



## 基于高分辨率激光外差光谱反演大气CO<sub>2</sub>柱浓度及系统测量误差评估方法

孙春艳 王贵师 朱公栋 谈图 刘锐 高晓明

Atmospheric CO<sub>2</sub> column concentration retrieval based on high resolution laser heterodyne spectra and evaluation method of system measuring error

Sun Chun-Yan Wang Gui-Shi Zhu Gong-Dong Tan Tu Liu Kun Gao Xiao-Ming

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 69, 144201 (2020) DOI: 10.7498/aps.69.20200125

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200125>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

### 您可能感兴趣的其他文章

#### Articles you may be interested in

激光外差光谱仪的仪器线型函数研究

Instrument line shape function of laser heterodyne spectrometer

物理学报. 2019, 68(6): 064208 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20181620>

基于傅里叶变换红外光谱技术测量大气中CO<sub>2</sub>的稳定同位素比值

Detection of stable isotopic ratio of atmospheric CO<sub>2</sub> based on Fourier transform infrared spectroscopy

物理学报. 2017, 66(22): 220204 <https://doi.org/10.7498/aps.66.220204>

气溶胶对大气CO<sub>2</sub>短波红外遥感探测影响的模拟分析

Simulation analysis of aerosol effect on shortwave infrared remote sensing detection of atmospheric CO<sub>2</sub>

物理学报. 2018, 67(3): 039202 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20171993>

1.572 μm附近CO<sub>2</sub>吸收光谱的测量

Measurement of absorption spectrum around 1.572 μm

物理学报. 2017, 66(10): 104206 <https://doi.org/10.7498/aps.66.104206>

波长调制-直接吸收方法在线监测大气中CH<sub>4</sub>和CO<sub>2</sub>浓度

Monitoring of ambient methane and carbon dioxide concentrations based on wavelength modulation-direct absorption spectroscopy

物理学报. 2020, 69(6): 064205 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191569>

近距离激光外差探测光学极限位移分辨率

Short-range optical limited displacement resolution in laser heterodyne detection system

物理学报. 2017, 66(23): 234208 <https://doi.org/10.7498/aps.66.234208>

# 基于高分辨率激光外差光谱反演大气 CO<sub>2</sub> 柱浓度及系统测量误差评估方法\*

孙春艳<sup>1)2)3)</sup> 王贵师<sup>1)†</sup> 朱公栋<sup>1)</sup> 谈图<sup>1)</sup> 刘锬<sup>1)</sup> 高晓明<sup>1)2)</sup>

1) (中国科学院合肥物质科学研究院, 安徽光学精密机械研究所, 合肥 230031)

2) (中国科学技术大学, 合肥 230026)

3) (淮南师范学院电子工程学院, 淮南 232038)

(2020年1月17日收到; 2020年4月19日收到修改稿)

利用实验室研制的近红外激光外差光谱仪, 开展了基于最优估计算法的温室气体柱浓度反演和系统测量误差的近似评估等相关工作. 首先, 通过光谱数据库、参考正向模型计算结果与傅里叶变换红外光谱技术探测结果筛选出了探测窗口, 并以此为依据选择了相应的激光器和探测器; 其次, 建立了基于参考正向模型最优估计浓度反演算法, 采用 Levenberg-Marquardt (LM) 迭代方法, 实现了整层大气 CO<sub>2</sub> 柱浓度及垂直分布廓线的反演, 并开展了长期观测对比实验, 验证了反演算法的可行性; 最后, 通过模拟所选探测窗口波段在不同白噪声条件下的正向大气透过率谱, 获得了系统 SNR 与柱浓度测量误差之间的近似对应关系. 该研究是探测系统不可或缺的理论计算部分, 将有助于完善激光外差技术在大气探测中的应用.

**关键词:** 激光外差, 测量误差, 参考正向模型, CO<sub>2</sub> 柱浓度

**PACS:** 42.62.Fi, 78.47.jh, 32.30.Bv, 29.30.-h

**DOI:** 10.7498/aps.69.20200125

## 1 引言

气候变化的主要驱动因素之一是地球大气中 CO<sub>2</sub><sup>[1,2]</sup> 温室气体加速生长的结果, 其生长原因与人类活动和人为排放紧密相关<sup>[3]</sup>, 近几十年来, 约 40% 的人为 CO<sub>2</sub><sup>[4]</sup> 排放在大气中, 而其余的则储存在陆地和海洋沉积物中. 尽管目前关于 CO<sub>2</sub> 的建模和观测得到了快速的发展, 但大气、陆地和海洋之间的碳交换过程尚未得到充分了解, 导致未来气候变化的预测存在相当大的不确定性, 评估区域温室气体源和汇的准确性取决于地面观测站的密度, 因此需大面积的进行布网, 从而更好地理解 CO<sub>2</sub> 及其他温室气体源、汇总量和时空分布. 基于吸收光谱技术的气体探测方法主要包括可调谐半

导体激光吸收光谱技术 (TDLAS)<sup>[5,6]</sup>、波长调制光谱技术 (WMS)<sup>[7-9]</sup>、傅里叶变换红外光谱技术 (FTIR)<sup>[10,11]</sup>、激光外差光谱技术 (LHR)<sup>[12-16]</sup> 等.

