崩光电二极管(APD)已普遍用于量子光学实验，但其需要使用如波长转换和精确选通等操作以避免产生后脉冲^[194]。而超导纳米线单光子探测器(SNSPD)^[195-198]由于几乎不受后脉冲的影响，相比而言在 1.5 μm 波段具有更大的探测优势，如高单光子灵敏度、高时间分辨率、高计数率(~GHz)和低暗计数率等^[199-201]。SNSPD 自从 2001 年首次实现以来^[202]，已经有了长足的发展，目前已广泛应用于多种探测领域。

2.4.2 基于单光子探测的信噪比提升

在激光雷达领域，探测到信号的信噪比 SNR 可表示为

$$SNR(R) \propto EA_t \frac{\eta_q}{h\nu} \frac{1}{N_D} \frac{1}{R^2} \quad (2.28)$$

传统的提高探测信噪比的方法在于提高激光能量 E 和望远镜面积 A_t 。例如德国 DLR 的 Amediek 等人^[136]使用量子效率为 10% 的 APD 和 PIN 探测器进行 CO₂ 探测，所需的出射激光能量为 10mJ，在 20km 的飞行高度得到了柱积分浓度；同样地，法国宇航院的 Cadiou 等人^[129]通过使用 10% 量子效率的 InGaAs PIN 探测器，所需的出射激光能量为 5-10mJ，在 1km 的探测路径上得到了距离分辨率为 150m，时间分辨率为 9min 的 CO₂ 浓度；此外美国 NIST 的 Wagner 等人^[111]使用量子效率为 3%-8% 的 InGaAs PMT 探测器，出射激光能量为 7mJ，得到了距离分辨率为 250m，时间分辨率为 10min 的 CO₂ 和 H₂O 浓度。这些高能量的激光器易致使光学器件损坏，且不利于系统的小型化发展。鉴于此，通过使用 SNSPD 单光子探测器，可以在提高量子效率 η_q 和减小探测器噪声 N_D 的前提下提高信噪比，减小对高功率激光器的需求。基于 SNSPD 的单光子探测方法有利于激光雷达系统使用 μJ 级别的激光器得到有距离分辨率的气体光谱，从而实现自由空间内高信噪比的光谱分析和浓度分布测量。

2.5 本章小结

本章描述了单光子探测自由空间分布式光谱的原理与设计，首先从光谱学理论出发，介绍了分子在近红外的吸收光谱及展宽机制。其次从激光雷达出发，分析了该方法探测大气光谱的基本原理，并给出了通过所得光谱来反演出浓度的方法。此外本章还对比了锁定出射激光频率的技术及应用，并介绍了用飞秒光梳作为精确频率锁定的原理和反馈设计，以此来保证精确的频率输出来进行准确的光谱测量。最后针对激光雷达大气遥感的应用，从信噪比出发，对比了

现有的探测器技术和激光器的出射能量需求,分析了 SNSPD 单光子探测器的优势,即使在微弱的回波信号中也能提取有效的信息,实现自由分辨的光谱测量。这种结合了光谱学原理、激光雷达技术、光频梳锁定技术以及单光子探测技术的系统能够实现自由空间分布式的光谱遥感。

第3章 自由空间光谱遥感的模拟

3.1 吸收谱线的选择

对于大气中温室气体的遥感，一个重要的先决条件就是对待测气体的吸收特性准确而全面的了解。通过选择合适的分子吸收线可最大程度地减小仪器的影响及测量的不确定性。假设激光线宽足够窄，由激光线型变化导致的有效截面误差可以忽略不计，那么吸收线的选择需满足以下标准^[179,203]：

(1) 所选择的吸收线几乎只包含待测气体的吸收，不受其他气体吸收的干扰，且在该吸收线范围内受其他大气成分的影响相近。因而除了待测气体的吸收外的其他消光过程均可认为相等；

(2) 所选择的吸收线需具有合适的光学深度，即返回的回波信号在整个光学路径可被探测到；

(3) 所选择的吸收线对温度的依赖性较低，以此减小在光学路径上温度波动引起的密度廓线误差。

光谱数据可将遥感获得的特征光谱与大气中的气体的分布联系起来。本文中使用的光谱数据库为 HITRAN，其包含了光谱的谱线位置、谱线强度、压力增宽系数等参数。下面将基于 HITRAN 数据库讨论气体探测时的吸收线选择标准。

3.1.1 气体干涉的影响

为减小其他气体干涉对待测气体的影响，待测气体的吸收截面应远大于其他干涉气体的吸收截面。下面通过引入一个参数 Δ_j 进行分析， j 表示被选择的不同的吸收线。 Δ_j 定义为在中心频率为 ν_0 处被选择的线的吸收截面与总的吸收截面之比，即

$$\Delta_j = \frac{\sigma_j(\nu_0)}{\sum_i \sigma_i(\nu_0) + \sum_K N_K \sum_{i_K} \sigma_{i_K}(\nu_0)} \quad (3.1)$$

式中， N_K 为第 K 中气体相对于待测气体的浓度， $\sum_i \sigma_i(\nu_0)$ 和 $\sum_{i_K} \sigma_{i_K}(\nu_0)$ 分别表示其他同种气体的吸收截面之和以及所有气体的吸收截面之和。 Δ 的值介于0-1之间，因而可用于评估其他气体干涉的影响。当 Δ 接近1时表示几乎不受干涉影响，当 Δ 接近0时则表示受干涉影响很大。在吸收线选择时，可令 $\Delta > 0.33$ ，即吸收的峰值至少包含三分之一的被选吸收线的吸收，且不超过三分之二的其他干涉的吸收。

除了干涉气体的吸收截面的影响以外，还需要考虑到吸收线对应的频率范

围，即在该范围内所有频率除了吸收截面的不同，受其他因素的影响均近似相同。这方面首先可通过分子的后向散射对波长的依赖性来分析，后向散射可表示为 λ^{-b} ，在瑞利散射（分子散射）的情况下， $b=4$ ，在米散射（气溶胶散射）的情况下 $1.2 < b < 2.5$ 。对于紫外区域，后向散射既包含瑞利散射，也包含米散射；然而在红外区域，其波长较大，因而米散射占主导。由波长变化导致的后向散射变化可表示为

$$\left| \frac{\Delta\beta}{\beta} \right| = b \frac{\Delta\nu}{\nu} \quad (3.2)$$

若 $|\Delta\beta/\beta|=0.1\%$ ，那么所选择的吸收线范围应满足

$$\Delta\nu \leq \frac{0.001}{b} \nu_0 \quad (3.3)$$

测量的数密度 N 的不确定度与后向散射 β 的关系可表示为

$$\frac{\delta N}{N} = \frac{1}{\Delta DOD} \frac{\delta\beta}{\beta} \quad (3.4)$$

ΔDOD 为一段光学路径内气体的差分光学深度，当 $\Delta DOD=0.05$ 时， $|\Delta\beta/\beta|=0.1\%$ 将会导致测量数密度不确定度为 2%。

此外还需考虑消光系数对数密度的影响。鉴于消光系数在纯分子大气中可表示为 $\xi=8\pi\beta/3$ ，那么其导致的数密度误差为

$$\frac{\delta N}{N} = \frac{1}{2\Delta DOD} \frac{8\pi}{3} \left(\frac{\delta\beta}{\beta} \right) \beta \Delta R \quad (3.5)$$

对于 2km 的测量路径，假设 $DOD=1$ ，当距离分辨率为 100m 时 $\Delta DOD=0.05$ ， $|\Delta\beta/\beta|=0.1\%$ 造成数密度变化 $<1\%$ （对于气溶胶密集时 $\beta \sim 10^{-4} \text{m}^{-1} \text{sr}^{-1}$ ），因而在这种情况下认为消光系数的影响是可以忽略的。同样地，对于气溶胶的消光而言，消光系数可表示为 $\xi=\beta/P_\pi$ ，其中 P_π 为相位函数，且通常情况下 $P_\pi < 0.1$ ，故式(3.5)对于气溶胶粒子也是适用的，即在这种情况下消光系数的影响可忽略。

在分析完分子的后向散射对波长的依赖后，接下来还需要考虑干涉气体对所选吸收线范围的差分吸收截面的贡献是否相同。为了便于分析，引入一个系数 Θ ，将其定义为由干涉气体的差分吸收截面引起的浓度估计误差，该系数可表示为

$$\Theta = \frac{\delta N}{N} = \frac{\delta(\Delta\sigma)}{\Delta\sigma} = \left| \frac{\sum_{\nu_0} - \sum_{\nu_{\text{off}}}}{\sigma(\nu_0) - \sigma(\nu_{\text{off}})} \right| \quad (3.6)$$

其中

$$\sum_{\nu_0} = \left[\sum_{i \neq j} \sigma_i(\nu_0) + \sum_K N_K \sum_{iK} \sigma_{iK}(\nu_0) \right] \quad (3.7)$$

$$\sum_{\nu_{\text{off}}} = \left[\sum_{i \neq j} \sigma_i(\nu_{\text{off}}) + \sum_K N_K \sum_{iK} \sigma_{iK}(\nu_{\text{off}}) \right] \quad (3.8)$$

式中 $\Delta\sigma$ 为待测气体的差分吸收截面， ν_{off} 为待选择的吸收线对应的频率边缘，式(3.7)和式(3.8)表示大气中除了待测气体外其他所有气体在所选吸收线区间内的总吸收截面之和。因而 Θ 系数可以反映由其他谱线干扰引起的微分截面的变化。 Θ 的值 ≥ 0 ，数值越大，对应的干扰越大，在接近0时表示干扰很小。通常可选择满足 $\Theta < 0.1$ 所对应的吸收线。

3.1.2 光学深度的影响

在满足气体干涉影响可忽略的条件下，还需要对所选吸收线的光学深度进行评估，使所探测到的信噪比最优。距离0-R的累积光学深度可表示为

$$DOD = \int_0^R \Delta\sigma(\nu) N(r) dr \quad (3.9)$$

为了分析光学深度的影响，可通过考虑一段距离内大气柱积分 DOD 和某个距离分辨率 ΔR 内的 ΔDOD 之间的关系。当 $DOD > 4$ 时，会导致返回的信号微弱且难以测量；当 $DOD < 0.02$ 时，不同频率对吸收线的吸收差异太小导致返回的信号难以区分。在距离分辨率 ΔR 内的数密度误差可通过假设探测到的后向散射的光子数服从泊松分布来估计，当在散粒噪声极限下可表示为^[179,204]

$$\frac{\delta N}{N} = \frac{K_{DOD}}{(DOD)\sqrt{m_0}(SNR)} \left\{ \frac{\exp(2DOD)[1 + \exp(2DOD/K_{DOD})]}{2} + 1 \right\}^{1/2} \quad (3.10)$$

在暗电流噪声极限下可表示为

$$\frac{\delta N}{N} = \frac{K_{DOD}}{(DOD)\sqrt{m_0}(SNR)} \left\{ \frac{\exp(4DOD)[1 + \exp(4DOD/K_{DOD})]}{2} + 1 \right\}^{1/2} \quad (3.11)$$

其中 K_{DOD} 为 DOD 与 ΔDOD 的比值， m_0 为激光出射数。接下来通过模拟不同的 K_{DOD} 和 SNR 估计数密度的误差。令柱积分的光学深度为2km，距离分辨率为60m，即 $K_{DOD} \approx 33$ ，令 $m_0 = 4 \times 10^5$ ，模拟的散粒噪声和暗电流噪声极限下误差随光学深度的函数如图3.1所示。

图3.1(a)中的散粒噪声极限适用于在夜间用可见光和紫外光探测，当 $K_{DOD} > 3$ 时对应的最优的光学深度为1.1；图3.1(b)中的暗电流噪声极限适用于在白天用紫外-可见光测量，或者红外光测量，对应的最优的光学深度为0.55。当信噪比为50%时，模拟的散粒噪声误差在 $0.02 < DOD < 0.4$ 的情况下为7.5%-1.5%之间，最小误差为0.30%；暗电流噪声误差为7.5%-8.9%之间，最小误差为0.61%。

需要注意的是由于缺少待测气体的数密度廓线（最终反演的目标），对光学深度的先验估计是比较困难的。因而在选择吸收线时为了得到最优的光学深度，需要对待测气体的浓度进行预估。

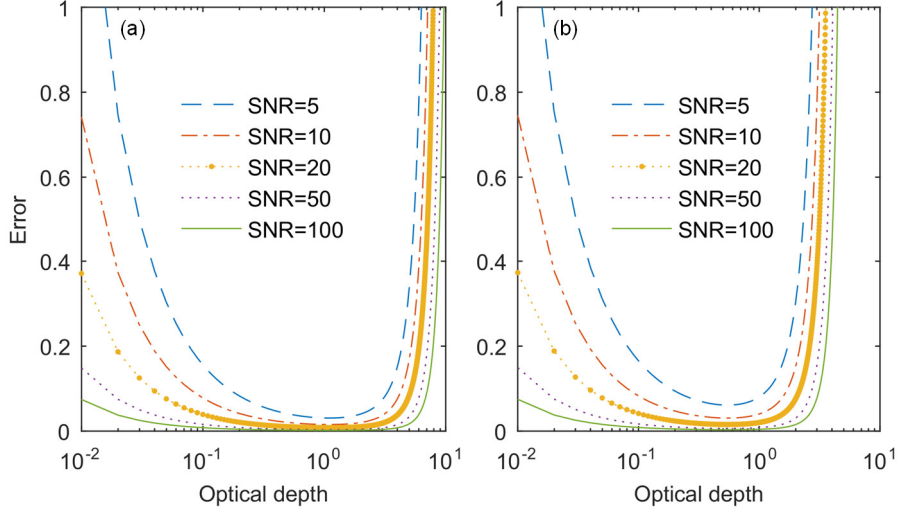


图 3.1 (a)散粒噪声极限和(b)暗电流噪声极限下数密度反演误差与光学深度和信噪比的函数关系

3.1.3 温度敏感性的影响

在测量过程中大气温度随着时间和空间一直在变化。对于垂直测量的情况，可首先通过原位仪器或遥感技术测得温度廓线，然后再对数密度廓线进行校正。但对温度廓线的精确测量也存在一定的挑战。因而为了减少温度变化的影响，在进行吸收线选择时应尽可能的偏向于温度不敏感的线位置。温度的敏感性可表示为对吸收系数进行微分，即^[205,206]

$$\frac{d\alpha_g}{\alpha_g} \frac{1}{dT} = \frac{1}{T} \left(\frac{\varepsilon hc}{k_B T} - \frac{5}{2} + \Xi \right) \quad (3.12)$$

式中， ε 为基态能量， Ξ 是依赖于线型的函数，在纯多普勒展宽极限下为 0，在纯洛伦兹展宽极限下为 1。从该式可以看出，分子吸收线对温度的敏感性与基态能量成正比，即基态能量越高，对应的温度敏感性越强。图 3.2 分别为在 $\Xi=0$ 和 $\Xi=1$ 两种极限下设置不同的基态能量 ε 对应的温度敏感性变化。温度 T 的变化区间设为 250-300K， ε 分别取值为 100cm^{-1} ， 400cm^{-1} ， 700cm^{-1} 和 1000cm^{-1} 。当 $\varepsilon=100\text{cm}^{-1}$ 时，对应的多普勒极限和洛伦兹极限下温度敏感性分别为 0.014%/K 和 0.016%/K；当 $\varepsilon=1000\text{cm}^{-1}$ 时，对应的多普勒极限和洛伦兹极限下温度敏感性分别为 1.4%/K 和 1.6%/K。

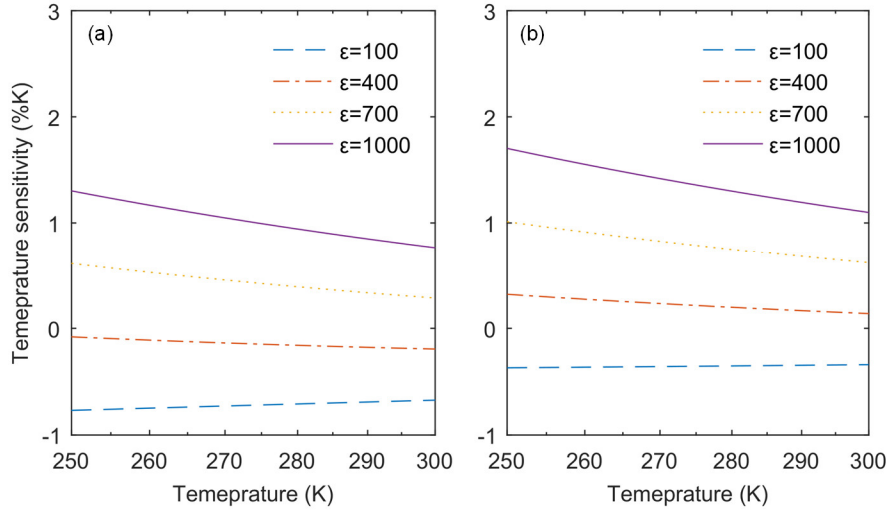


图 3.2 (a)多普勒极限和(b)洛伦兹极限下不同基态能量对应的温度敏感性

3.1.4 1.5 μm 吸收光谱的优势分析

在测量气体吸收光谱时，出射光源的线宽需远窄于气体的吸收线，对光源的频率稳定度也有较高的要求。因而吸收线的选择通常是在最优的光谱学参数所在频率范围以及成熟的光学器件应用波段之间进行权衡。1.5 μm 波段的激光雷达在大气气体光谱探测方面具有诸多优势。该波段与具有相同激光能量的可见光相比拥有更多的光子数，并且具有人眼安全的特性，可适用于不同的应用场景；该波段有利于掺铒和掺镱光纤激光器和系统全光纤链路的发展；此外 1.5 μm 波段包含了大量的气体吸收线，如 CO_2 ， H_2O ， CO ， NH_3 ， C_2H_2 等，因而有利于同时探测多种大气气体的光谱。

对于 CO_2 探测， H_2O 被认为是最主要的干涉气体，在以往的研究中， CO_2 的线选择均基于 H_2O 影响最小考虑的。图 3.3 为根据 HITRAN 数据库中的光谱学参数计算得到的 R12-R20 范围内 CO_2 、 H_2O 及其同位素气体 HDO 的吸收截面。其中考虑了这三种气体在大气中的丰度，即 CO_2 为 400ppm， H_2O 为 18600ppm，HDO 为 6ppm。从图中可以看出 R16 线位置处干涉气体 H_2O 的影响最小，因而该吸收线最常被用于 CO_2 探测。

事实上，在 R16 线附近还存在着较强的 HDO 的吸收，且远大于该处 H_2O 的吸收，这种影响在其他的研究中一直被忽略^[207]。鉴于本文的研究内容是宽范围的气体光谱测量，因而可通过同时测出大气中 HDO 和 CO_2 在 R16 线处的光谱来进一步研究除了 H_2O 外其他干涉气体对 CO_2 的影响，突出本文中光谱遥感的优势。此外，在优先考虑选择 R16 线的前提下，还需要对其光学深度、温度敏感性进行讨论，以确定该吸收线是否为同时探测 CO_2 和 HDO 的最优选择。

表 3-1 列出了 HITRAN 数据库中 R16 线位置处 CO₂、H₂O 和 HDO 的一些光谱学参数，用于进一步模拟研究同时探测 CO₂ 和 HDO 光谱的可行性。

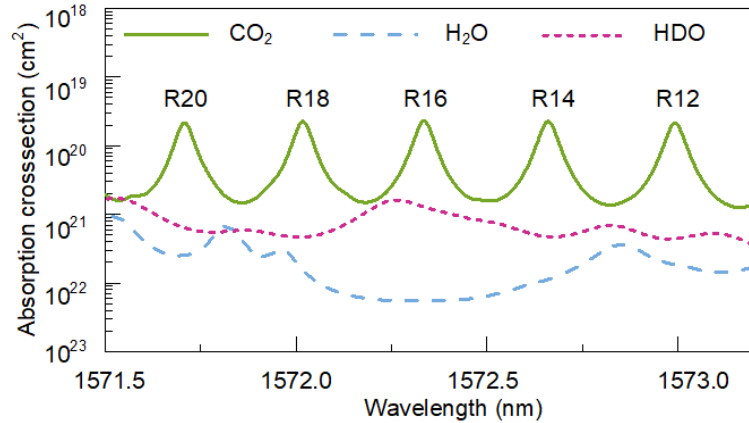


图 3.3 CO₂ 的 R12-R20 吸收线受 H₂O 和 HDO 的影响

表中波数和能级的单位均为 cm⁻¹，线强度的单位为 cm⁻¹/(molec·cm⁻²)，展宽系数的单位为 cm⁻¹/atm，在经过丰度校正后，R16 线位置处的 H₂O 的线强度比 CO₂ 约低 5 个数量级，因而可以不考虑其作为干涉气体的影响。除此之外，该范围内的 CO₂ 和 2 条 HDO 吸收线均需要被考虑。对于 CO₂ 为 400ppm，HDO 为 6ppm 的情况下，这三条吸收线在 2km 路径积分下的光学深度分别约为 0.15、0.03 和 0.01，其中有两对应的值位于 0.02~4 之间，根据上节对光学深度的分析，这两条线可被分别用于 CO₂ 和 HDO 的探测。

表 3-1 R16 线主要吸收气体的光谱参数

分子式	波数	自然丰度	线强度 丰度校正	空气展 宽系数	自展宽 系数	基态 能量	温度依 赖指数
HDO	6359.748	0.000311	7.139×10^{-23}	0.0885	0.41	362.507	0.63
CO ₂	6359.967	0.984204	1.808×10^{-23}	0.0747	0.102	106.130	0.67
H ₂ O	6360.026	0.997317	3.557×10^{-28}	0.0554	0.235	2551.482	0.4
HDO	6360.278	0.000311	2.774×10^{-22}	0.0995	0.398	100.391	0.71

同时这两条线的基态能级分别为 106.130cm⁻¹ 和 100.391cm⁻¹，图 3.4 为这两条吸收线的光学深度及温度敏感性导致的数密度误差的模拟。从图中可以看出，若期望的测量误差在 10%以内，那么对于 CO₂ 探测需要 SNR>5，而对于 HDO，则需要 SNR>25。同时由于这两条线的基态能量接近，因而具有几乎一致的温度不敏感特性。综合考虑可认为位于 1572.335nm 的 R16 线适用于同时探测 CO₂ 和 HDO 光谱。

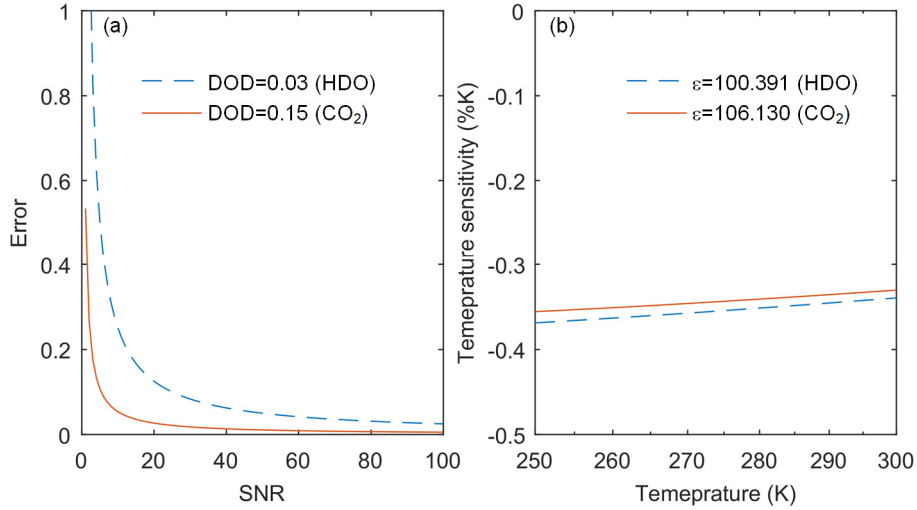


图 3.4 2km 处 CO₂ 和 HDO 的 (a)反演误差随 SNR 变化；(b)温度敏感性

3.2 自由空间光谱遥感的可行性分析

基于上节线选择分析的基础上，下面将以 CO₂ 的 R16 线为例，通过设置不同的系统参数模拟激光雷达信号，并根据不同的反演方法进一步验证光谱扫描探测的可行性。

3.2.1 激光雷达信号模拟

根据第 2 章中激光雷达原理的介绍，在选择合适的吸收线后该范围扫描出射的波长对应的雷达方程可简化为距离和吸收系数的函数。在模拟中取最大探测距离为 7.5km，出射波长数量为 30，初始 CO₂ 浓度为 400ppm。通过表 3-1

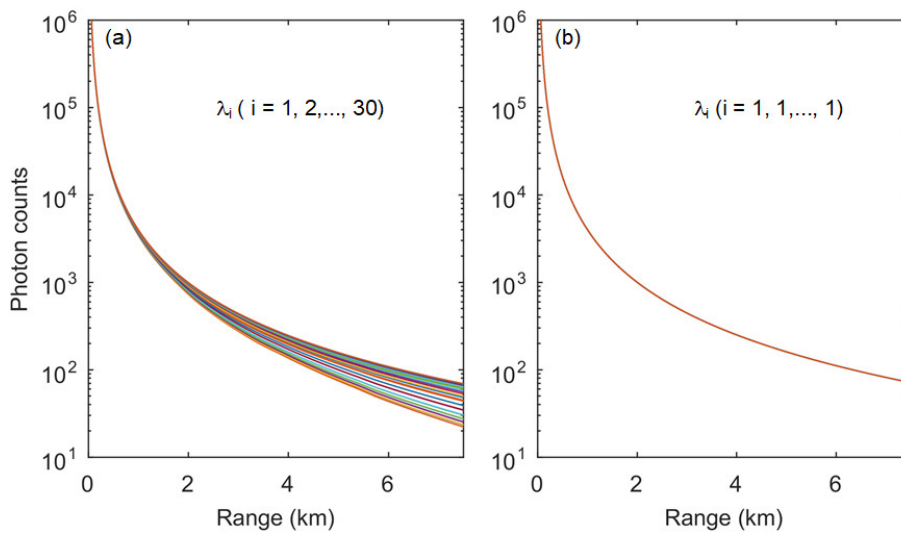


图 3.5 CO₂ 浓度为 400ppm 时对应的理想回波信号。(a)30 组不同波长；(b)30 组相同的 off 波长

的光谱学参数及 Voigt 拟合后,即可得到 CO_2 为 400ppm 时对应的吸收系数,将该系数代入雷达方程即可得到回波信号的廓线。

图 3.5(a)为模拟的理想情况下 30 个波长扫描出射的情况,可以看出不同波长之间随着距离的增加出现不同程度的衰减,其中衰减最快的回波信号对应的为吸收线的中心波长,而衰减最慢的则为位于吸收线两端的波长。图(b)为出射的 30 个波长均保持在几乎没有 CO_2 吸收的位置,因而所有的回波信号同步衰减并重叠在一起。根据回波信号衰减程度的不同,就可通过计算 30 组信号的比值反演出每个波长对应的 CO_2 吸收系数的差异,在频域上就可形成关于吸收系数的 CO_2 光谱。

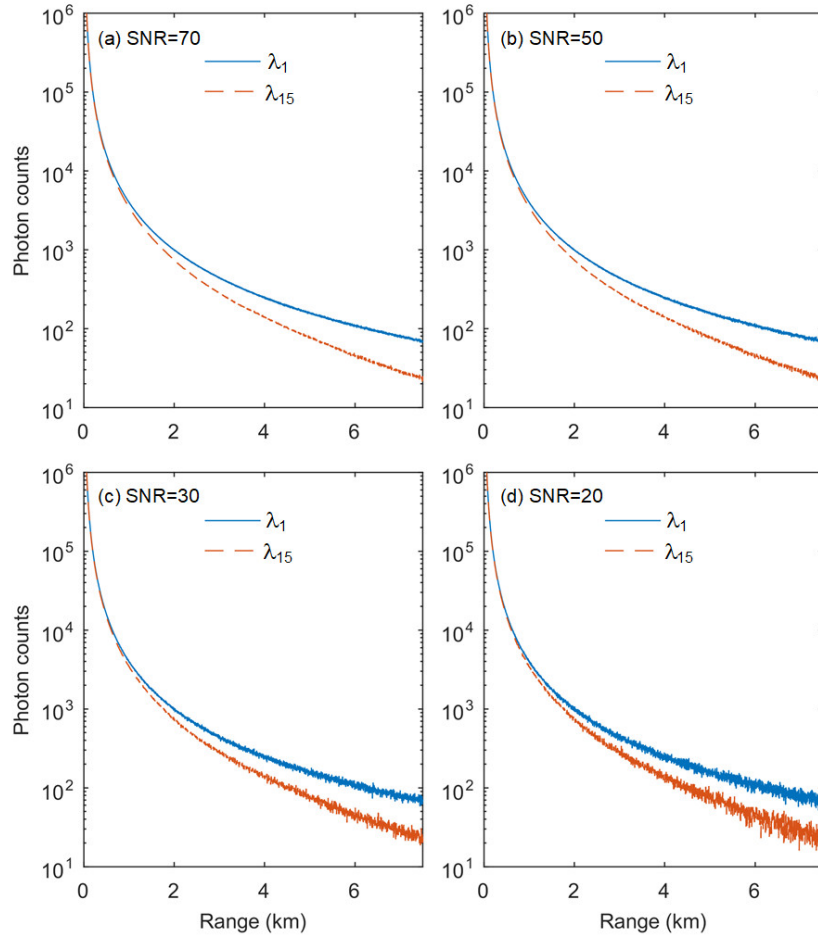


图 3.6 含噪声的不同信噪比的激光雷达信号。(a)SNR=70dB;
(b)SNR=50dB; (c)SNR=30dB; (d)SNR=20dB

考虑到实验过程中会受到一定程度的噪声的影响,导致所接收的回波信号并不是如图 3.5 所示的理想情况。对于单光子探测的情况,主要的噪声源为散粒噪声,并服从泊松分布。由于噪声会在一定的程度下影响信号的信噪比,以 2km 位置为例,图 3.6 分别模拟了信噪比为 70dB, 50dB, 30dB, 20dB 时对应的第 1 个波长和第 15 个中心波长的回波信号。

3.2.2 降噪模拟

从图中可以看出, 信噪比随着距离的增加急剧下降, 这将导致反演误差的增加。在这种情况下就需要对含噪声的回波信号进行降噪处理来提取有效信号所包含的光谱和浓度信息。中值滤波、小波变换及滑动平均滤波是几种比较常见的用于激光雷达信号降噪的方法, 下面将针对这三种降噪方法对模拟的含噪声信号进行滤波和比较。

1. 中值滤波

中值滤波的一维中值滤波最早由 Tukey 等人^[208]提出, 其原理是在某个数据附近获取多个值 (窗口), 并找这组数对应的中值, 然后使用中值替换该数据。采用中值滤波效果是从信号中去除与周围值相比较高和较低的数据值^[209], 从而有效抑制噪声点, 使之趋于真实值。中值滤波算法简单, 可用于去除尖峰噪声和随机噪声, 且模糊程度低。

2. 滑动平均

滑动平均滤波的原理是首先选取一组长度 (窗口) 固定的数据, 在进行下一个值的采样时将该值放在数据的末尾, 并丢弃数据开头的一个数值, 然后再对整个数据中的数进行平均, 并得到最终的滤波结果。这种滤波方式能使波形整体变平滑, 对周期性的噪声干扰有抑制作用。滑动平均时需要对队列的窗口进行选择, 一般情况下, 当噪点数量多时窗口应大一些, 但过大又会丢失原有信号中有用的信息。

3. 小波去噪

小波去噪是通过将信号进行多尺度分解和重构的方法。首先, 将信号转换为多尺度信号, 然后在去除属于噪声信号的小波系数的同时, 尽可能多地在每个尺度上提取有效信号的小波系数, 最后, 根据信号的特征进行适当的逆小波变换来重建信号^[210]。小波变换的特点在于可以较好地保留信号的非平稳特性, 如边缘、尖峰等。

图 3.7 为模拟三种滤波方法对应的降噪效果。其中(a)~(d)图中黑色虚线均为模拟的 2km 位置 SNR=30dB 时的含噪信号, 紫红色的线段为模拟的理想回波信号。在(a)图中采用了中值滤波的方式, 窗口数分别为 19, 39 和 59, 当窗口数越大时滤波后的信号越接近理想情况。(b)图采用了平滑滤波的方式, 对应的窗口数分别为 20, 40 和 60, 与(a)图类似的是当滑动的窗口变大时, 降噪后的信号也更趋于真实值。(c)图中为 db3, db4 和 db5 小波的降噪的模拟, 可以看出 db3 小波虽然较好的保留了含噪信号的尖峰等变化特性, 但其与真实信号相差较大。此外 db4 和 db5 小波更接近真实值, 且 db4 稍好于 db5。(d)图分别为这

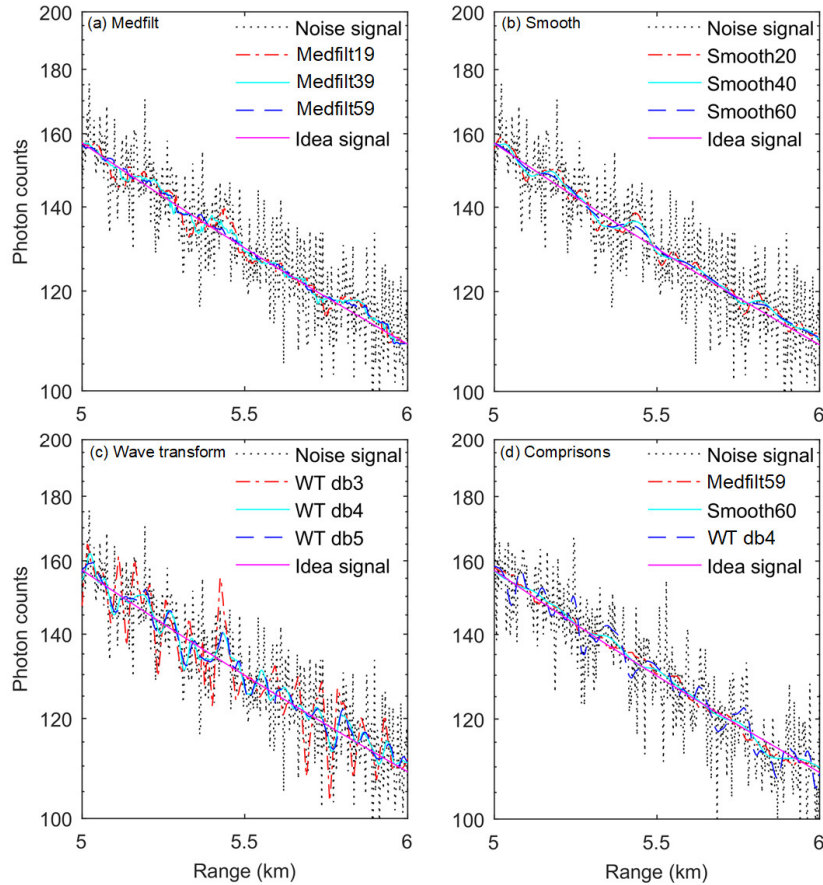
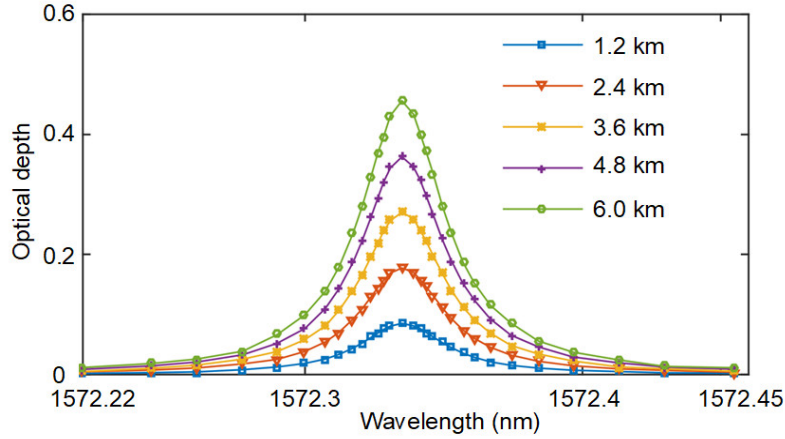


图 3.7 不同降噪方法。(a)中值滤波在不同窗口下的降噪对比；(b)滑动平均在不同窗口下的降噪对比；(c)小波变换在不同小波分解阶数下的降噪对比；(d)中值滤波、滑动平均和小波降噪对比

三种滤波中较好的滤波方式对比，即对应的中值滤波窗口数为 59，滑动平均窗口数为 60，小波去噪为 db4 小波。从该图可以看出，db4 小波滤波仍保留了一部分的噪声信息，而中值滤波和滑动平均滤波效果接近，且均趋于真实值。鉴于此，可先考虑通过小波滤波去除大部分噪声后，再利用中值或滑动平均进一步的降噪，从而提高光谱和浓度的反演精度。

3.2.3 面积法和查表法反演对比

在对模拟的含噪声的回波信号进行降噪处理后，根据第 2 章的雷达原理对 30 条回波信号进行光谱和浓度的反演，图 3.8 为从模拟回波信号中反演得到的不同距离处累积的光学深度光谱。从图中可以看出随着距离的增加，累积的光学深度逐渐增大，通过将不同距离处的光谱相减，就可以得到不同位置处距离分辨的光谱分布。下面将通过面积法和查表法两种方法，由所得到的距离分辨的光学深度光谱反演出对应的浓度分布结果。


 图 3.8 模拟的 CO_2 在不同距离处累积的光学深度光谱

面积法是通过光学深度光谱进行拟合得到对应的面积后，再利用公式计算出浓度；而查表法则是通过理论计算待测气体在一定浓度范围内理想的“光谱库”，将库里面的每一条光谱与测得的光谱进行比较，当二者之间的误差最小时所对应的浓度即为所求浓度。在本次模拟中理想的气体浓度在距离上均匀分布，对应的浓度值 400ppm，通过设置不同的信噪比，分别采用面积法和查表法反演出了浓度结果并与设置的理想值进行了比较，如图 3.9 所示。

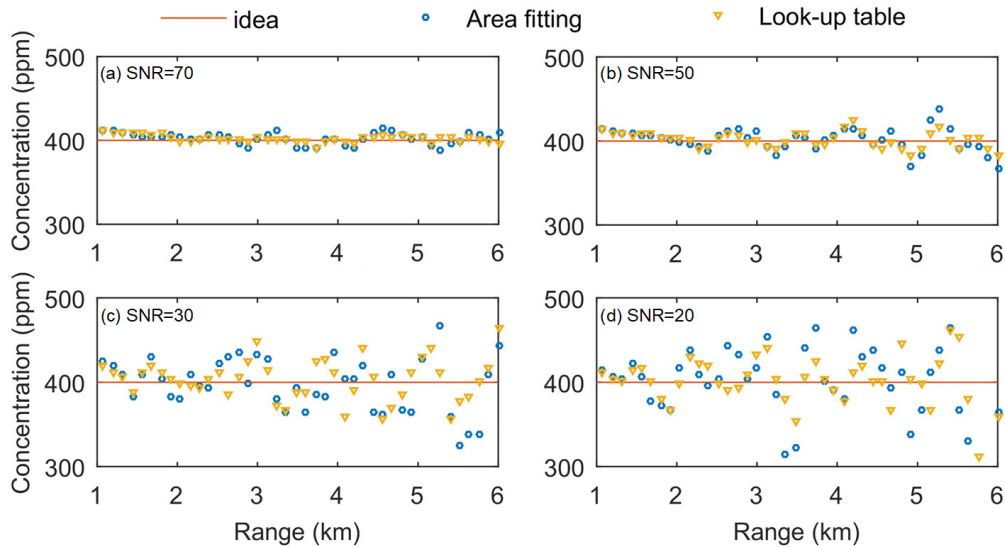


图 3.9 面积法和数据库查表法在不同信噪比下反演的浓度对比。

(a)SNR=70dB; (b)SNR=50dB; (c)SNR=30dB; (d)SNR=20dB

从图中可以看出，在信噪比较高时，采用面积法和查表法计算的浓度值趋势基本一致，且均与理想值 400ppm 接近；当信噪比较低时，二者反演的结果均在理想值的上下波动，对应的准确性降低。此外，由于在信噪比不够时拟合光谱会增大面积拟合偏差，因而在这种情况下采用查表法的效果稍好。然而查

表法也存在一定的局限性，如当所测光谱包含多种气体吸收线时，利用查表法生成包含多种成分的“光谱库”的复杂程度显著增加，这时候通常就需要用面积拟合法可将多条线分离，并反演出各自对应的浓度信息，这部分将在下一节进行讨论。

3.2.4 非均匀浓度反演模拟

为了进一步分析光谱扫描探测和降噪方法的可行性，接下来将在光学路径上设置非均匀变化的浓度，并将反演的结果与设置的理想结果进行对比。

图 3.10 为模拟的四种的浓度分布，其趋势分别按照矩形和三角形变化。从图中可以看出，在对加入噪声的信号降噪后，根据数据库比对光谱法反演得到的浓度与理想值的变化趋势基本一致。特别地，在当测量过程中出现局部高或低的气体浓度分布，而传统的被动式光谱学或柱积分式的光谱无法分辨这一信息时，该方法可以通过距离分辨的光谱来遥感这种变化。

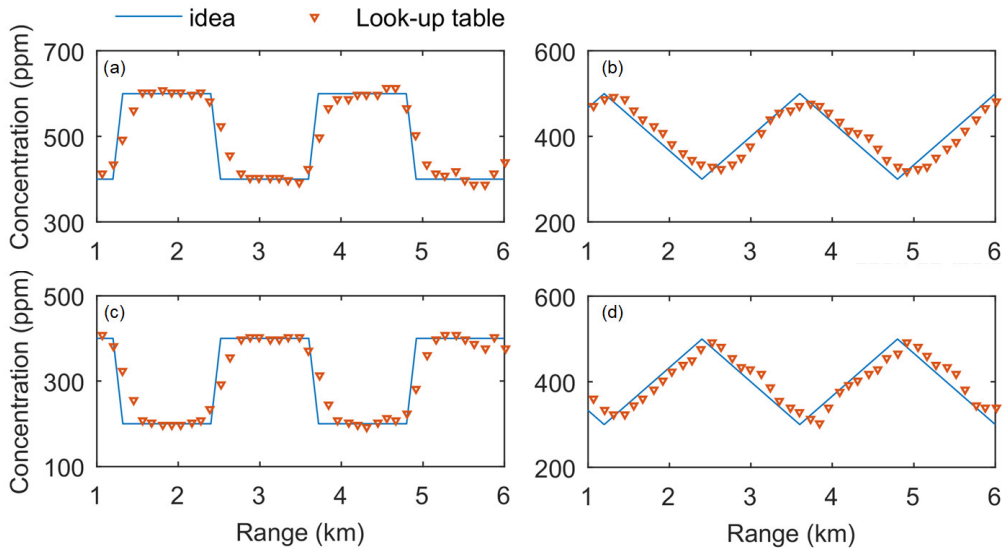


图 3.10 非均匀浓度分布时反演结果与理想值对比。(a)和(c)矩形分布；(b)和(d)三角形分布

3.3 基于浓度反演的讨论

3.3.1 拟合模型的选择

前面提到，当气体压力较低时，分子的展宽以多普勒为主，而压力较高时则以洛伦兹为主。下面将讨论一般情况下两种拟合方式所适应的海拔高度。大气温度随高度的变化可用美国大气模型表示为 $T=288.16-6.5 \times H$ ，其中 T 的单位为 K， H 的单位为 km；此外，压强随温度的变化可表示为 $P=\exp(a \times \ln(T)-b)$ ，在海平面温度为 288.15K 的情况下， a 和 b 的值分别为 5.25885 和 18.25731。从

这两个表达式中可以看出温度和压强均随着海拔高度的升高而降低，因而分子的光谱展宽也会随着高度变化。图 3.11 为不同的温压及高度所对应的光谱展宽。由于分子的多普勒展宽只与温度有关，因而可转换为海拔的函数。在满足 $\omega_C > 5\omega_D$ 可用洛伦兹线型来描述光谱，图(c)为 R16 线的三条吸收线对应光谱的洛伦兹展宽以及两种分子对应的 5 倍多普勒展宽。从图中可以看出在 $\omega_C = 5\omega_D$ 时 CO_2 和 HDO 的临界高度分别接近 9.5km 和 8km。因而在进行该吸收线位置处的这两种分子分析时，在低于 8km 高度可以考虑选择洛伦兹线型拟合。同时由于在该海拔下多普勒展宽相对于洛伦兹展宽很小，对于其卷积 Voigt 的综合展宽贡献很小，因而也可以采用 Voigt 拟合的方式。

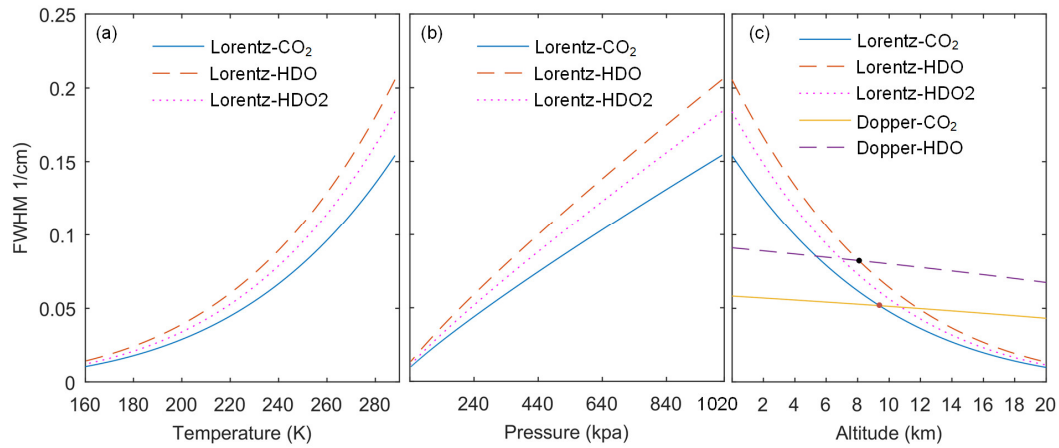
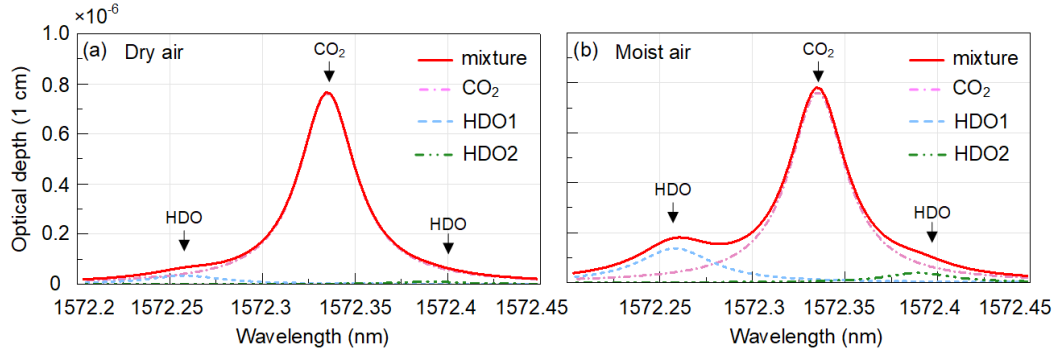