基于 LHR 的地基探测仪具有体积小、高分辨率、易集成等优点, 已用于多种气体的遥感探测. Sonnabend 等<sup>[12]</sup> 利用 10 μm 铅盐激光器建立的激光外差系统测量了臭氧的大气太阳透过率谱, 反演了臭氧的浓度廓线. Weidmann 等<sup>[13]</sup> 建立的 0.0073 cm<sup>-1</sup> 高分辨率激光外差系统, 实现了 O<sub>3</sub> 的廓线反演. Tsai 等<sup>[14]</sup> 建立了一套可调谐外腔量子级联激光外差辐射计, 测量并反演了大气 O<sub>3</sub>, N<sub>2</sub>O, CH<sub>4</sub>, H<sub>2</sub>O 等气体的垂直廓线分布信息. 在国内, 王晶晶等<sup>[15]</sup> 搭建了 3.53 μm 带间级联激光器为本振光源, 实现了 CH<sub>4</sub> 及 HDO 廓线反演, 其分辨率为 0.0033 cm<sup>-1</sup>. 张尚露等<sup>[16]</sup> 利用逐线积分辐射传

\* 国家重点研发项目 (批准号: 2017YFC0209700) 和国家自然科学基金重点项目 (批准号: 41730103) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: gswang@aiofm.ac.cn

输模式,对实测的激光外差透过率谱进行了非线性最小二乘拟合,实现了整层大气水汽柱浓度的反演.

本文利用建立的参考正向模型筛选出了适合的大气探测窗口,提出了精准的激光器波长相关校准方法,基于最优估算法实现了 CO<sub>2</sub> 柱浓度和垂直廓线分布的反演,并对 5 个月的探测数据与 GOSAT 数据进行了对比.此外,为了评估系统的测量误差,提出一种新的系统测量误差评估方法,通过对参考正向模型模拟的透过率谱加载不同幅度的白噪声,建立了信噪比与测量误差间的近似对应关系.

## 2 高分辨率大气 CO<sub>2</sub> 垂直廓线的数据反演

图 1 为高光谱分辨率激光外差技术反演的技术路线图,主要包括四个模块,分别为参考正向模型、探测吸收谱系统搭建、高分辨率光谱预处理以及迭代反演算法.本工作主要为算法研究,因此关于系统搭建部分在这里就不再赘述.

### 2.1 参考正向模型 (RFM)

参考正向模型 (RFM)<sup>[7]</sup> 由英国国家地球观测中心研发,是一种通用的逐线辐射传输计算模型.通过对源代码进行编译,并编辑和调用 rfm.drv 文件以获得大气透过率谱及雅可比矩阵等结果,为后

期的数据反演提供相应的正向计算数据.

利用 RFM 对整层大气透过率谱进行模拟可以用于选择合适的探测窗口,其选择依据需满足以下几点: 1) 避免其他气体分子及太阳谱干扰; 2) 合适的谱线强度; 3) 探测波段有可选的激光器及探测器.首先,通过查询 HITRAN2016 数据库<sup>[18]</sup>,可知 CO<sub>2</sub> 在 6230—6245 cm<sup>-1</sup> (1.601—1.605 μm) 波段具有较强的吸收;随后利用参考正向模型 (RFM) 模拟了 CO<sub>2</sub>, NH<sub>3</sub>, H<sub>2</sub>O, N<sub>2</sub>O, NO<sub>2</sub>, O<sub>3</sub>, CO 等 7 种小分子的大气透射光谱(如图 2 所示),通过对比总的模拟谱、单独的大气 CO<sub>2</sub> 和 H<sub>2</sub>O 模拟谱以及地基 FTIR 测量结果,最终选择了位于 6238.2—6239.3 cm<sup>-1</sup> 的探测窗口,并以此为依据选择了相应的激光器和探测器.

### 2.2 数据预处理

2019 年 3 月 12 日在中国科学院合肥物质科学研究院 (31.9°N, 117.166°E) 采集的 0.0073 cm<sup>-1</sup> 高光谱分辨率近红外激光外差数据如图 3 所示,采集模式为逐点扫描方式.

首先,对如图 3(a) 所示的 CO<sub>2</sub> 外差信号进行背景信号扣除处理,当电流较低时,激光器仍未出光(红色椭圆标记的部分),对其取平均得到外差信号的偏移量,利用外差信号减去该偏移量实现背景扣除.