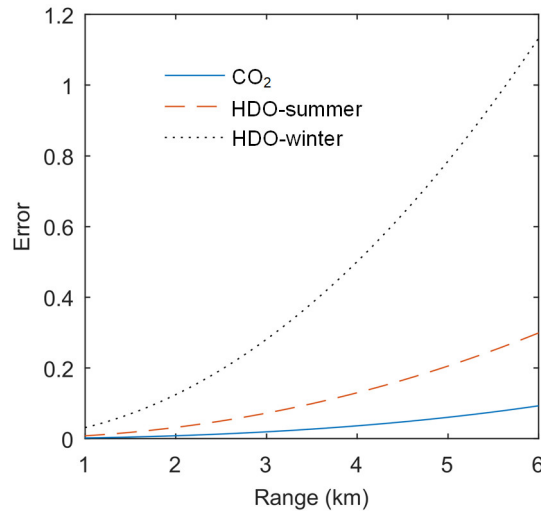
图 3.11 R16 线处 CO_2 和两条 HDO 的洛伦兹和多普勒展宽随(a) 温度；(b)压强和(c)海拔的变化关系

3.3.2 混合光谱模拟

在讨论 R16 线的三条吸收光谱时，需要注意的是其中 HDO 的浓度与 H_2O 的浓度息息相关，容易受到温度等环境因素的影响。一般在夏季湿润的环境中其浓度较高，而在冬季干燥的环境中则较低。图 3.12 分别模拟了这两种条件下 CO_2 和 HDO 在单位长度(1cm)内的光学深度混合光谱，其中模拟的 CO_2 的浓度为 400ppm，而图(a)和(b)对应的 HDO 浓度分别为 1.6ppm 和 6ppm，对应的温压分别为 296K 和 1atm。从图中可以看出混合光谱为三条吸收线的叠加，在不同的情况下， CO_2 的线强度分别是 HDO 的 17 和 4.25 倍左右。在干燥的情况下，由于 HDO 浓度很低，该位置处的吸收很弱，在湿润的情况下，两条 HDO 的吸收均比较明显，导致混合光谱不再是规则的洛伦兹或 Voigt 线型，因而在反演浓度时数据库光谱比对法则不再适用。通过洛伦兹三峰拟合后可将 CO_2 和两条 HDO 的吸收线分离，并反演得到各自的浓度。


 图 3.12 理论计算的(a)冬季和(b)夏季 CO_2 和 HDO 的混合光谱

考虑到不同的气体分子对应着不同的线强度和光学深度，因而在进行距离分辨的光谱分析时对应着不同的反演误差。针对 CO_2 和 HDO 两种气体，通过对其随距离的误差分布进行模拟，可以预估实际实验中的测量精度大小。将 2km 处的信噪比设为 50dB，距离分辨率设为 60m，那么在散粒噪声的情况下， CO_2 和 HDO 在冬季和夏季随距离变化的误差如图 3.13 所示。图中的反演误差均随着距离呈指数增长。 CO_2 由于其线强度和大气丰度较高，因而反演误差小；而 HDO 的反演误差较大，尤其是在冬季。在考虑精确测量 CO_2 浓度时应选择冬季，考虑同时测得 CO_2 和 HDO 的分布时应尽量选择夏季。


 图 3.13 CO_2 和 HDO 数密度理论反演误差随距离变化

3.4 本章小结

第 2 章从基本原理出发，从理论上阐述了单光子激光雷达用于大气气体光谱分析的作用机制。本章首先介绍了光谱分析时的线选择要求，通过模拟不同干涉气体、光学深度及温度的影响，并综合考虑 $1.5\mu\text{m}$ 的探测优势选择了 CO_2 的 R16 线。在基于线选择的基础上，本章还对激光雷达的原始信号进行了模拟，通过设置 30 个包含 CO_2 吸收线的波长对应的理想的回波信号，并针对不同的

信噪比对理想信号加入了泊松分布的噪声。然后采用了不同的滤波方法对含噪信号进行降噪的模拟，并将去噪方法用于雷达信号中反演得到了 CO_2 距离分辨的光谱。本章还对比了面积法和查表法两种浓度反演方法，并通过在路径上设置非均匀变化的浓度，将反演的浓度与理想的浓度对比，二者有较好的一致性。此外，本章还分析了用于线型拟合的函数选择并模拟了在不同季节下 CO_2 和 HDO 的混合光谱，另外预估了两种气体在距离分辨反演时对应的误差大小。本章节在第 2 章的基础上进一步验证了该系统用于光谱分析的可行性，并为后续实际的实验分析提供了理论支撑。

第4章 距离分辨的光谱遥感实验

实验的系统参数见表 4-1, 该系统可用于距离分辨的光谱遥感, 其光路图如图 4.1 所示, 主要由出射模块, 频率锁定模块以及接收模块组成。首先将一个调谐范围为 1530-1620nm 且覆盖多种气体吸收线的外腔半导体激光器 ECDL 作为种子光源, 同时将一个光纤激光器作为参考光源。由种子激光器出射的 99% 的光源与参考激光器的输出同时接入光开关进行时分复用选通, 随后由声光调制器 AOM 将两束光斩成脉冲并由放大器 EDFA 放大后经耦合器出射至大气。

表 4-1 系统参数

	参数	指标	型号
探测光源	光谱范围	1530.000~1620.000 nm	Toptica, CTL1550
参考光源	频率	1572.450 THz	Keopsys, PEFL
放大器	光谱范围	1572.212~1572.459 nm	红露麟, EYDFA
	ASE 抑制比	45 dB	
	脉冲重复频率	20 kHz	
	脉冲能量	40 μ J	
	脉冲宽度	400 ns	
	功率稳定性	$\leq 5\%$ rms	
	线宽	< 2 MHz	
接收望远镜	直径	256 mm	红露麟
光学滤波器	带通宽度	0.3 nm flattop, peak transmittance $>85\%$	红露麟, MMF1572
探测器	类型	SNSPD	SIMIT 上海微系统与信息技术研究所
	大面元直径	50 μ m	
	量子效率	31.5%	
	暗计数 (每秒)	100	
	噪声等效功率	5.7×10^{-18} W/Hz ^{1/2}	
频梳	脉冲重频	100 MHz	AVIC 北京长城计量测试技术研究所
	艾伦方差(1s)	5×10^{-12}	
	偏移频率	100 MHz	
	艾伦方差(1s)	1.2×10^{-9}	
性能	探测距离	6km	USTC 中国科学技术大学
	CO ₂ 精度	1.2%	
	HDO 精度	14.3%	
	时间分辨率	10min	
	距离分辨率	60m	

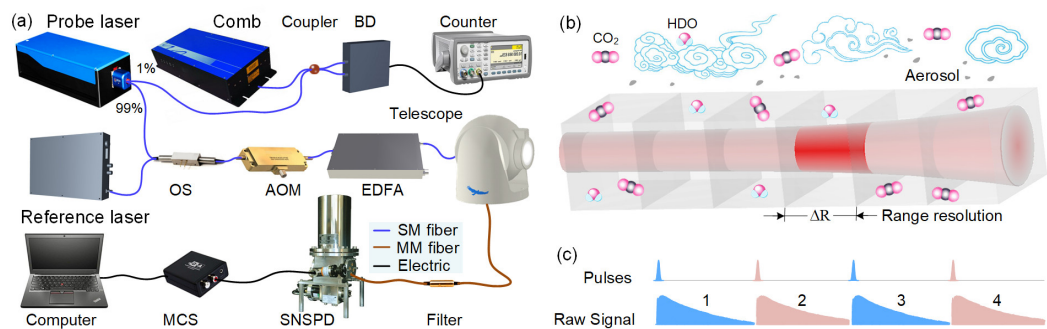


图 4.1 实验原理。(a)系统设置；(b)出射激光经历气体吸收和散射；(c)时序图

此时对 ECDL 的频率进行调谐，使其在大气中对 CO_2 和 H_2O 的吸收光谱进行扫描，同时将 ECDL 输出的另外 1%的光与飞秒频梳进行拍频，并对其频率进行精确的控制和锁定。扫描光源在经历了大气气体吸收后由望远镜接收，并用超导探测器 SNSPD 探测。下面将针对这三个模块进行具体的介绍。

4.1 发射系统

4.1.1 探测光和参考光的时分复用技术

采用时分复用技术 TDM 可以使多路信号即探测光和参考光沿着同一个通道传输。图 4.2 为实验过程中时分复用的时序图，种子光作为探测光与参考光同为连续光 CW。光开关 OS 的作用是对探测光和参考光进行逻辑操作，使得二者交替着被选通。随后探测光和参考光在经过同一个 AOM 后被斩成脉冲宽

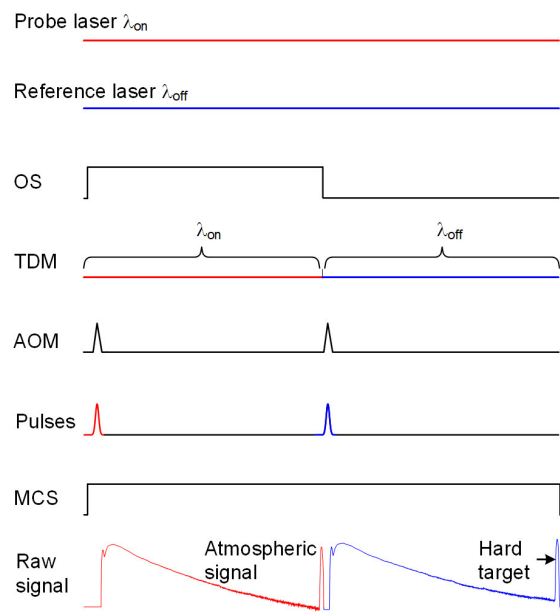


图 4.2 时分复用技术原理

度为 400ns, 重复频率为 20kHz 的脉冲序列, 对应的最远探测距离为 7.5km(2500

个 bin, 每个 bin 表示 3m), 最小距离分辨率为 60m。为了避免远处的信号和下一个信号重叠, 在 7km 位置处选择一栋大楼作为硬目标用来隔绝远处弱的信号。同时采用波分复用技术 WDM 将不同波长的探测光和参考光耦合至一根光纤, 并在系统接收端将二者分离。

4.1.2 实时校准技术

在经过时分复用和波分复用操作后, 探测光和参考光所对应的回波信号最终在时序上表现为首尾相接的形式, 通过将两个信号的每个 bin 对齐, 就可以对这两个信号进行实时校准。在进行大气气体光谱扫描时, 探测光的频率为 30 个不同的波长, 而参考光的频率一直固定在同一个不产生气体吸收的 off 频率。图 4.3 分别为探测光和参考光同为不吸收的频率处对应的回波信号以及参考光位于最大吸收频率对应的信号。由于(a)图中的两个信号对应的频率相近, 因而二者在每个距离处衰减的斜率相同, 而(b)图中探测光的频率明显比参考光衰减的快, 这是由于额外的气体吸收导致的。除此之外, 探测光和参考光在光学路径上呈现出几乎相同的抖动趋势, 这种抖动是由于湍流导致的大气不稳定及气溶胶变化等引起的。30 个探测频率实时对应了 30 个参考频率, 且这 60 个频率共享同一个脉冲调制器、放大器、望远镜、光学路径、探测器及电路系统, 因而通过将 30 组探测频率和参考频率相除, 就可以得到消除其他大气影响, 只保留待测气体吸收的差异, 从而便于在频域上得到精确的光谱分布。与 DIAL 的

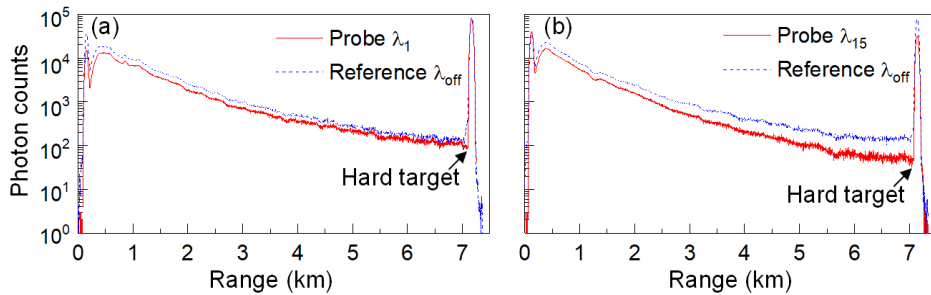


图 4.3 探测光与参考光的实时校准。(a)探测光和参考光均位于不吸收的波长; (b)探测光位于吸收中心, 参考光位于不吸收位置

两波长相比, 该系统可被认为是多套 DIAL 的集成, 极大地简化了系统的复杂程度。同时这种实时校准技术使得系统更加稳健, 能适应于不同的大气环境探测, 且不需要重复的标定过程。

4.1.3 光源搭建

光源搭建的工作流程为: 由 Toptica 激光器发射连续光, 其后连接 99:1 分束器 (C), 将分出 99%的光用于探测。在分束器后接入 AOM, 并在其后接入

隔离器以防止后向散射光造成器件损坏，其出射光连接一个 EDFA 对斩波的脉冲信号进行预放大，输出的光经过光开关抑制 ASE 噪声（强度调制），再经过另一个 EDFA 进一步放大，放大器出射的光接入探测器后用示波器观察放大后的脉冲信号。

首先将 ECDL 的中心波长粗调至 1572.335nm，测量分束器 99%端口处的功率为 29.5mW，并用信号发生器驱动 AOM，设置信号发生器的参数为：重复频率 20kHz，脉冲宽度 400ns，将 ECDL 的连续光斩成脉冲光。在隔离器后接入功率计测量此时的输出脉冲功率为 38 μ W。随后通过 EDFA 对脉冲功率进行放大，当输出功率达到 6mW 时接入保偏光纤，在功率安全的前提下连接光谱仪观察经过斩波、放大和抑制 ASE 噪声后的光谱形状和中心波长，并对 ECDL 激光器的波长进行细调节，使光谱仪上的中心波长位于 1572.335nm 附近。图 4.4 分别为 AOM 斩波和光开关抑制 ASE 的时域示意图，放大后的脉冲波形以及抑制噪声后的输出光谱形状，此时 ASE 抑制比为 60dB，最终出射至大气的脉冲能量为 40 μ J。

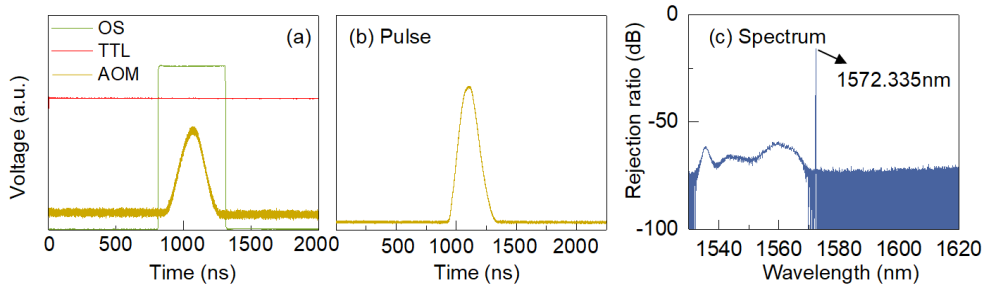


图 4.4 (a)延时调节，黄线为经过斩波和预放大后 AOM 的脉冲信号，绿线为光开关的 Analog 信号，红线为 TTL 信号；(b)经 EDFA 放大后的脉冲信号；(c)经放大后的光谱形状，泵浦电流为 5A

4.2 频率锁定系统

4.2.1 频梳重频和偏频的锁定

1. 频梳系统简介

实验中使用的飞秒光梳系统主要包括激光器、泵浦源控制器、重复频率锁定模块和载波包络偏移频率锁定模块。其中激光器由四个部分组成，分别是振荡器泵浦源、放大器泵浦源、振荡器光路和超连续光谱产生的 v -2 v 干涉光路。光梳出射的频率成分可表示为 $\nu_n = n\nu_r + \nu_{ceo}$ ，其中 n 是模式数量， ν_r 是重复频率， ν_{ceo} 是载波包络偏移频率。完成精确光频梳的产生，必须要对 ν_r 和 ν_{ceo} 都进行稳定，本系统中用铷钟作为时间基准，采用锁相环技术对 ν_r 和 ν_{ceo} 分别相位锁定。

2. 重复频率锁定

实验中飞秒光梳的重复频率即谐振腔的纵模间隔为 100MHz，该重复频率与谐振腔的腔长 L 相关，可表示为 $\nu_r=c/2nL$ 。激光器设计中可以改变折射率和腔长来改变重复频率，本系统中采用移动压电陶瓷纳米台上的镜片位置来改变腔长。

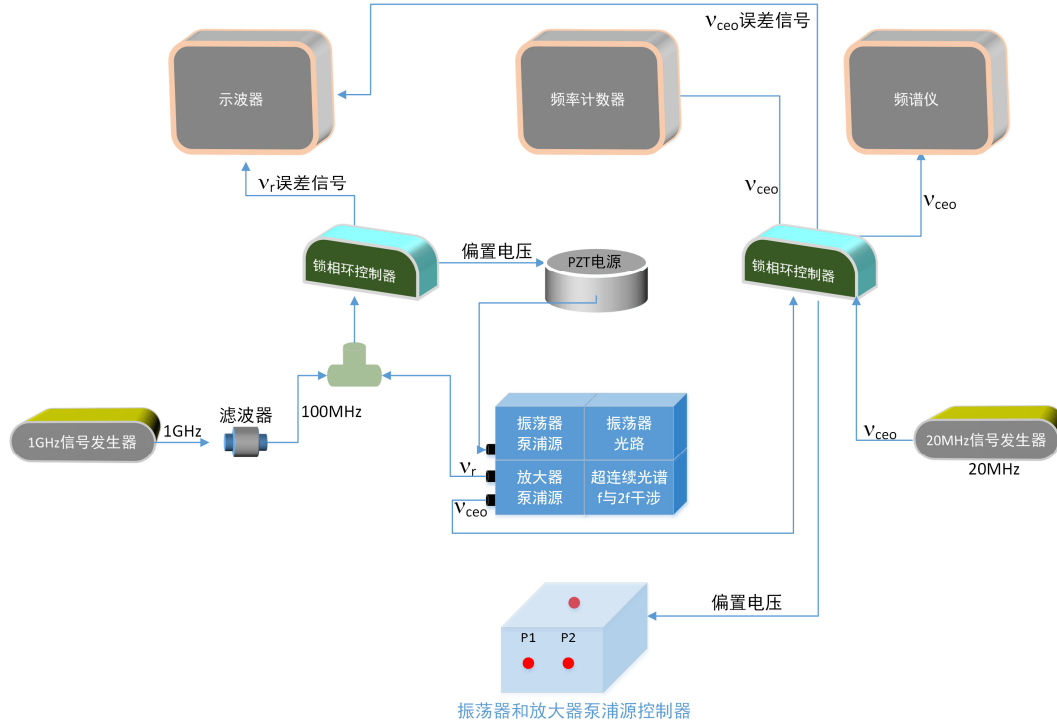


图 4.5 飞秒光梳重复频率和偏移频率锁定结构图

重复频率锁定模块见图 4.5(左)，首先 10MHz 铷钟信号参考到信号发生器，信号发生器产生 1GHz 的信号作为标准。激光器反馈回的重复频率信号在经过功分器后与 1GHz 谐波后的 100MHz 在混频器中混频，并在锁相环控制器中产生重复频率误差信号。重复频率 ν_r 的误差信号被接入示波器进行监测，锁相环控制器根据误差信号输出偏置电压信号，经 PZT 电源输出电压控制压电陶瓷，从而实现对重复频率的闭环控制。表征 ν_r 频率稳定性的艾伦方差在 1s 和 1000s 的积分时间内分别达到 5×10^{-12} 和 8.5×10^{-14} 。

3. 载波包络偏移频率锁定

实验中飞秒光梳的载波包络偏移频率 ν_{ceo} 为 20MHz，由振荡器的泵浦电流控制。 ν_{ceo} 的产生方式是飞秒激光经过非线性过程产生超连续光谱，超连续光谱的低频部分存在一频率为 $\nu_n=n\nu_r+\nu_{ceo}$ ，高频部分存在一频率 $\nu_{2n}=2n\nu_r+\nu_{ceo}$ ， ν_n 倍频后与 ν_{2n} 拍频，将会产生 $2\nu_n-\nu_{2n}=\nu_{ceo}$ 的偏移频率信号。通过闭环锁定同样可以实现 ν_{ceo} 的准确稳定。

偏移频率锁定模块见图 4.5（右），10MHz 铷钟信号参考到信号发生器，信

号发生器产生 20MHz 信号作为标准, 输出至锁相环控制器。 v -2 v 相干探测模块输出拍频信号至锁相环控制器, 拍频信号与标准 20MHz 信号鉴相后产生误差信号, 误差信号在示波器中监测, 同时激光器输出的 v_{ceo} 在光谱仪和计数器中监测。调节锁相环控制器中的偏置电压可以改变振荡器泵浦源电流, 从而改变 v_{ceo} , 在调节偏置电压至误差信号接近平坦时, 进行锁定。表征 v_r 频率稳定性的艾伦方差在 1s 和 1000s 的积分时间内分别达到 1.2×10^{-9} 和 2.4×10^{-11} 。在完成重频和偏移频率稳定时, 飞秒激光即出射稳定的频梳。

4.2.2 拍频反馈设计

将可调激光器 ECDL 与稳定后的飞秒频梳拍频即可实现 ECDL 频率的控制和锁定, 其原理如图 4.6 所示。将探测光的 1%分出并与飞秒频梳耦合至平衡探测器, 产生的拍频信号 v_b 经过一个 48MHz 的低通滤波器进行滤波后, 使拍频信号被抑制在频梳重复频率的一半。随后将滤波后的拍频频率接入计数器, 通过将计数器与计算机连接, 即可实现拍频频率的监测。

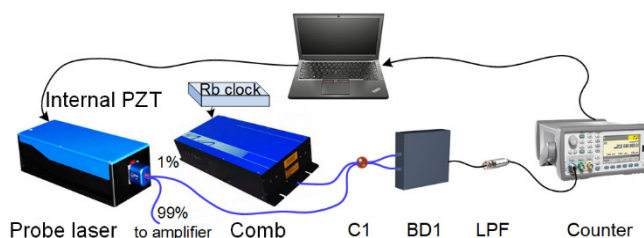


图 4.6 拍频锁定设置

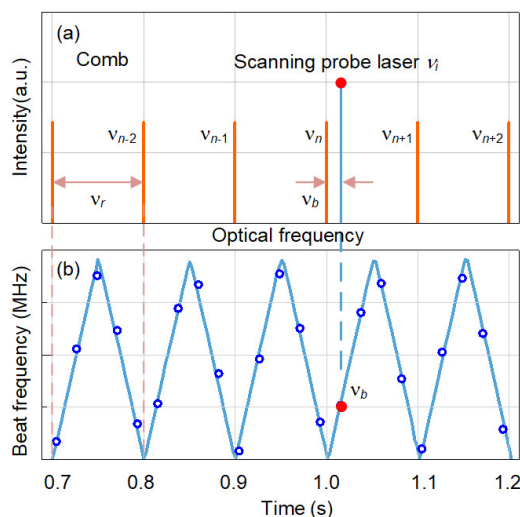


图 4.7 拍频原理。(a)探测激光器与光频梳拍频产生拍频信号 v_b ;
(b)探测激光器调谐过程中拍频频率的变化

ECDL 的频率可由电机和 PZT 共同控制, 其中电机控制一般用于频率粗调谐, 而 PZT 则用于细调谐。首先通过电机将 ECDL 的频率粗调至初始位置 v_e ,

此时再通过 PZT 对 ν_e 进行细调节。在对 ν_e 调谐的过程中，拍频信号也会发生变化，并表现为以峰值为 50MHz 的三角波变化，如图 4.7 所示。拍频信号每经历一次峰值，则表示 ECDL 与下一根频梳的梳齿进行拍频，对应着 $\nu_e = n\nu_r + \nu_{ceo} + \nu_b$ 中 n 的值增加 1。在 ν_b 的变化过程中，就可以得到 ECDL 的相对频率 ν_e 变化。PZT 电压变化范围为 0-140V，对应的频率可调谐范围为 0-40GHz，图 4.8(a)显示了电压范围分别为 0-50V，0-100V 及 0-140V 时对应的相对光频的变化。从图中可以看出电压和相对光频之间的函数关系可以描述为类似磁滞回线的形状。在 PZT 电压往某一个方向调节时对应的相对光频的变化具有可重复性，因而可以将这一特性用于程序化的频率采样间隔的控制。

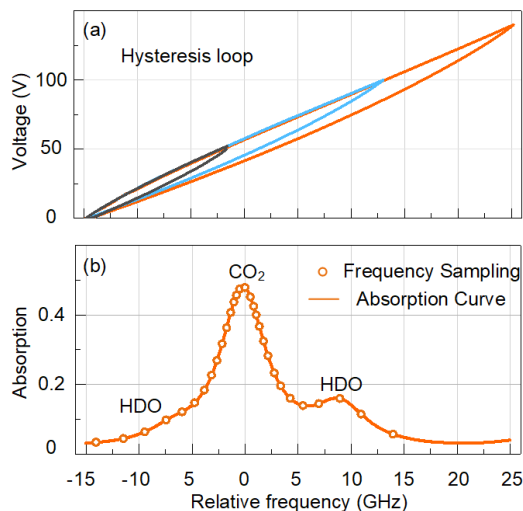


图 4.8 (a)探测激光器的频率与电压间对应的磁滞回线映射关系，不同颜色表示不同的 PZT 电压调谐范围；(b)CO₂ 和 HDO 的理论吸收线型

4.2.3 自适应频率扫描与锁定

1. 频率扫描与锁定

频率扫描与锁定的过程可表示为：

(1) 对图 4.8(a)的磁滞回线进行拟合，得到普适性的电压与相对频率的变化关系。

(2) 对应于 CO₂ 和 HDO 探测，在 R16 线上选择一系列的频率对其光谱进行采样，该吸收线的 FWHM 约为 4.5GHz，选择的起始频率之间的范围为 30GHz，对应的频率扫描范围为 $\nu_{e0} - \nu_{ei}$ ，其中 i 为采样频率的数量，该频率数量和间隔均可自定义。

(3) 确定采样的频率数量以及频率扫描间隔。一方面，采样点越多越有利于光谱拟合，但另一方面，也会导致累积时间增加，同时降低时间分辨率，因而需要在这两者之间进行权衡。在本次实验中，频率的数量选为 30 个，采样间

隔如图 4.8(b)所示。

(4) 在采样方式确定后, 通过图 4.8(a)确定对应的电压间隔。将 ECDL 的初始位置粗调至 v_{e0} , 并将该频率对应的初始 PZT 电压调至 0V。记录此时的拍频频率为 v_{b0} , 并设定一个拍频锁定值为 25MHz。将 v_{b0} 与 20MHz 比较, 然后通过程序控制 PZT 电压变化, 最终使 v_{b0} 锁定在 25MHz (见下节), 并开始时间累积以进行该频率处的光谱探测。在该过程中, ECDL 的光频率和拍频频率均表现为平的台阶, 如图 4.7(c)和(d)的锁定过程所示。

(5) 根据确定的电压间隔将 ECDL 的频率调至下个位置, 在该过程中对应的光频率沿着斜坡变化, 见图 4.9(a)的调节过程。当 PZT 电压达到 v_{e1} 对应的电压值时, 此时再启动如 (4) 中的反馈锁定机制, 完成该频率的光谱探测。此后重复 (4) 和 (5) 的操作, 直至完成 30 个频率的光谱扫描。

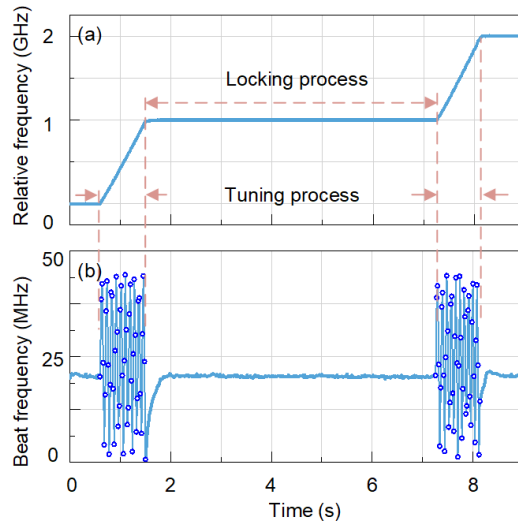


图 4.9 (a)频率调谐和锁定过程中相对光频率的变化; (b)频率调谐和锁定过程中拍频频率呈现三角波状的变化

2. 程序控制

频率的锁定采用逼近算法, 在实际拍频频率与锁定拍频频率的差异 Δv_b 大于允许相对偏差值时 (在本次实验中为 $\pm 1\text{MHz}$), 此时对对应的控制电压进行增大调节, 并观察 Δv_b 的变化。若 Δv_b 连续远离允许的相对偏差值, 则减小对应的控制电压, 直至 Δv_b 满足设定的要求。在 Δv_b 逐渐接近允许偏差值的过程中, PZT 的电压由粗调节变为细调节, 待满足条件的 Δv_b 连续达到 90-110 次后, 可认为该点的频率已稳定锁定。此时通过脉冲累积方式采集该频率在大气中的回波信号。将每个频率的锁定过程定义为一个扫描台阶, 该扫描台阶的累积时间可自定义, 如在气体光谱的边线位置吸收变化快, 可以适当增加脉冲累积时间, 在光谱中心和两翼位置则可以适当减少脉冲时间, 这种设置有利于提高时间分辨率。

4.2.4 锁定结果

当 PZT 从一个电压位置突然调至下一个电压位置时，会由于类似“惯性”的作用使得当前所对应的频率值不再是所期望的值。为了评估拍频锁定的效果，通过调节 PZT 对 ECDL 的频率进行调节，并从调节结束后立即开始监测在不锁定和锁定情况下拍频频率的变化。如图 4.10 所示，不锁定的拍频频率由于 PZT 的“惯性”会先经历 150MHz 的快速漂移，并在随后的过程中发生约 40MHz

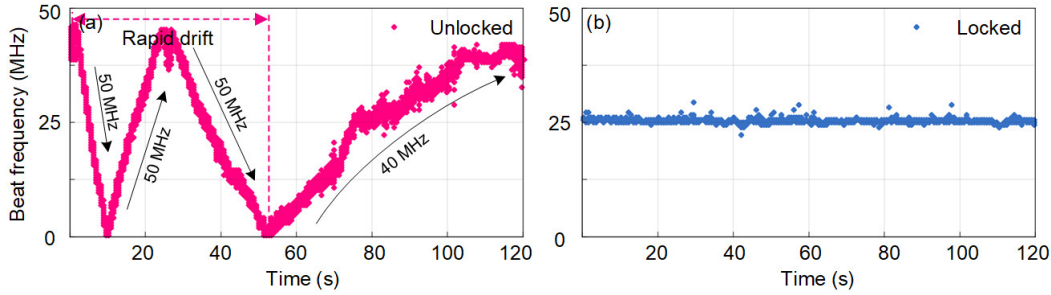


图 4.10 (a)不锁定和(b)锁定对应的频率漂移

的缓慢漂移，在 120s 的时间内对应的总漂移约为 200MHz。对于锁定的情况，由于在 PZT 调节至某一电压值后，反馈机制立即启动，并始终将 ECDL 的频率稳定在预设的锁定值 25MHz 附近，从而限制了频率的漂移。在 120s 的时间内，锁定的拍频频率的标准偏差为 0.5MHz，该精度高于光谱扫描所需的 2-20MHz 的要求。

4.3 接收系统及数据处理

4.3.1 超导探测器

在接收模块，通过采用超导探测器可提高探测的信噪比，以实现距离分辨的光谱测量。在实验中，SNSPD 在 2.2K 的 Gifford–McMahon (G-M)低温冷却器下运行，为了提高探测器的最大计数率，将 SNSPD 的大面元分为 9 个像素，其中每个像素由两个超导纳米线雪崩光电探测器 (SC-2SNAP) 连接组成。SNSPD 阵列由 9 个自制的电气模块偏置并读取，放大后的输出信号被反馈至多通道定标器。该 SNSPD 在 1572nm 的最大探测效率为 31.5%，暗计数为 100 计数每秒。由于采用了多像素布局 and SC-2SNAP 的结构，因此 SNSPD 探测器的最大计数率高于 30MHz。此外，通过使用 G-M 低温冷却器内部的光学滤波器，这种基于多模光纤耦合的 SNSPD 的暗计数很低，同时可以实现约 $5.7 \times 10^{-18} \text{W/Hz}^{1/2}$ 的低噪声等效功率。图 4.11 为 SNSPD 的计数率校准，从图中可以看出，在量子效率高于 30%时 SNSPD 的计数率达到了 20MHz。实验中的计数率低于

7MHz，因而 SNSPD 在其线性操作范围内。

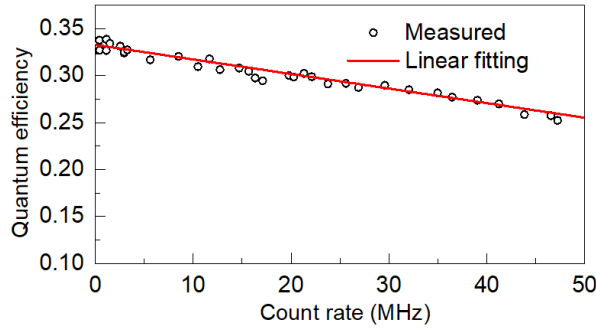


图 4.11 超导探测器计数率校准

4.3.2 数据接收系统

在对探测光进行锁定并与参考光同时出射至大气后，其后向散射信号进入 50 μm 的多模光纤，并由数值孔径为 0.22，视场角为 90 μrad ，直径为 256mm 的望远镜接收。同时利用中心位于 1572.335nm，带宽为 $\pm 0.15\text{nm}$ ，峰值透过率为 85%的平顶滤波器来抑制太阳背景噪声，以实现昼夜连续观测。50 μm 大直径的 SNSPD 可提高耦合效率($\sim 75\%$)来进一步减小大气湍流的影响。图 4.12 分别为白天和夜间的原始后向散射信号，从图中可以估计背景噪声和暗计数率。白天的背景噪声主要由太阳辐射主导，对应的计数率为 30kHz，该值通常还与天气有关。在夜间为了减少插入损耗不再使用带通滤波器进行滤波，此时背景噪声主要包含了 SNSPD 的暗噪声以及城市的霓虹灯光等，对应的总计数率为 1kHz。

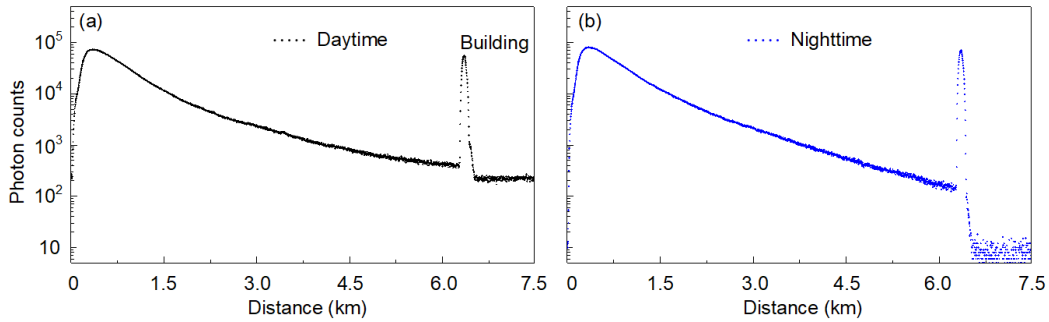


图 4.12 (a)白天和(b)夜间的回波信号

4.3.3 数据处理流程

在得到如图 4.10 所示的回波信号后，需要对其进行处理以提取包含气体浓度的光谱信息。数据处理过程如图 4.13 所示，具体包含以下步骤：

1. 将探测光扫描 30 个频率与参考光固定在 off 频率得到的 60 条后向散射廓线对应的光子数分别记为 $N_i(v_i, R_j)$ 和 $N_0(v_0, R_j)$ ，其中 i 为 1~30。对所有原始信号进行降噪处理。

2. 由于探测光的频率为扫描出射，因而需要对针对其不同频率进行校正。首先测出扫描光谱范围内的光学响应 $H_r(\nu_i)$ 及 EDFA 的非均匀光学增益 $H_r(\nu_i)$ ，然后将这两项用于 $N_i(\nu_i, R_j)$ 的校正，并记为 $N_i(\nu_i, R_j) \cdot G(\nu_i) \cdot H_r(\nu_i)$ 。
3. 考虑到每个探测光都实时对应一个参考光，通过计算二者的比值 $N_i(\nu_i, R_j) \cdot G(\nu_i) \cdot H_r(\nu_i) / N_0(\nu_0, R_j)$ 就可以减小大气湍流导致的气溶胶变化、激光功率波动、探测器不稳定及信号耦合效率不稳定等因素的影响。经过该步骤后即可得到包含 CO_2 和 HDO 从 0 - R_j 路径积分的混合光学深度光谱，记为 $DOD(\nu_i, R_j)$ 。
4. 根据 $DOD(\nu_i, R_j)$ 可计算出在距离 $R=(R_j+R_{j+1})/2$ 处以 $\Delta R=R_{j+1}-R_j$ 为距离分辨率的 CO_2 和 HDO 混合光学深度光谱，计算过程为 $\Delta DOD=DOD(\nu_i, R_{j+1})-DOD(\nu_i, R_j)$ 。
5. 通过对距离分辨的混合光谱进行三峰拟合，可以分离出 CO_2 和 HDO 单独的吸收。在拟合过程中主要的限制因素有：三条吸收线的相对中心频率位置、两条 HDO 吸收的相对峰位置以及由原位仪器测量的大气温压计算的 FWHM。
6. 在经过上述光谱拟合后可得到 CO_2 和 HDO 的面积和响应的拟合误差，由此计算得到二者的浓度分布。
7. 将所计算的浓度与原位仪器的测量结果进行对比和验证，并进行误差分析。

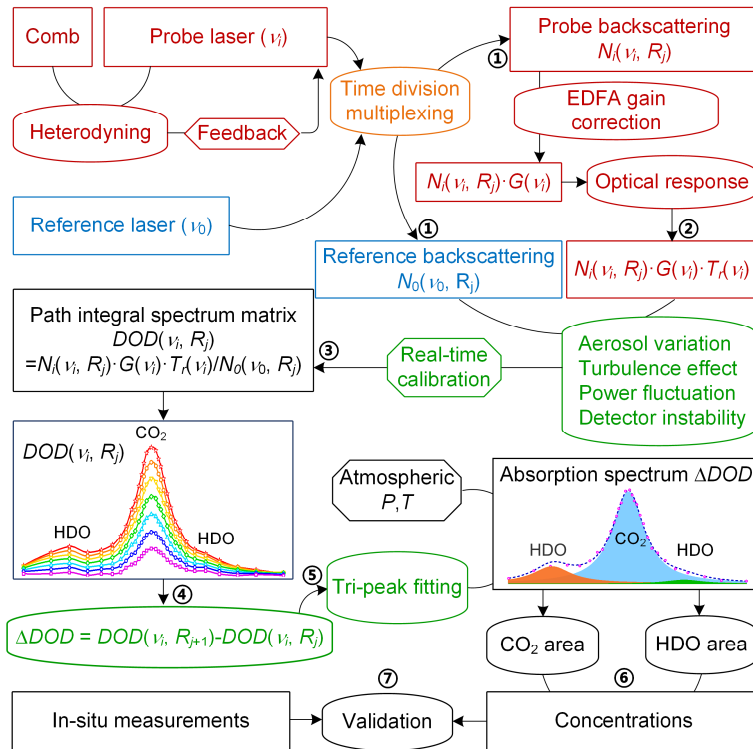


图 4.13 数据处理流程图

4.4 光学深度光谱分析

该套基于单光子自由空间分布式光谱测量的系统被用于进行大气光谱遥感的实验。实验地点在中国科学技术大学教学行政楼(N31°50'37", E117°15'54"), 其中该系统被放置在离地面高度为 50m 的楼顶位置。除此之外, 在实验过程中为了便于比较, 分别在沿着光学路径 2km 和 4km 位置处放置了点式的 CO₂ 分析仪(Thermo Scientific 410i)及用于温压和湿度监测的传感器(Vaisala windcap WMT52)。

4.4.1 Lorentz 和 Voigt 拟合的影响

根据实验当天点式仪器记录的温压数据分别计算得到了 CO₂ 光谱的洛伦兹展宽 ω_C 和高斯展宽 ω_D , 其中 $\omega_C \approx 4.41\text{GHz}$, $\omega_D \approx 0.35\text{GHz}$, 满足 $\omega_C > 5\omega_D$, 且通过 ω_C 和 ω_D 的值可计算得到对应的 voigt 展宽为 $\omega_V \approx 4.43\text{GHz}$, 即 $\omega_C \approx \omega_V$ 。为了进一步研究 Lorentz 和 Voigt 函数拟合的影响, 分别采用这两种方式对所得的光谱进行了拟合对比, 如图 4.14 所示。其中图(a)的 Voigt 拟合对应的拟合的残差平方和 RSS 和确定系数 R^2 分别为 1.173×10^{-6} 和 0.99589, 而图(b)的 Voigt 拟合对应的 RSS 和 R^2 分别为 1.155×10^{-6} 和 0.99595。通过对比可以发现二者的拟合误差接近, 且 Voigt 对应的误差稍小于 Lorentz 的误差。因而在接下来的分析中, 均采用 Voigt 线型对所得光谱进行拟合。

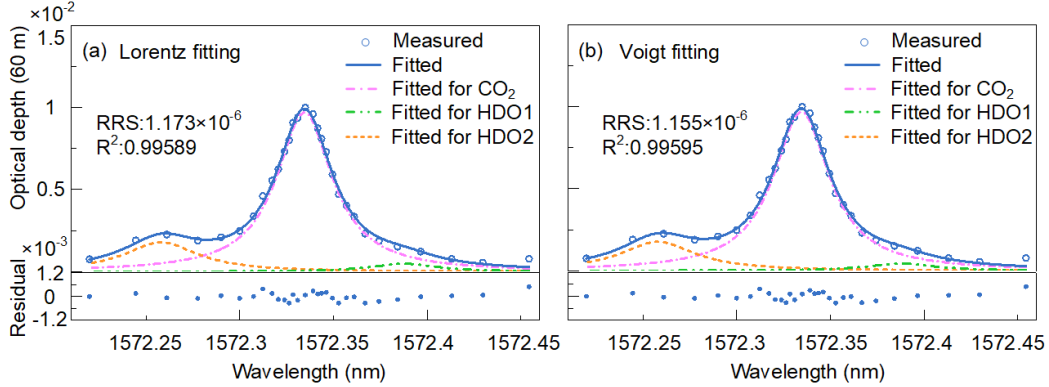


图 4.14 (a)Lorentz 和(b)Voigt 拟合对比

4.4.2 频率扫描间隔的影响

实验 1 是关于频率扫描的可控性和自适应性的验证, 并于 2020 年 8 月 5 日晚 21:00 进行。由于实验中的脉冲宽度为 400ns, 对应的距离分辨率为 60m。为了提高信噪比, 在进行扫描间隔比较的过程中采用 120m 的距离累积。图 4.15 为不同频率采样模式所得的光谱对比。从图中可以看出, 图(a)对应的非均匀采样模式中大部分的扫描频率位于 CO₂ 吸收线的边线位置, 而较少的频率位于其两翼位置, 因而这种模式更适用于提高 CO₂ 的测量精度。通过对该光谱进行

Voigt 拟合可以发现, CO_2 面积拟合误差为 1.17%, 约为 HDO 拟合误差 11.03% 的 1/10。而图(b)对应的均匀采样则将更多的频率用于对其两翼进行采样, 此处主要包含了 HDO 的吸收, 反而在 CO_2 边线斜率变化快的位置分布的频率很少。

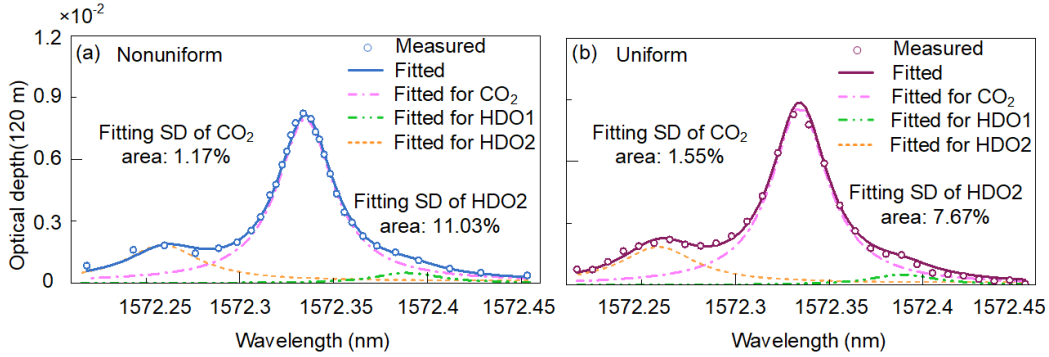


图 4.15 (a)非均匀采样和(b)均匀采样对比

因而在这种情况下 CO_2 的测量误差会增大, 而 HDO 的精度则会提高。图(b)的面积拟合误差显示, CO_2 面积的标准偏差为 1.55%, HDO 的标准偏差为 7.67%, 此时 CO_2 的误差约为 HDO 的 1/5。在这里 CO_2 的误差始终比 HDO 的误差小, 这是由于该吸收线位置 CO_2 的吸收为主要的, 其线强度也远大于 HDO 的强度, 但是通过调整采样模式可适当提高 HDO 的测量精度。本次实验采用的采样模式为非均匀采样, 如图(a), 旨在得到更高精度的 CO_2 探测, 后续为了提高 HDO 的精度, 可将采样模式改为均匀采样, 如图(b)。

4.4.3 频率锁定与不锁定的影响

实验 2 是关于频率锁定对大气光谱探测影响的进一步研究, 并于 2020 年 10 月 9 日晚 22:00 进行。每个出射频率对应的累积锁定时间为 16s, 在调节过程所需的时间为 4s, 因而对应的时间分辨率为 10min。图 4.16(a)为当出射扫描探测光的出射频率时对应的回波信号, 从图中可以看出最远探测距离可达到 6km 以上。该回波信号对应的随机噪声主要为泊松分布的散粒噪声, 因而信噪

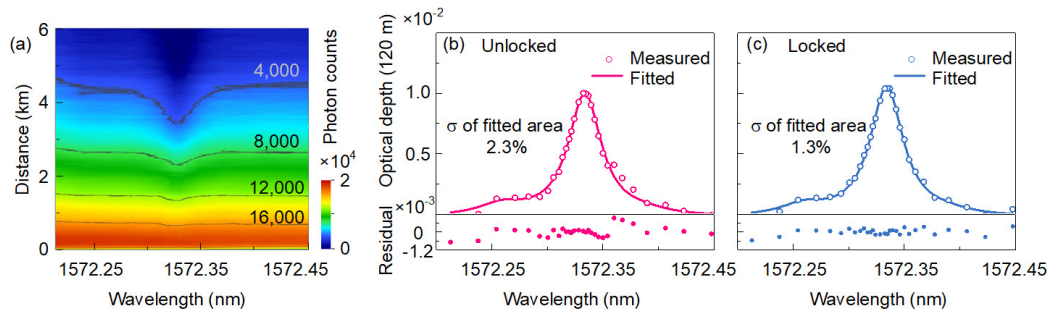


图 4.16 (a)原始回波信号, (b)频率不锁定和(c)频率锁定的光谱

比可根据光子数的均方根来估算。此外，气体在中心频率的吸收最大，并沿着两边逐渐减小；同时总的吸收随着测量距离的增大而增大。通过对(a)中原始回波信号进行处理，就可得到气体的光学深度光谱。图 4.16(b)和(c)分别为在频率不锁定和锁定情况下测得的时间分辨率为 10min，距离分辨率为 120m(3.94~4.06km 差分)的光学深度光谱。由于本次实验在秋季进行，对应的 H_2O 和 HDO 浓度较低，因而图中的光谱主要为 CO_2 的吸收。从该图中不难发现在图(b)中不锁定的情况下所得的光谱抖动较大，这是由于未锁定的采样频率在扫描过程中的自由漂移使得测量光谱逐渐偏离实际的线型导致的。同时图(c)中锁定的光谱保持稳定的状态。通过对这两个光谱进行 Voigt 拟合，可得到不锁定和锁定对应的面积拟合误差分别为 2.3%和 1.3%，由于反演的浓度与面积成正比，该误差可对应至浓度反演的精度。此外，图(b)和(c)下方的残差图显示二者拟合的标准偏差分别为 3.5×10^{-4} 和 2.1×10^{-4} ，因而通过对扫描的频率进行锁定可提高约 1.7 倍的测量精度。

4.4.4 不同季节的光谱分析

实验 3 是关于不同季节扫描得到的光谱分析，并分别于 2020 年 1 月 3 日(冬)和 2020 年 8 月 18 日(夏)两个季节进行，测量时间均为晚上 21:00。根据 Vaisala windcap WMT52 监测的数据显示，两次实验的 H_2O 浓度分别为 3730ppm 和 24868ppm，对应的 HDO 浓度分别为 1.2ppm 和 7.8ppm。图 4.17 分别显示了这两种情况下测量的 4km 处时间分辨率 10min、距离分辨为 120m 的 CO_2 和 HDO 混合光谱。从图中可以看出冬季和夏季光谱有明显的区别，即图(a)中冬季的光谱由于 HDO 吸收很弱，呈现出左右对称的形状，而图(b)中波长小的一侧存在

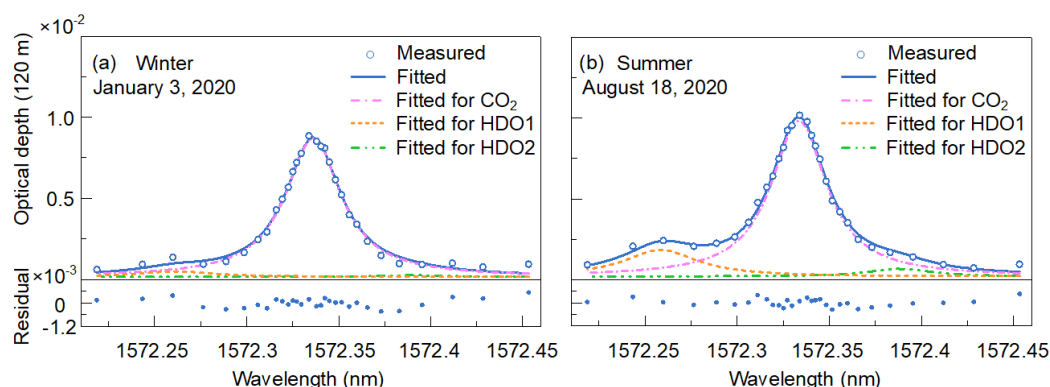


图 4.17 不同季节光谱对比。(a)冬季；(b)夏季

明显的 HDO 吸收，表现为有翘起的峰的存在。此次测量结果与前面分析的数据库中冬夏两个季节对应的光谱形状一致，验证了本次测量的准确性。在此前的研究中，这种由于 HDO 浓度的季节变化所导致的混合光谱的不同并没有得

到充分考虑，通常情况下该 R16 吸收线处的混合光谱都只考虑了 CO_2 的吸收。然而不管是从理论的模型分析，还是通过实际的实验观测，都可以发现此处 HDO 的影响是不可被忽略的，尤其对于夏季测量的情况。

目前针对该 R16 线测量 CO_2 的浓度大多是基于双波长的差分吸收激光雷达 DIAL，这种影响是无法被消除的。此外尽管 NASA 戈达德飞行中心也对该吸收线做了柱积分式的光谱探测，但其并未测得该处 HDO 的浓度分布。在利用本系统进行距离分辨的光谱遥感过程中，通过对不同季节的光谱进行三峰 Voigt 拟合，这种 HDO 吸收的影响可被分离出来，同时 HDO 的浓度也能通过分离出的光谱被反演出来。

4.5 浓度结果分析

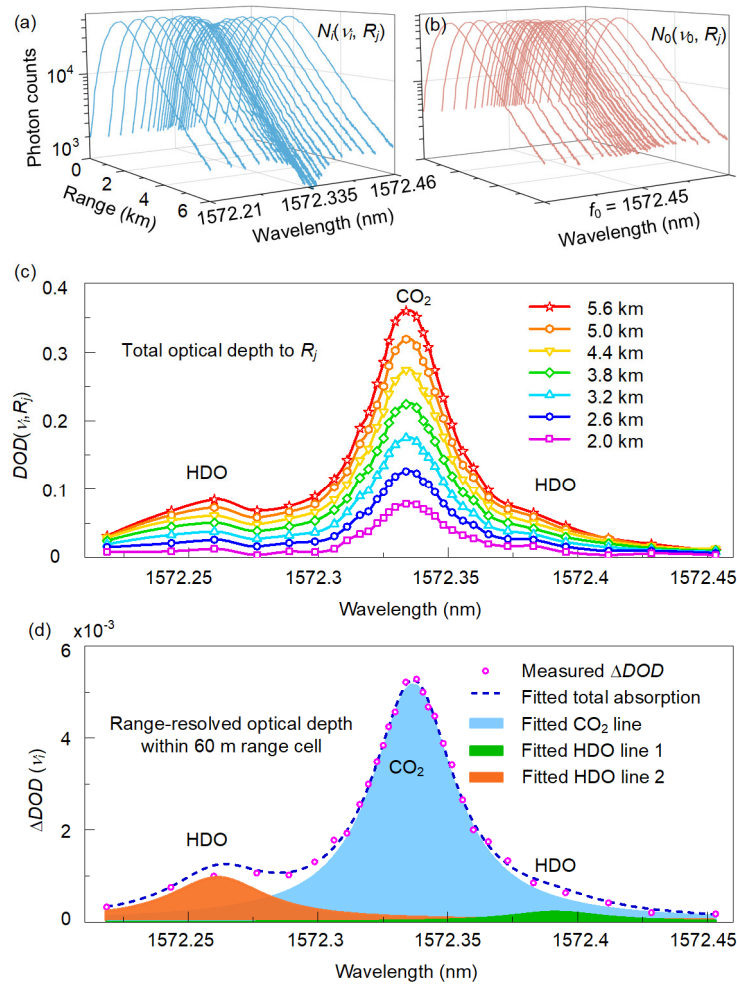


图 4.18 后向散射信号和光谱。(a)探测光扫描出射 30 个波长对应的回波信号；(b)参考光保持固定波长对应的回波信号；(c)随距离累积的混合光谱；(d)60m 距离分辨的混合光谱

实验 4 是在基于上述讨论和分析的基础上进行连续的场外观测实验，并最

终反演出浓度和对应的误差，连续观测时间为 2020 年 9 月 25 日~28 日。在进行浓度反演时，采用距离分辨率为 400ns 脉冲宽度对应的最小能分辨距离即 60m， CO_2 对应的时间分辨率为 10min，而 HDO 由于其吸收较弱，采用的时间分辨率为 30min。图 4.18(a)和(b)分别对应了此次实验的探测光和参考光的后向散射信号 $N_i(v_i, R_j)$ 和 $N_0(v_0, R_j)$ 。从图(a)的探测信号中可以明显看出 CO_2 的吸收，尤其是在中心波长的位置，而图(b)的参考信号的所有波长均不产生吸收。图(c)和(d)分别为经过数据处理后得到的不同距离处路径积分的 CO_2 和 HDO 总光学深度 DOD 以及不对应的 4km 位置处的距离分辨的光学深度 ΔDOD 。此外对 ΔDOD 进行多峰拟合后， CO_2 吸收线和两条 HDO 吸收线被分离，用于后续的长度反演和误差分析。

4.5.1 误差分析

图 4.19(a)和(d)分别为 9 月 27 日 06:00 测得的 CO_2 和 HDO 距离分辨的浓度分布，其中 CO_2 的浓度有随着距离逐渐升高的趋势，而 HDO 的浓度随着距离的变化较平稳。随着距离的增加，对应的信噪比降低，因而二者的反演精度在远距离处均有所降低。图 4.20 展示了该测量时刻 CO_2 和 HDO 反演误差随距离的变化，二者误差变化趋势一致，且与前面预测的理论模型（图 3.13）一致。

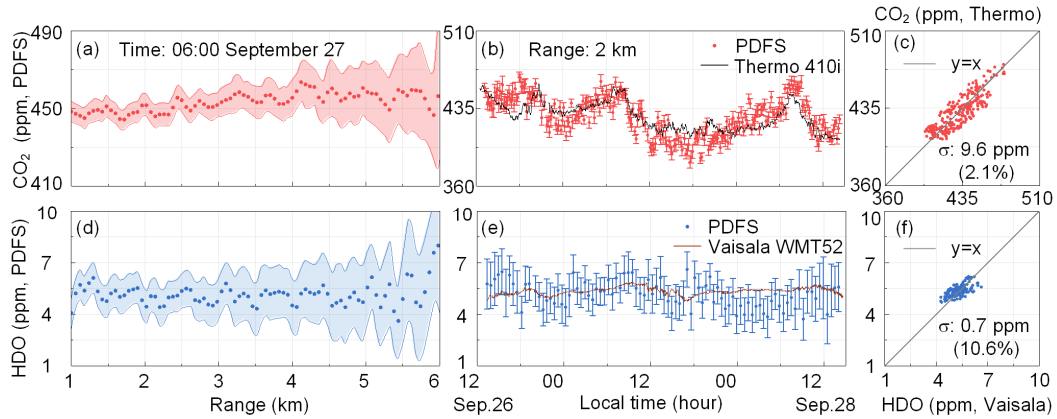


图 4.19 浓度及误差分析。(a) CO_2 和 (d)HDO 距离分辨的浓度分布；(b) CO_2 和 (e)HDO 在 2km 位置处与原位仪器的对比；(c) CO_2 和 (f)HDO 的对比误差

CO_2 在 1km 处的最小误差约为 1%，在 6km 处的最大误差约为 5.25%；HDO 的最大和最小误差分别为 12%~47% 左右。图 4.19(b)和(e)分别为光学路径 2km 处反演的 CO_2 和 HDO 浓度与原位测量的结果对比，其中横坐标对应的时间为 9 月 26 日 12:00~28 日 15:00，经统计该位置处的 H_2O 和 CO_2 的平均反演误差约为 $\pm 5.4\text{ppm}$ 和 $\pm 0.9\text{ppm}$ ，对应至环境浓度即为 $\pm 1.2\%$ 和 $\pm 14.3\%$ 。此外，从图中可

以看出两种气体的昼夜连续变化均与原位测量的变化趋势一致。图 4.19(c)和(f)分别对应了反演的 CO_2 和 HDO 浓度与原位仪器之间的误差统计，对应的误差分别为 9.6ppm 和 0.7ppm，即 2.1%和 10.6%。

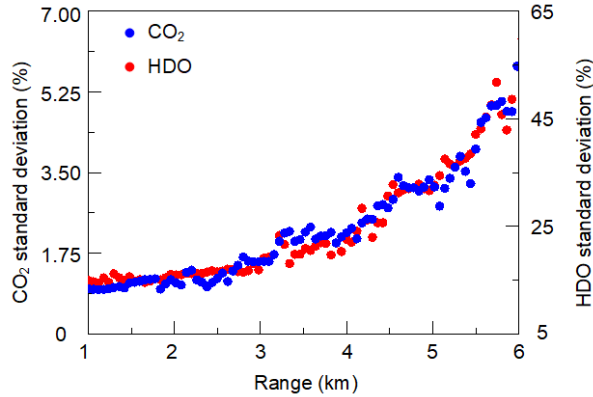


图 4.20 CO_2 和 HDO 反演误差随距离变化

4.5.2 地表浓度与湍流强度的耦合关系

图 4.21(a)和(b)分别为 CO_2 和 HDO 在 72 小时的测量时间内随距离的三维变化图。图(a)显示在白天的测量过程中， CO_2 的浓度在 1.2~2.5km 以及 4.0~4.5km 附近表现出类似“脚印”的形状，其浓度值低于其他距离处的值，这是因为在测量的光学路径上对应的这两个距离处有两个公园，公园里的植物在白天进行光合作用吸收 CO_2 并释放出 O_2 导致的。除此之外， CO_2 和 HDO 的浓度沿着探测路径均呈现出类似条纹状的波动，这一现象受多种因素影响，如湍流引起的耗散、大气传输、人类活动或工业生产等。下面将通过在实验路径上放置其它仪器，用于监测周边的风场及湍流信息，以便于进一步分析 CO_2 和 HDO 的浓度变化。

在系统所在位置处放置了一台自制的相干多普勒激光雷达 CDWL 主要用于监测当时的气象条件，图 4.21(c)-(f)分别为 CDWL 测得的载噪比 CNR、风速、风向以及湍流耗散率 TKEDT 的结果。其中 CNR 表征了平均射频信号功率与平均噪声功率的比值，可以反映气溶胶的后向散射强度。根据图(c)可以发现在实验过程中几乎没有来自外部的气溶胶传输，同时也没有气溶胶突然沉降的现象。另外图(d)和(e)中的观测结果也显示在近地面，风速基本小于 5m/s，风向主要以东风为主。考虑到在实验地点即中国科学技术大学的东边没有大型工厂，因而可从相对稳定的风场判断 CO_2 和 HDO 的局域浓度几乎不受外来传输的影响。

同时为了监测大气中的湍流情况，在离地面同样高度处放置了一台闪烁仪 (Kipp & Zonen LAS MKII)，该闪烁仪可测量 900m 路径平均的大气折射率常数 C_n^2 ，用于表征近地面的湍流强度，其发射和接收端分别位于沿光学路径 1.1km 和 2km 的位置。图(g)为 2km 路径上 CO_2 的浓度与闪烁仪测得的近地面 C_n^2 的对

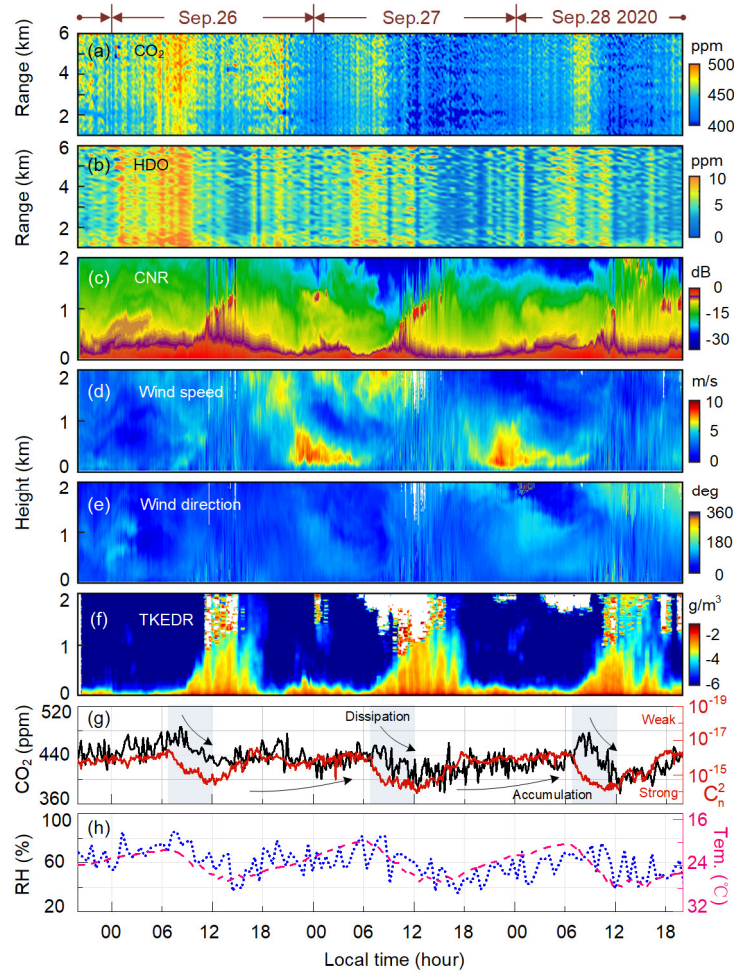


图 4.21 浓度与湍流的关系。(a)CO₂ 和(b)HDO 的时空浓度分布；由相干激光雷达观测和反演的(c)载噪比、(d)水平风速、(e)水平风向和(f)湍流耗散率；(g)2km 位置处 CO₂ 浓度与地表大气折射率常数（纵坐标反转后）的对比，(f)由 HDO 反演的 2km 处相对湿度与温度（纵坐标反转后）的对比

比，其中为了便于分析，在画图时对 C_n^2 的纵坐标进行了翻转。从图(g)中可以看出在整个连续观测的过程中，湍流强度在每天早晨的 08:00~12:00 逐渐增强，同时，CO₂ 的浓度逐渐耗散。随后湍流强度在每天的下午开始衰减，并且在夜间一直维持较弱的状态，此时对应的 CO₂ 浓度开始逐渐积聚。一方面，从图中可明显看出湍流强度与 CO₂ 浓度之间存在关联，即在观测期间 CO₂ 浓度随着 C_n^2 的日周期变化呈现出与之相反的周期性。另一方面，在二者变化的过程中存在一定的时间延迟，该现象在早晨尤为明显。因而可以认为图(a)和(b)中的浓度在几千米的距离上（通常是星载仪器的分辨率）表现出的条纹状波动主要是由于边界层的大气条件变化，尤其是湍流变化引起的。

图 4.21(h)为测得的 2km 路径上根据 HDO 浓度反演得到的相对湿度 RH 的分布与 WMT 52 测得的温度对比，其中对温度的纵坐标进行了翻转。一方面，

RH 和图(g)中 CO_2 浓度的昼夜变化趋势保持一致。另一方面, RH 的变化与温度的变化完全相反, 只有在空气中 HDO(可映射至绝对湿度)的含量变化不大时才会导致这一现象。原因在于当温度升高时, 空气中含 HDO 的饱和量增大, 因而致使相对湿度下降, 反之相对湿度则上升。相对湿度是根据 HDO 和 H_2O 的自然丰度以及饱和蒸气压的对应关系进行计算的, 其中 HDO 和 H_2O 的自然丰度分别为 0.000311 和 0.997317。

4.6 讨论

4.6.1 其他气体光谱遥感的可行性讨论

考虑到实验中扫描激光器的调谐范围为 1530~1620nm, 因而可用于探测在该范围内存在吸收光谱的其他多种大气气体。表 4-2 列举了理论上可被探测的几种常见气体的光谱参数, 其中最优浓度下限表示当这些气体在 2km 内的光学深度满足前面分析的 $OD > 0.02$ 的临界条件。当气体的最优浓度下限大于其在大气环境中的浓度时可实现较小误差的测量。从表格中可以看出在 1530~1620nm 范围内, CO_2 和 HDO 这两种气体具有满足测量条件的吸收线。对于 CO 而言, 其环境浓度值约为 1.5ppm 左右, 但在城市尤其是汽车尾气排放较多的区域浓度值会达到 70ppm 以上, 该值刚好接近于可探测的最优浓度下限, 理论上可以被用来进行光谱分析。此外, 其他气体如 C_2H_2 和 NH_3 在环境中的浓度远小于最优浓度下限, 因而只考虑在气体泄漏的情况下进行这两种成分的分析。

表 4-2 气体吸收线参数

分子式	波数 (cm^{-1})	波长 (nm)	线强度 $\text{cm}^{-1}/$ ($\text{molec} \cdot \text{cm}^{-2}$)	基态能量 (cm^{-1})	环境浓度 (ppm)	最优浓度 下限(ppm)
CO_2	6359.967	1572.352	1.808×10^{-23}	106.130	420	55
H_2O	6443.085	1551.867	8.191×10^{-25}	1006.116	18600	1170
HDO	6360.278	1572.258	2.774×10^{-22}	100.391	6	4.5
CO	6377.407	1568.035	2.251×10^{-23}	107.642	1.5	70
C_2H_2	6574.361	1521.060	1.333×10^{-20}	65.887	1×10^{-4}	0.9
NH_3	6568.307	1522.462	2.571×10^{-21}	85.068	3.6×10^{-3}	0.45

4.6.2 大气温度遥感的可行性讨论

由于电子基态中的转动和振动状态分布会随温度变化, 因此吸收线强度也会随气体温度变化。与气体浓度遥感需要选择温度不敏感的吸收线不同, 大气温度的测量需要尽可能选择温度敏感的线, 同时还要具备合适的线强度。其中

温度敏感性与基态能量成正比，因而在选择吸收线时要使基态能量足够高且使线强度足够强。从表 4-2 中可以看出， H_2O 在 1551.867nm 的吸收线强度对应的光学深度满远大于探测的下限，因而接下来主要讨论其基态能量的值能否满足温度测量的要求。目前 DIAL 也已广泛被用于大气温度的测量，主要利用的是 O_2 在 760nm 附近吸收线的高温敏感特性。

表 4-3 用于测温的气体吸收线参数

分子式	波数(cm^{-1})	波长(nm)	线强度($\text{cm}^{-1}/(\text{molec}\cdot\text{cm}^{-2})$)	基态能量(cm^{-1})
O_2	12977.107	770.5878	0.218×10^{-25}	1608.066
	13161.431	759.7958	0.489×10^{-25}	1420.763
	12999.957	769.2333	1.11×10^{-25}	1248.201
	13012.582	768.4870	2.19×10^{-25}	1083.433
H_2O	6574.361	1551.867	8.191×10^{-25}	1006.116

表 4-3 列出了几条常用于测温的 O_2 以及 H_2O 在 1551.867nm 处的吸收线参数，其中 H_2O 的基态能量与 O_2 在 768.4870nm 处对应的值相当。为了进一步分析 H_2O 的温度敏感性，图 4.22 对这 H_2O 和 O_2 以及针对于反演浓度的 CO_2 吸收线的温度敏感性进行了对比。从图中可以看出， H_2O 在 1551.867nm 和 O_2 在 768.4870nm 处的吸收线温度敏感性远高于 CO_2 ，因而理论上可被用于大气温度的遥感测量。

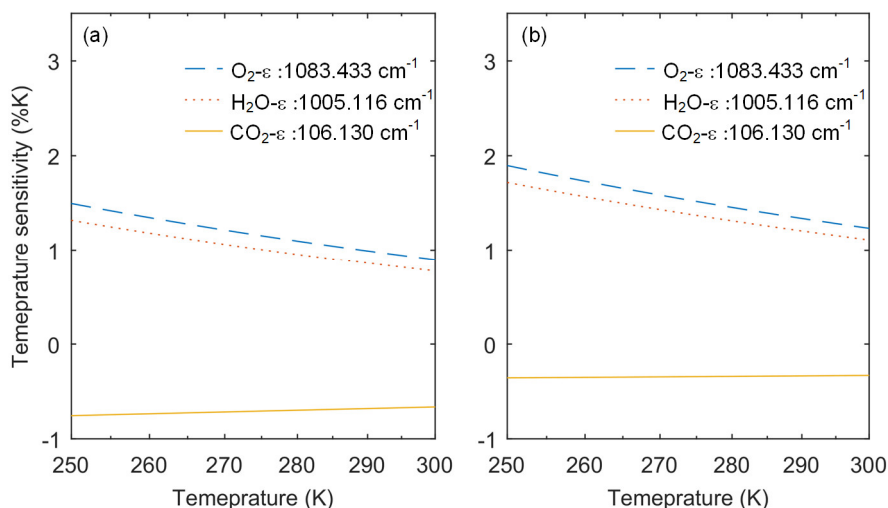


图 4.22 (a)多普勒极限和(b)洛伦兹极限下 H_2O 与 O_2 温度敏感性对比。

4.7 本章小结

本章在基于第 3 章模拟结果的基础上进行了距离分辨的光谱遥感实验。首

先根据实验光路图分别介绍了系统的发射模块、频率锁定模块以及接收模块。其中重点阐述了基于光频梳频率锁定的原理及反馈控制的设计，并通过监测拍频信号的稳定性验证了频率锁定的效果。

其次介绍了数据处理流程，并分析了光谱测量的结果。根据 Lorentz 和 Voigt 线型拟合的结果选择误差较小的 Voigt 函数用于后续的光谱拟合，并设置了不同的频率采样模式对大气 CO₂ 和 HDO 的光谱进行了探测，分析了不同模式下的二者反演误差的区别，验证了采样模式针对不同气体探测的可优化性。此外还在频率锁定和不锁定的情况下对大气光谱进行了遥感，进一步证明了频率锁定的必要性。同时分别在冬季和夏季进行了光谱遥感的实验，得到了 CO₂ 和 HDO 的混合光谱在不同季节的区别，该结果与理论计算的光谱形状保持一致。

最后进行了 72 小时的连续观测实验，通过混合光谱分离并反演得到了 CO₂ 和 HDO 随时间和距离的三维浓度分布。对二者反演的浓度误差进行了分析，并与原位测量仪器进行了对比。此外根据现场大气湍流的监测的数据，分析了气体浓度与湍流强度之间的耦合关系。另外对激光器可扫描范围内其它气体的吸收线进行了分析，讨论了其它多种气体以及大气温度遥感的可行性。

第5章 总结和展望

5.1 创新点总结

论文总结了目前用于大气气体遥感的被动和主动探测技术，分析了不同技术的原理、发展过程、应用领域及对应的局限性，阐述了本课题的选题背景和意义。采用调谐范围~100nm 的可调激光器进行宽范围的频率扫描，为实现多种气体光谱同时探测提供了光源保障。设计了基于光频梳的频率锁定方案，为精确的光谱遥感提供了频率稳定性的保障。利用超导纳米线单光子探测器在低激光能量的基础上为实现距离分辨的光谱测量提供了高信噪比保障。通过理论分析发现在 R16 线（中心波长 1572.335nm）影响 CO₂ 探测的最大干涉气体并非目前普遍认为的 H₂O，而是其同位素气体 HDO。首次测出并分析了 R16 线在不同季节下 CO₂ 和 HDO 的混合光谱形状。开发了一套基于多峰 Voigt 拟合的算法用于浓度反演，并通过所得的混合光谱首次在 R16 线分离得到了 HDO 的光谱及对应的浓度。

论文研究的几个结论如下：

1. 目前普遍用于大气气体探测的被动遥感技术虽然精度高、系统简单，可得到气体的光谱信息，但由于缺乏精确控制的光源并依赖于太阳光，故存在一定的局限性，即不能在夜间观测，受云和气溶胶的影响大，且只能得到气体的柱浓度分布。

2. 基于主动遥感的差分吸收激光雷达技术可以实现距离分辨的气体探测，但这种方法通过出射两个波长不能得到完整的气体光谱形状，因而测量精度有待提升，且通常情况下一套设备也只能对应一种气体成分的测量。尽管目前已发展了多种基于多波长的差分吸收激光雷达，但还未能得到自由空间内有距离分辨率的光谱分布。

3. 传统用于气体探测的激光雷达要么依赖于地形等硬目标，要么则需要增大望远镜面积和激光出射能量来提高信噪比。前者会导致失去距离分辨率，而后者则不利于系统的小型化，并对激光器的要求很高。

4. 传统用于气体探测的激光雷达的频率是通过包含待测气体的气体腔进行锁定的。这种锁定方法的缺点在于所使用气体腔的长度一般约为几十米，增加了系统的复杂程度。

5. CO₂ 的 R16 线是 1.5 μ m 波段最常见的用于大气 CO₂ 探测的吸收线，目前普遍认为在该吸收线附近 H₂O 为最大的干涉气体，而且在一般情况下这种影响均被忽略。但经过理论分析表明，此处 HDO 的吸收远强于 H₂O 的吸收，且

不能被忽略。

6. 在激光雷达遥感气体的过程中,目前的基于所得光谱反演浓度的方法主要为数据库比对法,即将测量的光谱与一系列包含不同浓度的理论光谱进行比较,当误差最小时可得到所求的浓度值。但这种方法一般情况下只适用于处理单种气体的吸收线,对于混合的光谱反演则存在一定的局限性。

论文的创新点主要有以下几点:

1. 首次实现了基于单光子探测技术的自由空间分布式光谱遥感技术,通过使用宽范围的可调谐激光器可实现多种气体光谱的同时探测,同时使用超导纳米线单光子探测器可提高信噪比,降低对高功率激光器的依赖性,并实现自由空间内分布式的测量。该技术同时结合了被动探测的精确光谱分析优势和主动探测的距离分辨的优势,对大气空间中自由分布的气体进行精确的遥感分析具有重要意义。

2. 首次利用光频梳对气体探测激光雷达的出射频率进行了精确的锁定($\sim 0.5\text{MHz}$),设计了反馈控制回路并实现了可程序化的频率调谐和锁定过程。在频率不锁定和锁定的情况下对大气 CO_2 的光谱进行了探测和比较,验证了该频率锁定方法可用于提高反演精度。同时针对 CO_2 和 HDO 的优化探测提出了不同的采样模式,并通过实验验证了采样模式的自适应性。

3. 首次在不同季节下测出了 R16 线位置处 CO_2 和 HDO 的混合光谱,证明了 HDO 对该吸收线上 CO_2 的测量的影响是不可忽略的。结果显示在夏季由于 HDO 浓度升高,对应的吸收强度较强,约为 CO_2 吸收强度的 $1/5$;在冬季其浓度明显降低,对应的吸收强度约为 CO_2 的 $1/20$,该实验结果与理论模型基本保持一致。并利用多峰 Voigt 拟合方法对混合光谱进行拟合和分离,首次同时遥感得到了 R16 线处 CO_2 和 HDO 的光谱分布,并根据拟合所得的面积反演出了对应的浓度信息。通过 72 小时的连续观测实验,得到了 6km 以内以距离分辨率为 60m,时间分辨率为 10min 的 CO_2 和 HDO 的光谱和浓度,并与原位仪器的结果有较强的一致性,进一步验证了该系统和反演算法的可行性,同时为大气 H_2O 和 HDO 的同位素气体探测开辟了新的途径。

5.2 未来展望

论文的后继研究工作主要有以下几点:

1. 综合自由空间 CO_2 光谱探测 Lidar 和大气风场探测 Lidar 在不同天气条件下实现大区域 CO_2 浓度的精确探测,以确定 CO_2 排放源及空域之间的传输过程,进一步研究湍流的传送和植物光合作用对 CO_2 空间分布的影响,并进行定性和定量的分析。

2. 针对第 4 章结尾提出的其他气体测量开展相关研究,在本工作的基础上实现一套系统的多种气体和多功能探测。对背景浓度高的气体如 CO 进行观测,同时对背景浓度低的气体如 C_2H_2 , NH_3 等进行泄漏区域的探测,以提高工业区安全并加强智慧城市建设。

3. 进一步提高 SNSPD 的探测性能,从系统集成角度提高激光器出射功率,实现稳定、精确的三维空间光谱测量。同时深化数据处理以进行大气温度和压强的测量。

参 考 文 献

- [1] Trenberth, K. E. and Trenberth, K. E., Climate System Modeling[M]. Cambridge University Press, 1992.
- [2] Karl, T. R., Modern Global Climate Change[J]. Science, 2003, 302(5651): 1719–1723.
- [3] Solomon, S., Climate change 2007: The physical science basis[J]. Proc. Alp. Snow Work. Munich, Oct. 5-6, Ger. | HeBIS-Verbundkatalog 2007, 8142.
- [4] Budyko, M. I., The effect of solar radiation variations on the climate of the Earth[J]. Tellus, 1969, 21(5): 611–619.
- [5] Hall, A. and Qu, X., Using the current seasonal cycle to constrain snow albedo feedback in future climate change[J]. Geophysical Research Letters, 2006, 33(3): 1–4.
- [6] Mitchell, J. F., The “greenhouse” effect and climate change[J]. Reviews of Geophysics, 1989, 27(1): 115–139.
- [7] Energy and the environment explained: Greenhouse gases[R/OL].2020-08-25/2021-05-10.
<https://www.eia.gov/energyexplained/energy-and-the-environment/greenhouse-gases.php>
- [8] Schimel, D. S., Alves, D., Enting, I. G., Heimann, M., Joos, F., Raynaud, D., Wigley, T. M. L., Prather, M. J., Derwent, R. and Ehhalt, D., Radiative forcing of climate change[M]. Cambridge University Press, 1996.
- [9] Hansen, J., Sato, M. and Ruedy, R., Radiative forcing and climate response[J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 1997, 102(D6): 6831–6864.
- [10] Ramaswamy, V., Shine, K., Leovy, C., Wang, W.-C., Rodhe, H., Wuebbles, D., Ding, M., Lelieveld, J., Edmonds, J. A., McCormick, M. P., Fraser, P., Oort, A., Grant, K., Schwarzkopf, M. D., Johnson, C., Suter, A., Lashof, D., Warrilow, D. A., Leggett, J. and Wigley, T., Radiative forcing of climate[J]. Climate change, 2001, 349.
- [11] Pinault, J. L., Anthropogenic and natural radiative forcing: Positive feedbacks[J]. Journal of Marine Science and Engineering, 2018, 6(4): 146.
- [12] Jacobson, M. Z., Global direct radiative forcing due to multicomponent anthropogenic and natural aerosols[J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2001, 106(D2): 1551–1568.
- [13] Joos, F. and Spahni, R., Rates of change in natural and anthropogenic radiative forcing over the past 20,000 years[J]. Proceedings of the National Academy of Sciences, 2008, 105(5): 1425–1430.
- [14] Kerr, R. A., Global warming is changing the world[J]. Science, 2007, 316(5822): 188–190.
- [15] Fu, B., Gasser, T., Li, B., Tao, S., Ciais, P., Piao, S., Balkanski, Y., Li, W., Yin, T., Han,

- L., Li, X., Han, Y., An, J., Peng, S. and Xu, J., Short-lived climate forcings have long-term climate impacts via the carbon–climate feedback[J]. *Nature Climate Change*, 2020, 10(9): 851–855.
- [16] Feldman, D. R., Collins, W. D., Gero, P. J., Torn, M. S., Mlawer, E. J. and Shippert, T. R., Observational determination of surface radiative forcing by CO₂ from 2000 to 2010[J]. *Nature*, 2015, 519(7543): 339–343.
- [17] Wang, J., Feng, L., Palmer, P. I., Liu, Y., Fang, S., Bösch, H., O'Dell, C. W., Tang, X., Yang, D., Liu, L. and Xia, C. Z., Large Chinese land carbon sink estimated from atmospheric carbon dioxide data[J]. *Nature*, 2020, 586(7831): 720–723.
- [18] Chen, C., Park, T., Wang, X., Piao, S., Xu, B., Chaturvedi, R. K., Fuchs, R., Brovkin, V., Ciais, P., Fensholt, R., Tømmervik, H., Bala, G., Zhu, Z., Nemani, R. R. and Myneni, R. B., China and India lead in greening of the world through land-use management[J]. *Nature sustainability*, 2019, 2(2): 122–129.
- [19] Le Quéré, C., Raupach, M. R., Canadell, J. G., Marland, G., Bopp, L., Ciais, P., Conway, T. J., Doney, S. C., Feely, R. A., Foster, P., Friedlingstein, P., Gurney, K., Houghton, R. A., House, J. I., Huntingford, C., Levy, P. E., Lomas, M. R., Majkut, J., Metzl, N., Ometto, J. P., Peters, G. P., Prentice, I. C., Randerson, J. T., Running, S. W., Sarmiento, J. L., Schuster, U., Sitch, S., Takahashi, T., Viovy, N., Van Der Werf, G. R. and Woodward, F. I., Trends in the sources and sinks of carbon dioxide[J]. *Nature geoscience*, 2009, 2(12): 831–836.
- [20] Kiehl, J. T. and Dickinson, R. E., A study of the radiative effects of enhanced atmospheric CO₂ and CH₄ on early Earth surface temperatures[J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 1987, 92(D3): 2991–2998.
- [21] Saunio, M., Jackson, R. B., Bousquet, P., Poulter, B. and Canadell, J. G., The growing role of methane in anthropogenic climate change[J]. *Environmental Research Letters*, 2016, 11(12): 120207.
- [22] Etminan, M., Myhre, G., Highwood, E. J. and Shine, K. P., Radiative forcing of carbon dioxide, methane, and nitrous oxide: A significant revision of the methane radiative forcing[J]. *Geophysical Research Letters*, 2016, 43(24): 12–614.
- [23] Chapuis-Lardy, L., Wrage, N., Metay, A., Chotte, J. and Bernoux, M., Soils, a sink for N₂O? A review[J]. *Global Change Biology*, 2007, 13(1): 1–17.
- [24] Ryden, J. C., N₂O exchange between a grassland soil and the atmosphere[J]. *Nature*, 1981, 292(5820): 235–237.
- [25] Slemr, F. and Seiler, W., Field measurements of NO and NO₂ emissions from fertilized

- and unfertilized soils[J]. *Journal of Atmospheric Chemistry*, 1984, 2(1): 1–24.
- [26] Minami, K., Atmospheric methane and nitrous oxide: sources, sinks and strategies for reducing agricultural emissions[J]. *Nutrient Cycling in Agroecosystems*, 1997, 49(1): 203–211.
- [27] Christensen, J. and Olhoff, A., Lessons from a decade of emissions gap assessments[J]. 2019, 1–14.
- [28] Peters, G. P., Andrew, R. M., Boden, T., Canadell, J. G., Ciais, P., Le Quere, C., Marland, G., Raupach, M. R. and Wilson, C., The challenge to keep global warming below 2 °C [J]. *Nature Climate Change*, 2013, 3(1): 4–6.
- [29] Ritchie, H. and Roser, M., CO₂ and greenhouse gas emissions[J]. *Our world in data* 2020.
- [30] Hodgkinson, J. and Tatam, R. P., Optical gas sensing: A review[J]. *Measurement Science and Technology*, 2013, 24(1): 012004.
- [31] Andrews, A. E., Kofler, J. D., Trudeau, M. E., Williams, J. C., Neff, D. H., Masarie, K. A., Chao, D. Y., Kitzis, D. R., Novelli, P. C. and Zhao, C. L., CO₂, CO, and CH₄ measurements from tall towers in the NOAA Earth System Research Laboratory’s Global Greenhouse Gas Reference Network: Instrumentation, uncertainty analysis, and recommendations for future high-accuracy greenhouse gas monitoring efforts[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2014, 7(2): 647–687.
- [32] Banwell, C. N., *Fundamentals of molecular spectroscopy*[J]. 1972.
- [33] Hollas, J. M., *Modern Spectroscopy*[M]. John Wiley & Sons, 2004.
- [34] Demtröder, W., *Laser Spectroscopy 1: Basic Principles*[M]. Springer, 2014.
- [35] Queißer, M., Burton, M. and Kazahaya, R., Insights into geological processes with CO₂ remote sensing—A review of technology and applications[J]. *Earth-science reviews*, 2019, 188: 389–426.
- [36] Platt, U., Bobrowski, N. and Butz, A., Ground-based remote sensing and imaging of volcanic gases and quantitative determination of multi-species emission fluxes[J]. *Geosciences*, 2018, 8(2): 44.
- [37] Burton, M. R., Oppenheimer, C., Horrocks, L. A. and Francis, P. W., Diurnal changes in volcanic plume chemistry observed by lunar and solar occultation spectroscopy[J]. *Geophysical Research Letters*, 2001, 28(5): 843–846.
- [38] Naughton, J. J., Derby, J. V. and Glover, R. B., Infrared measurements on volcanic gas and fume: Kilauea eruption[J]. *Journal of Geophysical Research*, 1969, 74(12): 3273–3277.
- [39] Oppenheimer, C., Francis, P., Burton, M., Maciejewski, A. J. H. and Boardman, L., Remote measurement of volcanic gases by Fourier transform infrared spectroscopy.[J].

- Applied Physics B: Lasers & Optics, 1998, 67(4).
- [40] Burton, M., Allard, P., Muré, F. and La Spina, A., Magmatic gas composition reveals the source depth of slug-driven Strombolian explosive activity[J]. Science, 2007, 317(5835): 227–230.
- [41] Mori, T. and Notsu, K., Remote CO, COS, CO₂, SO₂, HCl detection and temperature estimation of volcanic gas[J]. Geophysical Research Letters, 1997, 24(16): 2047–2050.
- [42] Berk, A., Bernstein, L. S. and Robertson, D. C., MODTRAN: A Moderate Resolution Model for LOWTRAN[R]. Spectral Sciences Inc Burlington Ma, 1987.
- [43] Buchwitz, M., Rozanov, V. V. and Burrows, J. P., A correlated-k distribution scheme for overlapping gases suitable for retrieval of atmospheric constituents from moderate resolution radiance measurements in the visible/near-infrared spectral region[J]. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 2000, 105(D12): 15247–15261.
- [44] Gangopadhyay, P. K., van der Meer, F. and van Dijk, P., Detecting anomalous CO₂ flux using space borne spectroscopy[J]. International Journal of Applied Earth Observation and Geoinformation, 2009, 11(1): 1–7.
- [45] Gordon, I. E., Rothman, L. S., Hill, C., Kochanov, R. V., Tan, Y., Bernath, P. F., Birk, M., Boudon, V., Campargue, A. and Chance, K. V., The HITRAN2016 molecular spectroscopic database[J]. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 2017, 2033–69.
- [46] Bowman, K. W., Rodgers, C. D., Kulawik, S. S., Worden, J., Sarkissian, E., Osterman, G., Steck, T., Lou, M., Eldering, A. and Shephard, M., Tropospheric emission spectrometer: Retrieval method and error analysis[J]. IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing, 2006, 44(5): 1297–1307.
- [47] Gerilowski, K., Tretner, A., Krings, T., Buchwitz, M., Bertagnolio, P. P., Belemezov, F., Erzinger, J., Burrows, J. P. and Bovensmann, H., MAMAP—a new spectrometer system for column-averaged methane and carbon dioxide observations from aircraft: instrument description and performance analysis[J]. Atmospheric Measurement Techniques, 2011, 4(2): 215–243.
- [48] Frankenberg, C., Pollock, R., Lee, R. A. M., Rosenberg, R., Blavier, J.-F., Crisp, D., O’Dell, C. W., Osterman, G. B., Roehl, C. and Wennberg, P. O., The Orbiting Carbon Observatory (OCO-2): spectrometer performance evaluation using pre-launch direct sun measurements[J]. Atmospheric Measurement Techniques, 2015, 8(1): 301–313.
- [49] Tian, Y., Sun, Y., Liu, C., Xie, P., Chan, K., Xu, J., Wang, W. and Liu, J., Characterization of urban CO₂ column abundance with a portable low resolution spectrometer (PLRS):

- Comparisons with GOSAT and GEOS-Chem model data[J]. *Science of the Total Environment*, 2018, 612: 1593–1609.
- [50] Qin, X.-C., Nakayama, T., Matsumi, Y., Kawasaki, M., Ono, A., Hayashida, S., Imasu, R., Lei, L.-P., Murata, I. and Kuroki, T., Ground-based measurement of column-averaged mixing ratios of methane and carbon dioxide in the Sichuan Basin of China by a desktop optical spectrum analyzer[J]. *Journal of Applied Remote Sensing*, 2017, 12(1): 12002.
- [51] Francis, P., Maciejewski, A., Oppenheimer, C., Chaffin, C. and Caltabiano, T., SO₂: HCl ratios in the plumes from Mt. Etna and Vulcano determined by Fourier Transform Spectroscopy[J]. *Geophysical Research Letters*, 1995, 22(13): 1717–1720.
- [52] Oppenheimer, C., Edmonds, M., Francis, P. and Burton, M., Variation in HCl/SO₂ gas ratios observed by Fourier transform spectroscopy at Soufrière Hills Volcano, Montserrat[J]. *Geological Society, London, Memoirs*, 2002, 21(1): 621–639.
- [53] Toon, G. C., Farmer, C. B., Schaper, P. W., Lowes, L. L. and Norton, R. H., Composition measurements of the 1989 Arctic winter stratosphere by airborne infrared solar absorption spectroscopy[J]. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 1992, 97(D8): 7939–7961.
- [54] Hase, F., Hannigan, J. W., Coffey, M. T., Goldman, A., Höpfner, M., Jones, N. B., Rinsland, C. P. and Wood, S. W., 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.
- [55] Petri, C., Warneke, T., Jones, N., Ridder, T., Messerschmidt, J., Weinzierl, T., Geibel, M. and Notholt, J., Remote sensing of CO₂ and CH₄ using solar absorption spectrometry with a low resolution spectrometer[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2012, 5(7): 1627–1635.
- [56] Butz, A., Dinger, A. S., Bobrowski, N., Kostinek, J., Fieber, L., Fischerkeller, C., Giuffrida, G. B., Hase, F., Klappenbach, F. and Kuhn, J., Remote sensing of volcanic CO₂, HF, HCl, SO₂, and BrO in the downwind plume of Mt. Etna[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2017, 10(1): 1–14.
- [57] Sun, Y., Palm, M., Liu, C., Hase, F., Griffith, D., Weinzierl, C., Petri, C., Wang, W. and Notholt, J., The influence of instrumental line shape degradation on NDACC gas retrievals: total column and profile[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2018, 11(5): 2879–2896.
- [58] Kataoka, F., Crisp, D., Taylor, T. E., O'Dell, C. W., Kuze, A., Shiomi, K., Suto, H., Bruegge, C., Schwandner, F. M. and Rosenberg, R., The cross-calibration of spectral radiances and cross-validation of CO₂ estimates from GOSAT and OCO-2[J]. *Remote Sensing*, 2017, 9(11): 1158.
- [59] Green, R. O., Eastwood, M. L., Sarture, C. M., Chrien, T. G., Aronsson, M., Chippendale, B. J.,

- Faust, J. A., Pavri, B. E., Chovit, C. J. and Solis, M., Imaging spectroscopy and the airborne visible/infrared imaging spectrometer (AVIRIS)[J]. *Remote sensing of environment*, 1998, 65(3): 227–248.
- [60] Burrows, J. P., Hölzle, E., Goede, A. P. H., Visser, H. and Fricke, W., SCIAMACHY—Scanning imaging absorption spectrometer for atmospheric chartography[J]. *Acta Astronautica*, 1995, 35(7): 445–451.
- [61] Kaufmann, H., Förster, S., Wulf, H., Segl, K., Guanter, L., Bochow, M., Heiden, U., Müller, A., Heldens, W. and Schneiderhan, T., Science plan of the environmental mapping and analysis program (EnMAP)[J]. 2012, 1–60.
- [62] Chambers, P., Austin, E. A. D. and Dakin, J. P., Theoretical analysis of a methane gas detection system, using the complementary source modulation method of correlation spectroscopy[J]. *Measurement Science and Technology*, 2004, 15(8): 1629.
- [63] Goody, R., Cross-correlating spectrometer[J]. *JOSA* 1968, 58(7): 900–908.
- [64] Sandsten, J., Edner, H. and Svanberg, S., Gas imaging by infrared gas-correlation spectrometry[J]. *Optics Letters*, 1996, 21(23): 1945–1947.
- [65] Tolton, B. T., A concept for a gas-filter correlation radiometer to remotely sense the atmospheric carbon dioxide column from space[J]. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 2004, 21(5): 837–852.
- [66] Schoeberl, M., Dickerson, R., Marshall, B. T., McHugh, M., Fish, C. and Bloom, H., The Geostationary Remote Infrared Pollution Sounder (GRIPS): measurement of the carbon gases from space[C]. *Earth Observing Systems XVIII. International Society for Optics and Photonics*, 2013, 8866: 886602.
- [67] Bloom, H., Dickerson, R., Schoeberl, M., Gordley, L. L., Marshall, B. T., McHugh, M., Spackman, R., Fish, C. and Kim, J., The geostationary remote infrared pollution sounder (GRIPS)[C]. *Multispectral, Hyperspectral, and Ultraspectral Remote Sensing Technology, Techniques and Applications IV. International Society for Optics and Photonics*, 2012, 8527: 85270X.
- [68] Kurucz, R. L., Synthetic infrared spectra[C]. *Symposium-International Astronomical Union. Cambridge University Press*, 1994, 154: 523–531.
- [69] Vargas-Rodríguez, E. and Rutt, H. N., Design of CO, CO₂ and CH₄ gas sensors based on correlation spectroscopy using a Fabry–Perot interferometer[J]. *Sensors and Actuators B: Chemical*, 2009, 137(2): 410–419.
- [70] Wilson, E. L., Georgieva, E. M. and Heaps, W. S., Development of a Fabry–Perot interferometer for ultra-precise measurements of column CO₂[J]. *Measurement Science and*

- Technology, 2007, 18(5): 1495.
- [71] Kobayashi, N., Inoue, G., Kawasaki, M., Yoshioka, H., Minomura, M., Murata, I., Nagahama, T., Matsumi, Y., Tanaka, T. and Morino, I., Remotely operable compact instruments for measuring atmospheric CO₂ and CH₄ column densities at surface monitoring sites[J]. Atmospheric Measurement Techniques, 2010, 3(4): 1103–1112.
 - [72] Oppenheimer, C., Francis, P. and Maciejewski, A., Volcanic gas measurements by helicopter-borne Fourier transform spectroscopy[J]. International Journal of Remote Sensing, 1998, 19(2): 373–379.
 - [73] Allard, P., Burton, M. and Muré, F., Spectroscopic evidence for a lava fountain driven by previously accumulated magmatic gas[J]. Nature, 2005, 433(7024): 407–410.
 - [74] Spinetti, C., Carrère, V., Buongiorno, M. F., Sutton, A. J. and Elias, T., Carbon dioxide of PuuOo volcanic plume at Kilauea retrieved by AVIRIS hyperspectral data[J]. Remote Sensing of Environment, 2008, 112(6): 3192–3199.
 - [75] Dennison, P. E., Thorpe, A. K., Pardyjak, E. R., Roberts, D. A., Qi, Y., Green, R. O., Bradley, E. S. and Funk, C. C., High spatial resolution mapping of elevated atmospheric carbon dioxide using airborne imaging spectroscopy: Radiative transfer modeling and power plant plume detection[J]. Remote Sensing of Environment, 2013, 139: 116–129.
 - [76] Glumb, R., Davis, G. and Lietzke, C., The tanso-fts-2 instrument for the gosat-2 greenhouse gas monitoring mission[C]. 2014 IEEE Geoscience and Remote Sensing Symposium. IEEE, 2014, 1238-1240.
 - [77] Eldering, A., Bennett, M. and Basilio, R., The OCO-3 Mission: overview of science objectives and status [C]. EGU General Assembly Conference Abstracts. 2016, EPSC2016-5189
 - [78] Li, Z., Lin, C., Li, C., Wang, L., Ji, Z., Xue, H., Wei, Y., Gong, C., Gao, M. and Liu, L., Prelaunch spectral calibration of a carbon dioxide spectrometer[J]. Measurement Science and Technology, 2017, 28(6): 65801.
 - [79] Buchwitz, M., Reuter, M., Bovensmann, H., Pillai, D., Heymann, J., Schneising, O., Rozanov, V., Krings, T., Burrows, J. P. and Boesch, H., Carbon Monitoring Satellite (CarbonSat): assessment of atmospheric CO₂ and CH₄ retrieval errors by error parameterization[J]. Atmospheric Measurement Techniques, 2013, 6(12): 3477–3500.
 - [80] Louet, J. and Bruzzi, S., ENVISAT mission and system [C]. IEEE 1999 International Geoscience and Remote Sensing Symposium. IGARSS'99 (Cat. No. 99CH36293). IEEE, 1999, 3: 1680–1682.
 - [81] Quesada-Ruiz, S., Attié, J.-L., Lahoz, W. A., Abida, R., Ricaud, P., Amraoui, L. El, Zbinden, R., Piacentini, A., Joly, M. and Eskes, H., Benefit of ozone observations from Sentinel-5P and

- future Sentinel-4 missions on tropospheric composition[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2020, 13(1): 131–152.
- [82] Li, X., Ma, T., Xie, W., Zhang, K., Huang, J. and Ren, X., FY-3D and FY-3C onboard observations for differential code biases estimation[J]. *Gps Solutions*, 2019, 23(2): 57.
- [83] Lu, Q., Bell, W., Bauer, P., Bormann, N. and Peubey, C., An evaluation of FY-3A satellite data for numerical weather prediction[J]. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 2011, 137(658): 1298–1311.
- [84] Pascal, V., Buil, C., Loesel, J., Tauziede, L., Jouglet, D. and Buisson, F., An improved microcarb dispersive instrumental concept for the measurement of greenhouse gases concentration in the atmosphere [C]. *International Conference on Space Optics—ICSO 2014*. International Society for Optics and Photonics, 2017, 10563: 105633K.
- [85] Measures, R. M., *Laser remote sensing fundamentals and applications*[J]. 1984.
- [86] Fujii, T. and Fukuchi, T., *Laser remote sensing*[M]. CRC press, 2005.
- [87] Lotsch, H. K. V., Rhodes, W. T., Adibi, E. B. A., Asakura, T., Hänsch, T. W., Kamiya, T., Krausz, F., Monemar, B., Venghaus, H., Weber, H., Weinfurter, H. and Rhodes, W. T., *Lidar:Range-Resolved Optical Remote Sensing of the Atmosphere*[M]. Springer Science & Business, 2006.
- [88] Metcalf, A. J., Anderson, T., F.Bender, C., Blakeslee, S., Brand, W., Carlson, D. R., Cochran, W. D., Diddams, S. A., Endl, M., Fredrick, C., Halverson, S., Hickstein, D. D., Hearty, F., Jennings, J., Kanodia, S., Kaplan, K. F., Levi, E., Lubar, E., Mahadevan, S., Monson, A., Ninan, J. P., Nitroy, C., Osterman, S., Papp, S. B., Quinlan, F., Ramsey, L., Robertson, P., Roy, A., Schwab, C., Sigurdsson, S., Srinivasan, K., Stefansson, G., Sterner, D. A., Terrien, R., Wolszczan, A., Wright, J. T. and Ycas, G., *Stellar Spectroscopy in the Near-infrared with a Laser Frequency Comb*[J]. *Optica*, 2019, 6(2): 233–239.
- [89] Ycas, G., Giorgetta, F. R., Cossel, K. C., Waxman, E. M., Baumann, E., Newbury, N. R. and Coddington, I., *Mid-infrared dual-comb spectroscopy of volatile organic compounds across long open-air paths*[J]. *Optica*, 2019, 6(2): 165–168.
- [90] oburn, S., Alden, C. B., Wright, R., Cossel, K., Baumann, E., Truong, G. W., Giorgetta, F., Sweeney, C., Newbury, N. R., Prasad, K., Coddington, I. and Rieker, G. B., *Regional trace gas source attribution using a field-deployed dual frequency comb spectrometer*[J]. *Optica*, 2018, 5(4): 320–327.
- [91] Hoghooghi, N., Wright, R. J., Makowiecki, A. S., Swann, W. C., Waxman, E. M., Coddington, I. and Rieker, G. B., *Broadband coherent cavity-enhanced dual-comb spectroscopy*[J]. *Optica* 2019, 6(1): 28–33.

- [92] Coddington, I. A. N. C., Ewbury, N. A. N., and Wann, W. I. S., Dual-comb spectroscopy[J]. 2016, 3(4): 414–426.
- [93] Rieker, G. B., Giorgetta, F. R., Swann, W. C., Kofler, J., Zolot, A. M., Sinclair, L. C., Baumann, E., Cromer, C., Petron, G., Sweeney, C., Tans, P. P., Coddington, I. and Newbury, N. R., Frequency-comb-based remote sensing of greenhouse gases over kilometer air paths[J]. Optica, 2014, 1(5): 290–298.
- [94] Giorgetta, F. R., Coddington, I., Baumann, E., Swann, W. C. and Newbury, N. R., Fast high-resolution spectroscopy of dynamic continuous-wave laser sources[J]. Nature Photonics, 2010, 4(12): 853–857.
- [95] Picqué, N. and Hänsch, T. W., Frequency comb spectroscopy[J]. Nature Photonics, 2019, 13(3): 146–157.
- [96] Hall, J. L., Nobel lecture: Defining and measuring optical frequencies[J]. Reviews of Modern Physics, 2006, 78(4): 1279–1295.
- [97] Hänsch, T. W., Nobel lecture: Passion for precision[J]. Reviews of Modern Physics, 2006, 78(4): 1297–1309.
- [98] Diddams, S. A., Vahala, K. and Udem, T., Optical frequency combs: Coherently uniting the electromagnetic spectrum[J]. Science, 2020, 369(6501).
- [99] Cundiff, S. T. and Ye, J., Colloquium: Femtosecond optical frequency combs[J]. Reviews of Modern Physics, 2003, 75(1): 325–342.
- [100] Udem, T., Holzwarth, R. and Hänsch, T. W., Optical frequency metrology[J]. Nature, 2002, 416(6877): 233–237.
- [101] Edner, H., Svanberg, S., Unéus, L. and Wendt, W., Gas-correlation lidar[J]. Optics Letters 1984, 9(11): 493–495.
- [102] Thomas, B., Miffre, A., David, G., Cariou, J. P. and Rairoux, P., Remote sensing of trace gases with optical correlation spectroscopy and lidar: Theoretical and numerical approach[J]. Applied Physics B, 2012, 108(3): 689–702.
- [103] Thomas, B., David, G., Anselmo, C., Cariou, J. P., Miffre, A. and Rairoux, P., Remote sensing of atmospheric gases with optical correlation spectroscopy and lidar: First experimental results on water vapor profile measurements[J]. Applied Physics B, 2013, 113(2): 265–275.
- [104] Thomas, B., David, G., Anselmo, C., Coillet, E., Rieth, K., Miffre, A., Cariou, J. P. and Rairoux, P., Remote sensing of methane with broadband laser and optical correlation spectroscopy on the Q-branch of the $2\nu_3$ band[J]. Journal of Molecular Spectroscopy, 2013, 291: 3–8.
- [105] Anselmo, C., Welschinger, J.-Y., Cariou, J.-P., Miffre, A. and Rairoux, P., Gas concentration

- measurement by optical similitude absorption spectroscopy: methodology and experimental demonstration[J]. *Optics Express*, 2016, 24(12): 12588–12599.
- [106] Galtier, S., Anselmo, C., Welschinger, J. Y., Sivignon, J. F., Cariou, J. P., Miffre, A. and Rairoux, P., Remote sensing of methane with OSAS-lidar on the 2v₃ band Q-branch: Experimental proof[J]. *Journal of Molecular Spectroscopy*, 2018, 348: 130–136.
- [107] Yabuki, M., Matsuda, M., Nakamura, T., Hayashi, T. and Tsuda, T., A scanning Raman lidar for observing the spatio-temporal distribution of water vapor[J]. *Journal of Atmospheric and Solar-Terrestrial Physics*, 2016, 150: 21–30.
- [108] Froidevaux, M., Higgins, C. W., Simeonov, V., Ristori, P., Pardyjak, E., Serikov, I., Calhoun, R., Van Den Bergh, H. and Parlange, M. B., A Raman lidar to measure water vapor in the atmospheric boundary layer[J]. *Advances in Water Resources*, 2013, 51: 345–356.
- [109] Merkur'ev, S. V, Privalov, V. E. and Shemanin, V. G., Raman Lidar for Remote Sensing of Sulfur-Containing Hydrocarbons in the Atmosphere.[J]. *Technical Physics Letters*, 2000, 26(1).
- [110] Privalov, V. E. and Shemanin, V. G., Lidars for control and measurement[C]. *International Workshop on New Approaches to High-Tech Materials: Nondestructive Testing and Computer Simulations in Materials Science and Engineering*. International Society for Optics and Photonics, 1998, 3345: 6–10.
- [111] Wagner, G. A. and 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.
- [112] Amediek, A., Fix, A., Wirth, M. and Ehret, G., Development of an OPO system at 1.57 μm for integrated path DIAL measurement of atmospheric carbon dioxide[J]. *Applied Physics B*, 2008, 92(2): 295–302.
- [113] Wirth, M., Fix, A., Mahnke, P., Schwarzer, H., Schrandt, F. and Ehret, G., The airborne multi-wavelength water vapor differential absorption lidar WALES: System design and performance[J]. *Applied Physics B*, 2009, 96(1): 201–213.
- [114] Riris, H., Numata, K., Li, S., Wu, S., Ramanathan, A., Dawsey, M., Mao, J., Kawa, R. and Abshire, J. B., Airborne measurements of atmospheric methane column abundance using a pulsed integrated-path differential absorption lidar[J]. *Applied Optics*, 2012, 51(34): 8296–8305.
- [115] Ehret, G., Kiemle, C., Wirth, M., Amediek, A., Fix, A. and Houweling, S., Space-borne remote sensing of CO₂, CH₄, and N₂O by integrated path differential absorption lidar: A sensitivity analysis[J]. *Applied Physics B*, 2008, 90(3–4): 593–608.
- [116] Milton, M. J. T., Woods, P. T., Partridge, R. H. and Jolliffe, B. W., Long-path methods for

- remote sensing of pollutants in the boundary layer[C]. Optical Methods in Atmospheric Chemistry. International Society for Optics and Photonics, 1993, 1715: 312–321.
- [117] Milton, M. J. T., Woods, P. T., Partridge, R. H. and Goody, B. A., Calibration of DIAL and open-path systems using external gas cells[C]. Air Pollution and Visibility Measurements. International Society for Optics and Photonics, 1995, 2506: 680–688.
- [118] Milton, M. J. T., Injection-seeded optical parametric oscillator for range-resolved DIAL measurements of atmospheric methane[J]. Optics Communications, 1997, 142(1-3), 153–160.
- [119] Robinson, R., Gardiner, T., Innocenti, F., Woods, P. and Coleman, M., Infrared differential absorption Lidar (DIAL) measurements of hydrocarbon emissions[J]. Journal of environmental monitoring, 2011, 13(8): 2213–2220.
- [120] Innocenti, F., Robinson, R., Gardiner, T., Finlayson, A. and Connor, A., Differential absorption Lidar (DIAL) measurements of landfill methane emissions[J]. Remote Sensing, 2017, 9(9): 953.
- [121] Gardiner, T., Helmore, J., Innocenti, F. and Robinson, R., Field validation of remote sensing methane emission measurements[J]. Remote Sensing 2017, 9(9): 956.
- [122] Ikuta, K., Yoshikane, N., Vasa, N., Oki, Y., Maeda, M., Uchiumi, M., Tsumura, Y., Nakagawa, J. and Kawada, N., Differential absorption lidar at 1.67 μm for remote sensing of methane leakage[J]. Japanese Journal of Applied Physics, 1999, 38(1R): 110–114.
- [123] Bufton, J. L., Itabe, T., Strow, L. L., Korb, C. L., Gentry, B. M. and Weng, C. Y., Frequency-doubled CO_2 lidar measurement and diode laser spectroscopy of atmospheric CO_2 [J]. Applied Optics, 1983, 22(17): 2592–2602.
- [124] Koch, G. J., Barnes, B. W., Petros, M., Beyon, J. Y., Amzajerdian, F., Yu, J., Davis, R. E., Ismail, S., Vay, S. and Kavaya, M. J., Coherent differential absorption lidar measurements of CO_2 [J]. Applied Optics, 2004, 43(26): 5092–5099.
- [125] Sakaizawa, D., Nagasawa, C., Nagai, T., Abo, M., Shibata, Y., Nakazato, M. and Sakai, T., Development of a 1.6 μm differential absorption lidar with a quasi-phase-matching optical parametric oscillator and photon-counting detector for the vertical CO_2 profile[J]. Applied Optics, 2009, 48(4): 748–757.
- [126] Shibata, Y., Nagasawa, C. and Abo, M., Development of 1.6 μm DIAL using an OPG/OPA transmitter for measuring atmospheric CO_2 concentration profiles[J]. Applied Optics, 2017, 56(4): 1194–1201.
- [127] Gibert, F., Flamant, P. H., Bruneau, D. and Loth, C., Two-micrometer heterodyne differential absorption lidar measurements of the atmospheric CO_2 mixing ratio in the boundary layer[J]. Applied Optics, 2006, 45(18): 4448–4458.

- [128] Gibert, F., Edouart, D., Cénac, C., Le Mounier, F. and Dumas, A., 2- μm Ho emitter-based coherent DIAL for CO_2 profiling in the atmosphere[J]. *Optics Letters*, 2015, 40(13): 3093–3096.
- [129] Cadiou, E., Mammez, D., Dherbecourt, J.-B., Gorju, G., Pelon, J., Melkonian, J.-M., Godard, A. and Raybaut, M., Atmospheric boundary layer CO_2 remote sensing with a direct detection LIDAR instrument based on a widely tunable optical parametric source[J]. *Optics Letters*, 2017, 42(20): 4044–4047.
- [130] Kawa, S. R., Abshire, J. B., Baker, D. F., Browell, E. V., Crisp, D., Crowell, S. M. R., Hyon, J. J., Jacob, J. C., Jucks, K. W. and Lin, B., Active Sensing of CO_2 Emissions over Nights, Days, and Seasons (ASCENDS): Final Report of the ASCENDS Ad Hoc Science Definition Team[J]. 2018.
- [131] Caron, J., Durand, Y., Bezy, J.-L. and Meynard, R., Performance modeling for A-SCOPE: a space-borne lidar measuring atmospheric CO_2 [C]. *Lidar Technologies, Techniques, and Measurements for Atmospheric Remote Sensing V*. International Society for Optics and Photonics, 2009, 7479: 74790E.
- [132] Ehret, G., Bousquet, P., Pierangelo, C., Alpers, M., Millet, B., Abshire, J. B., Bovensmann, H., Burrows, J. P., Chevallier, F., Ciais, P., Crevoisier, C., Fix, A., Flamant, P., Frankenberg, C., Gibert, F., Heim, B., Heimann, M., Houweling, S., Hubberten, H. W., Jöckel, P., Law, K., Löw, A., Marshall, J., Agusti-Panareda, A., Payan, S., Prigent, C., Rairoux, P., Sachs, T., Scholze, M. and Wirth, M., MERLIN: A French-German space lidar mission dedicated to atmospheric methane[J]. *Remote Sensing*, 2017, 9(10): 1–29.
- [133] Dobler, J. T., Harrison, F. W., Browell, E. V., Lin, B., McGregor, D., Kooi, S., Choi, Y. and Ismail, S., Atmospheric CO_2 column measurements with an airborne intensity-modulated continuous wave 1.57 μm fiber laser lidar[J]. *Applied Optics*, 2013, 52(12): 2874–2892.
- [134] Refaat, T. F., Singh, U. N., Yu, J., Petros, M., Remus, R. and Ismail, S., Double-pulse 2- μm integrated path differential absorption lidar airborne validation for atmospheric carbon dioxide measurement[J]. *Applied Optics*, 2016, 55(15): 4232–4246.
- [135] Yu, J., Braud, A. and Petros, M., 600-mJ, double-pulse 2- μm laser[J]. *Optics Letters*, 2003, 28(7): 540–542.
- [136] Amediek, A., Ehret, G., Fix, A., Wirth, M., Büdenbender, C., Quatrevalet, M., Kiemle, C. and Gerbig, C., CHARM-F—a new airborne integrated-path differential-absorption lidar for carbon dioxide and methane observations: measurement performance and quantification of strong point source emissions[J]. *Applied Optics*, 2017, 56(18): 5182–5197.
- [137] Guerin, F., Pain, T., Palmade, J. L., Pailharey, E., Giraud, D. and Jubineau, F., WALES: Water

- vapour lidar experiment in space[C]. 5th International Conference on Space Optics. 2004, 554: 25–32.
- [138] Wirth, M., Fix, A., Mahnke, P., Schwarzer, H., Schrandt, F. and Ehret, G., The airborne multi-wavelength water vapor differential absorption lidar WALES: system design and performance[J]. *Applied Physics B*, 2009, 96(1): 201–213.
- [139] Refaat, T. F., Singh, U. N., Yu, J., Petros, M., Ismail, S., Kavaya, M. J. and Davis, K. J., Evaluation of an airborne triple-pulsed 2 μm IPDA lidar for simultaneous and independent atmospheric water vapor and carbon dioxide measurements[J]. *Applied Optics*, 2015, 54(6): 1387–1398.
- [140] Krainak, M. A., Andrews, A. E., Allan, G. R., Burris, J. F., Riris, H., Sun, X. and Abshire, J. B., Measurements of atmospheric CO_2 over a horizontal path using a tunable-diode-laser and erbium-fiber-amplifier at 1572 nm[C]. Conference on Lasers and Electro-Optics. Optical Society of America, 2003: CTuX4.
- [141] Allan, G. R., Laser sounder for active remote sensing measurements of CO_2 concentrations[C]. 2008 IEEE Aerospace Conference. IEEE, 2008: 1–7.
- [142] Abshire, J. B., Riris, H., Allan, G. R., Weaver, C. J., Ma, J., Hasselbrack, W. E., Rodriguez, M., Browell, E. V., Abshire, J. B., Abshire, J. B., Riris, H., Allan, G. R., Weaver, C. J., Mao, J. and Sun, X., Pulsed airborne lidar measurements of CO_2 column absorption[C]. NASA Earth Science Technology Forum, B8P1, Pasadena, CA. 2011.
- [143] Abshire, J. B., Riris, H., Hasselbrack, B., Allan, G., Weaver, C. and Mao, J., Airborne measurements of CO_2 column absorption using a pulsed wavelength-scanned laser sounder instrument[C]. Conference on Lasers and Electro-Optics. Optical Society of America, 2009: CFU2.
- [144] Abshire, J. B., Riris, H., Allan, G. R., Weaver, C. J., Mao, J., Sun, X., Hasselbrack, W. E., Kawa, S. R. and Biraud, S., Pulsed airborne lidar measurements of atmospheric CO_2 column absorption[J]. *Tellus B: Chemical and Physical Meteorology*, 2010, 62(5): 770–783.
- [145] Abshire, J. B., Ramanathan, A., Riris, H., Mao, J., Allan, G. R., Hasselbrack, W. E., Weaver, C. J. and Browell, E. V., Airborne measurements of CO_2 column concentration and range using a pulsed direct-detection IPDA lidar[J]. *Remote Sensing*, 2013, 6(1): 443–469.
- [146] Numata, K., Chen, J. R., Wu, S. T., Abshire, J. B. and Krainak, M. A., Frequency stabilization of distributed-feedback laser diodes at 1572 nm for lidar measurements of atmospheric carbon dioxide[J]. *Applied Optics*, 2011, 50(7): 1047–1056.
- [147] Numata, K., Chen, J. R. and Wu, S. T., Precision and fast wavelength tuning of a dynamically phase-locked widely-tunable laser[J]. *Optics Express*, 2012, 20(13): 14234–14243.

- [148] Abshire, J. B., Ramanathan, A. K., Riris, H., Allan, G. R., Sun, X., Hasselbrack, W. E., Mao, J., Wu, S., Chen, J., Numata, K., Kawa, S. R., Yang, M. Y. M. and DiGangi, J., 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.
- [149] Queisser, M., Burton, M., Allan, G. R. and Chiarugi, A., Portable laser spectrometer for airborne and ground-based remote sensing of geological CO₂ emissions[J]. *Optics Letters*, 2017, 42(14): 2782–2785.
- [150] Gong, W., Han, G., Ma, X. and Lin, H., Multi-points scanning method for wavelength locking in CO₂ differential absorption lidar[J]. *Optics Communications*, 2013, 305: 180–184.
- [151] Xiang, C., Ma, X., Liang, A., Han, G., Gong, W. and Yan, F., Feasibility study of multi-wavelength differential absorption LIDAR for CO₂ monitoring[J]. *Atmosphere*, 2016, 7(7): 89.
- [152] Han, G., Xu, H., Gong, W., Ma, X. and Liang, A., Simulations of a multi-wavelength differential absorption lidar method for CO₂ measurement[J]. *Applied Optics*, 2017, 56(30): 8532–8540.
- [153] Han, G., Shi, T., Ma, X., Xu, H., Zhang, M., Liu, Q. and Gong, W., Obtaining gradients of XCO₂ in atmosphere using the constrained linear least-squares technique and multi-wavelength IPDA LiDAR[J]. *Remote Sensing*, 2020, 12(15): 1–20.
- [154] Wagner, G. A. and 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.
- [155] Yu, S., Zhang, Z., Li, M. and Xia, H., Multi-frequency differential absorption lidar incorporating a comb-referenced scanning laser for gas spectrum analysis[J]. *Optics Express*, 2021, 29(9): 12984–12995.
- [156] Sun, X., Abshire, J. B., Beck, J. D., Mitra, P., Reiff, K. and Yang, G., HgCdTe avalanche photodiode detectors for airborne and spaceborne lidar at infrared wavelengths[J]. *Optics Express*, 2017, 25(14): 16589–16602.
- [157] Garnache, A., Kachanov, A. A., Stoeckel, F. and Planel, R., High-sensitivity intracavity laser absorption spectroscopy with vertical-external-cavity surface-emitting semiconductor lasers[J]. *Optics Letters*, 1999, 24(12): 826–828.
- [158] Hoghooghi, N., Wright, R. J., Makowiecki, A. S., Swann, W. C., Waxman, E. M., Coddington, I. and Rieker, G. B., Broadband coherent cavity-enhanced dual-comb spectroscopy[J]. *Optica*, 2019, 6(1): 28–33.

- [159] Bernhardt, B., Ozawa, A., Jacquet, P., Jacquey, M., Kobayashi, Y., Udem, T., Holzwarth, R., Guelachvili, G., Hänsch, T. W. and Picqué, N., Cavity-enhanced dual-comb spectroscopy[J]. *Nature Photonics*, 2010, 4(1): 55–57.
- [160] Morgenweg, J., Barmes, I. and Eikema, K. S. E., Ramsey-comb spectroscopy with intense ultrashort laser pulses[J]. *Nature Physics*, 2014, 10(1): 30–33.
- [161] Griffith, D. W. T., Leuning, R., Denmead, O. T. and Jamie, I. M., Air-land exchanges of CO₂, CH₄ and N₂O measured by FTIR spectrometry and micrometeorological techniques[J]. *Atmospheric Environment*, 2002, 36(11): 1833–1842.
- [162] Morino, I., Uchino, O., Inoue, M., Yoshida, Y., Yokota, T., Wennberg, P. O., Toon, G. C., Wunch, D., Roehl, C. M. and Notholt, J., Preliminary validation of column-averaged volume mixing ratios of carbon dioxide and methane retrieved from GOSAT short-wavelength infrared spectra[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2011, 4(6): 1061–1076.
- [163] Hebestreit, K., Stutz, J., Rosen, D., Matveiv, V., Peleg, M. and Platt, U., DOAS measurements of tropospheric bromine oxide in mid-latitudes[J]. *Science*, 1999, 283(5398): 55–57.
- [164] Stuart, B., Infrared spectroscopy[J]. *Kirk-Othmer encyclopedia of chemical technology*, 2000.
- [165] Siesler, H. W., Ozaki, Y., Kawata, S. and Heise, H. M., Near-Infrared spectroscopy: principles, instruments, applications[M]. John Wiley & Sons, 2008.
- [166] Ferrari, M., Mottola, L. and Quaresima, V., Principles, techniques, and limitations of near infrared spectroscopy[J]. *Canadian journal of applied physiology*, 2004, 29(4): 463–487.
- [167] Pasquini, C., Near infrared spectroscopy: fundamentals, practical aspects and analytical applications[J]. *Journal of the Brazilian chemical society*, 2003, 14(2): 198–219.
- [168] Alpert, N. L., Keiser, W. E. and Szymanski, H. A., IR: theory and practice of infrared spectroscopy[M]. Springer Science & Business Media, 2012.
- [169] Demtröder, W., Laser spectroscopy: basic concepts and instrumentation[M]. Springer Science & Business Media, 2013.
- [170] Boussin, C., Lutz, B. L., De Bergh, C. and Hamdouni, A., Line intensities and self-broadening coefficients for the 3v₂ band of monodeuterated methane[J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 1998, 60(4): 501–514.
- [171] Campargue, A., Charvat, A., and Permogorov, D., Absolute intensity measurement of CO₂ overtone transitions in the near-infrared[J]. *Chemical physics letters*, 1994, 223(5–6): 567–572.
- [172] Lepère, M., Line profile study with tunable diode laser spectrometers[J]. *Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy*, 2004, 60(14): 3249–3258.
- [173] Perevalov, V. I., Lobodenko, E. I., Lyulin, O. M. and Teffo, J. L., Effective dipole moment and

- band intensities problem for carbon dioxide[J]. *Journal of Molecular Spectroscopy*, 1995, 171(2): 435–452.
- [174] Rautian, S. G. and Sobel'man, I. I., The effect of collisions on the Doppler broadening of spectral lines[J]. *Soviet Physics Uspekhi*, 1967, 9(5): 701.
- [175] Rothman, L. S., Hawkins, R. L., Wattson, R. B. and Gamache, R. R., Energy levels, intensities, and linewidths of atmospheric carbon dioxide bands[J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 1992, 48(5–6): 537–566.
- [176] Tashkun, S. A., Perevalov, V. I., Teffo, J. L. and Tyuterev, V. I. G., Global fit of $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$ vibrational–rotational line intensities using the effective operator approach[J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 1999, 62(5): 571–598.
- [177] Teffo, J.-L., Lyulin, O. M., Perevalov, V. I. and Lobodenko, E. I., Application of the effective operator approach to the calculation of $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$ line intensities[J]. *Journal of Molecular Spectroscopy*, 1998, 187(1): 28–41.
- [178] Teffo, J.-L., Sulakshina, O. N. and Perevalov, V. I., Effective Hamiltonian for rovibrational energies and line intensities of carbon dioxide[J]. *Journal of Molecular Spectroscopy*, 1992, 156(1): 48–64.
- [179] Ambrico, P. F., Amodeo, A., Di Girolamo, P. and Spinelli, N., Sensitivity analysis of differential absorption lidar measurements in the mid-infrared region[J]. *Applied optics*, 2000, 39(36), 6847–6865.
- [180] Miles, R. B., Lempert, W. R. and Forkey, J. N., Laser rayleigh scattering[J]. *Measurement Science and Technology*, 2001, 12(5): R33.
- [181] Bates, D. R., Rayleigh scattering by air[J]. *Planetary and Space Science*, 1984, 32(6): 785–790.
- [182] Young, A. T., Rayleigh scattering[J]. *Phys. Today*, 1982, 35(1): 42–48.
- [183] Wiscombe, W. J., Improved Mie scattering algorithms[J]. *Applied Optics*, 1980, 19(9): 1505–1509.
- [184] Du, H., Mie-scattering calculation[J]. *Applied Optics*, 2004, 43(9): 1951–1956.
- [185] Mundy, W. C., Roux, J. A. and Smith, A. M., Mie scattering by spheres in an absorbing medium[J]. *JOSA* 1974, 64(12): 1593–1597.
- [186] Dobbs, M., Dobler, J., Braun, M., McGregor, D., Overbeck, J., Iii, B. M., Browell, E. and Zaccheo, T. S., A Modulated CW Fiber Laser-Lidar Suite for the ASCENDS Mission A Modulated CW Fiber Laser-Lidar Suite for the ASCENDS Mission[C]. 24th International laser radar conference. 2008.
- [187] Koch, G. J., Beyon, J. Y., Gibert, F., Barnes, B. W., Ismail, S., Petros, M., Petzar, P. J., Yu, J., Modlin, E. A., Davis, K. J. and Singh, U. N., Side-line tunable laser transmitter for differential

- absorption lidar measurements of CO₂: Design and application to atmospheric measurements[J]. *Applied Optics*, 2008, 47(7): 944–956.
- [188] Gong, W., Ma, X., Han, G., Xiang, C., Liang, A. and Fu, W., Method for wavelength stabilization of pulsed difference frequency laser at 1572 nm for CO₂ detection lidar[J]. *Optics Express*, 2015, 23(5): 6151–6170.
- [189] Jost, J., Hall, J. and Ye, J., Continuously tunable, precise, single frequency optical signal generator[J]. *Optics Express*, 2002, 10(12): 515–520.
- [190] Schibli, T. R., Minoshima, K., Hong, F. L., Inaba, H., Bitou, Y., Onae, A. and Matsumoto, H., An arbitrary optical single-frequency generator based on a femtosecond frequency comb[C]. 2005 Pacific Rim Conference on Lasers & Electro-Optics. IEEE, 2005: 1713-1714.
- [191] Washburn, B. R., Fox, R. W., Newbury, N. R., Nicholson, J. W., Feder, K., Westbrook, P. S. and Jørgensen, C. G., Fiber-laser-based frequency comb with a tunable repetition rate[J]. *Optics Express*, 2004, 12(20): 4999–5004.
- [192] Kim, Y. J., Kim, Y., Chu, B. J., Hyun, S. and Kim, S. W., Multi-wavelength interferometry based on the frequency comb of a femtosecond laser[C]. Conference on Lasers and Electro-Optics/Pacific Rim. Optical Society of America, 2009, 16(1): 258–264.
- [193] Park, S. E., Kim, E. B., Park, Y.-H., Yee, D. S., Kwon, T. Y., Park, C. Y., Moon, H. S. and Yoon, T. H., Sweep optical frequency synthesizer with a distributed-Bragg-reflector laser injection locked by a single component of an optical frequency comb[J]. *Optics Letters*, 2006, 31(24): 3594–3596.
- [194] Miki, S., Fujiwara, M., Sasaki, M. and Wang, Z., Development of SNSPD system with Gifford-McMahon cryocooler[J]. *IEEE transactions on applied superconductivity*, 2009, 19(3): 332–335.
- [195] Shangguan, M., Xia, H., Wang, C., Qiu, J., Lin, S., Dou, X., Zhang, Q. and Pan, J.-W., Dual-frequency Doppler lidar for wind detection with a superconducting nanowire single-photon detector[J]. *Optics Letters*, 2017, 42(18): 3541–3544.
- [196] Miki, S., Yabuno, M., Yamashita, T. and Terai, H., Stable, high-performance operation of a fiber-coupled superconducting nanowire avalanche photon detector[J]. *Optics Express*, 2017, 25(6): 6796–6804.
- [197] Zhang, C., Zhang, W., You, L., Huang, J., Li, H., Sun, X., Wang, H., Lv, C., Zhou, H. and Liu, X., Suppressing dark counts of multimode-fiber-coupled superconducting nanowire single-photon detector[J]. *IEEE Photonics Journal*, 2019, 11(5): 1–8.
- [198] Gol'tsman, G. N., Korneev, A., Rubtsova, I., Milostnaya, I., Chulkova, G., Minaeva, O., Smirnov, K., Voronov, B., Słysz, W. and Pearlman, A., Ultrafast superconducting

- single-photon detectors for near-infrared-wavelength quantum communications[J]. *Physica Status Solidi (c)*, 2005, 2(5): 1480–1488.
- [199] Gol’tsman, G., Okunev, O., Chulkova, G., Lipatov, A. and Semenov, A., Picosecond superconducting single photon detector[J]. *Applied Physics Letters*, 2001, 79:705–707.
- [200] Korneev, A., Matvienko, V., Minaeva, O., Milostnaya, I., Rubtsova, I., Chulkova, G., Smirnov, K., Voronov, V., Gol’tsman, G. and Slys, W., Quantum efficiency and noise equivalent power of nanostructured, NbN, single-photon detectors in the wavelength range from visible to infrared[J]. *IEEE transactions on applied superconductivity*, 2005, 15(2): 571–574.
- [201] Rosfjord, K. M., Yang, J. K. W., Dauler, E. A., Kerman, A. J., Anant, V., Voronov, B. M., Gol’Tsman, G. N., and Berggren, K. K., Nanowire single-photon detector with an integrated optical cavity and anti-reflection coating[J]. *Opt. Express* 2006, 14(2): 527–534.
- [202] Polyakova, M. I., Florya, I. N., Semenov, A. V., Korneev, A. A. and Goltsman, G. N., Extracting hot-spot correlation length from SNSPD tomography data[C]. *Journal of Physics: Conference Series*. IOP Publishing, 2019, 1410(1): 012166.
- [203] Kiemle, C., Quatrevalet, M., Ehret, G., Amediek, A., Fix, A. and Wirth, M., Sensitivity studies for a space-based methane lidar mission[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2011, 4(10): 2195–2211.
- [204] Menzies, R. T. and Tratt, D. M., Differential laser absorption spectrometry for global profiling of tropospheric carbon dioxide: selection of optimum Sounding frequencies for high-precision measurements[J]. *Applied Optics*, 2003, 42(33): 6569–6577.
- [205] Theopold, F. A. and Bösenberg, J., Differential absorption lidar measurements of atmospheric temperature profiles: Theory and experiment[J]. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 1993, 10(2): 165–179.
- [206] Repasky, K. S., Bunn, C. E., Hayman, M., Stillwell, R. A. and Spuler, S. M., Modeling the performance of a diode laser-based (DLB) micro-pulse differential absorption lidar (MPD) for temperature profiling in the lower troposphere[J]. *Optics Express*, 2019, 27(23): 33543–33563.
- [207] Han, G., Gong, W., Lin, H., Ma, X. and Xiang, Z., 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*, 2014, 53(6), 3221–3234.
- [208] Tukey, J. W., *Exploratory Data Analysis*[M]. 1977.
- [209] Brownrigg, D. R. K., The weighted median filter[J]. *Communications of the ACM*, 1984, 27(8): 807–818.
- [210] Xiang, C., Han, G., Zheng, Y., Ma, X. and Gong, W., Improvement of CO₂-DIAL signal-to-noise ratio using lifting wavelet transform[J]. *Sensors*, 2018, 18(7): 2362.

致 谢

岁月不居，时节如流。转眼已在科大度过了六年的时光，这六年中经历了迷茫与挫折，却也收获了感动与成长。在写下这段致谢的此刻，我的心中百感交集，目之所及，皆是回忆。人生未易相逢，而我又是何其幸运，能在人生路上遇见改变我人生轨迹的恩师和朋友，同时还能有机会认识那么多善良且可爱的同学们。在此，我要感恩给予我支持和帮助的所有人。

感谢我的导师窦贤康院士。窦老师让我能够有机会在一流的实验条件下开展科研工作，进一步学习到更多新的知识和实验技能。窦老师在工作中一丝不苟，严于律己；在生活中对待学生更是平易近人。正是这种品格深深地感染了我，并时刻勉励着我要脚踏实地、克己复礼。

感谢我的导师夏海云教授。夏老师给予了我来到课题组的机会，使我能在求学路上更进一步。第一次见到夏老师的时候，他侃侃而谈、幽默风趣、颇有风范。在日后的相处过程中，夏老师亦师亦友，不论在学习上还是生活上对我们都非常关照。尤其是在长期的实验中始终得不到理想的观测结果时，夏老师常常陪伴我们一起探讨实验系统的改进方案和数据处理的方法，帮助我们解决实验中遇到的种种问题，为此付出了大量的时间和精力。夏老师严谨认真，时常教导我要求真务实，要努力把小事做细、把细事做透，并引领我向着更好的自己不断前行。

感谢安光所的刘建国研究员、桂华侨研究员和工程科学学院的刘诚教授在我初入研究生生涯时对我的指导。

感谢地空学院的薛向辉教授、雷久侯教授、李陶教授、刘睿教授、陶鑫教授、陆全明教授、傅云飞教授、苏振鹏教授、申成龙教授、王传兵教授、王荣生教授、卢三教授、陈廷娣工程师和方欣工程师，感谢您们对我的论文提出的宝贵意见和指导。

感谢上海微系统所的尤立星研究员和张成俊在超导单光子探测器方面给予我的帮助和支持；感谢航空工业北京长城计量测试技术研究所的武腾飞研究员、夏传青、赵春播在光梳频率锁定方面给予我的帮助和指导。

感谢上官明佳师兄。上官师兄从实验光源的搭建开始就一步步的指导我，他在实验中谨慎入微，注重每一个细节，使得实验能够顺利往前推进。在我数据处理遇到困难时，上官师兄不厌其烦地教我编写程序，这也为我如今能够独立处理大量的实验数据奠定了基础。

感谢陶雷刚师兄在光谱学数据处理方面对我的支持，并在我后续有不解的问题时一直持续为我解答，促使我对光谱学领域有了进一步的认识；感谢裘家

伟师兄和李蔓一在实验过程中帮助我调望远镜，并参与数据处理的讨论，贡献了很多有价值的建议；感谢余超师兄在探测器模块提供的技术支持；感谢江浦、曾建伟、程柄瑜、罗天成在外场实验中所做的贡献；感谢华冠和吴云斌在软件设计方面对我的指导和帮助，保障了锁定控制程序的稳定运行；感谢魏天问、王璐在数据处理方面的建议；感谢赵力杰、袁金龙、唐大为的帮助；同时也感谢王冲师兄、岳斌、吴柯南、张云鹏、苏练、强蔚、武秀、孙旻对我的关照，谢谢大家。

感谢安光所的余同柱师兄对我学习和生活上的关心，在我硕士期间给予了我很多的指导；感谢肖庆玲、王莹、杨太平、田晓敏在生活中的鼓励和陪伴。

感谢章振对实验所做的贡献，在我面临棘手的问题时对我的帮助。

感谢我的父母和弟弟，父母让我们在爱的包围下成长，为我和弟弟付出了青春和汗水，教会我们为人处世的道理。在我感到无助和迷茫的时候，总是能及时给予我爱的关怀。感谢父母这么多年的付出和培养！

余赛芬
中国科学技术大学
2021年5月于合肥

在读期间发表的学术论文与取得的其他研究成果

已发表论文:

- [1] **Saifen Yu**, Zhen Zhang, Manyi Li, Haiyun Xia, “Multi-frequency differential absorption lidar incorporating comb-referenced scanning laser for gas spectrum analysis,” *Optics Express* 29(9), 12984-12995, 2021.
- [2] **Saifen Yu**, Zhen Zhang, Haiyun Xia, Xiankang Dou, Tengfei Wu, Yihua Hu, Manyi Li, Mingjia Shangguan, Tianwen Wei, Lijie Zhao, Lu Wang, Pu Jiang, Chengjun Zhang, Lixing You, Leigang Tao, Jiawei Qiu, “Photon-counting distributed free-space spectroscopy,” Under review.
- [3] Zhen Zhang, Haiyun Xia, **Saifen Yu**, Lijie Zhao, Tianwen Wei, and Manyi Li, “Femtosecond imbalanced time-stretch spectroscopy for ultrafast gas detection,” *Appl. Phys. Lett.* 116(17), 171106 (2020).
- [4] 裘家伟、章振、**余赛芬**、魏天问、袁金龙、夏海云, “1.5 微米大气探测激光雷达研究进展,” *红外与激光工程*, 50(3), 20210079, 2021.

申请国家发明专利:

- [1] 夏海云, **余赛芬**, 岳斌, 上官明佳, 章振, 窦贤康, “一种环境气体的扫描探测方法及激光雷达”, 专利号 ZL 201910440252.9
- [2] 章振, 夏海云, 赵力杰, **余赛芬**, 窦贤康, “一种飞秒激光雷达以及气体成分探测方法”, 201810818525.4 (已受理)