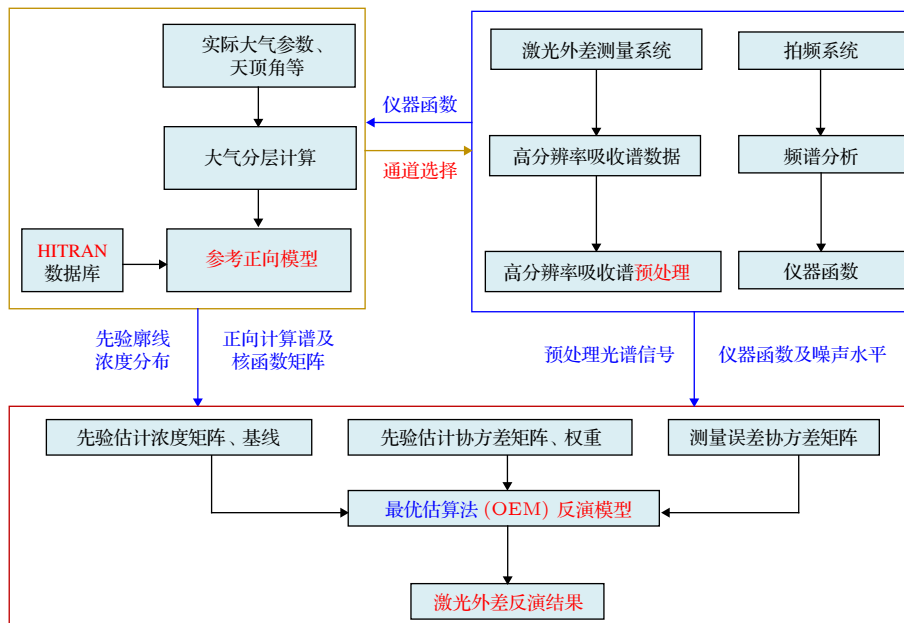


图 1 激光外差系统整体技术路线

Fig. 1. Overall technical route of laser heterodyne system.

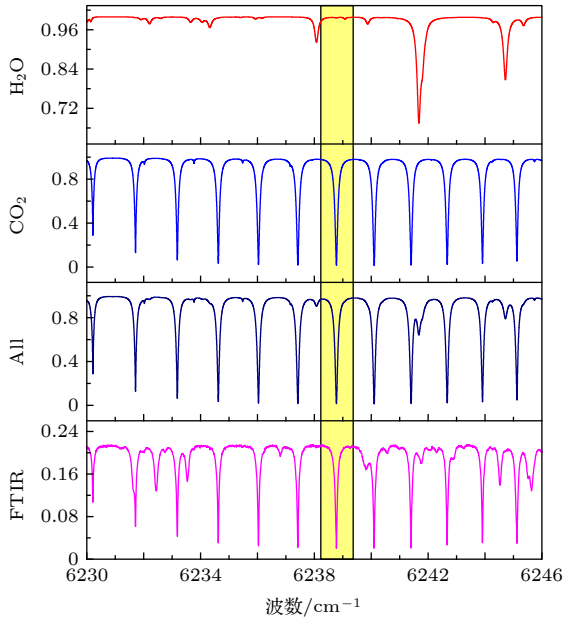


图 2 基于 RFM 模拟的正向透射率谱及所选探测窗口  
Fig. 2. Forward transmittance spectrum based on RFM simulation and selected detection window.

其次, 利用扣除背景后的外差信号除以图 3(c) 所示的 DC 信号对外差信号进行功率校正, 具体过程为

$$S_1 = (S_2 - D)/B, \quad (1)$$

其中,  $S_1$  为功率校准的激光外差信号,  $S_2$  为激光外差原始信号,  $D$  为偏移量,  $B$  为 DC 信号。

最后, 借助波长计和 HITRAN 数据库对外差信号进行波长标定, 并与参考正向模型相同的频率间隔进行插值处理. 需特别指出的是, 由于激

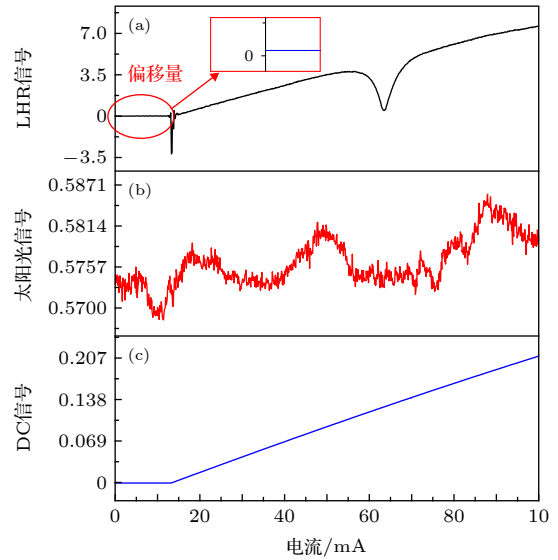


图 3 激光外差实验结果 (a) CO<sub>2</sub> 的高分辨率的外差信号; (b) 实时跟踪的太阳光信号; (c) 激光器的 DC 信号

Fig. 3. Experimental results of the laser heterodyne: (a) The high-resolution heterodyne signal of CO<sub>2</sub>; (b) the sunlight signal tracked in real time; (c) the DC signal of the laser.

光电流的工作模式为逐点扫描模式, 利用波长计 (Bristol, 621B) 能够方便地进行实时的波长标定. 但是, 在实际测量过程中, 激光器的工作波长可能会有轻微的变化 (如图 4(a) 所示). 为了准确识别该波长偏移, 如图 4(b) 所示, 通过移动真实信号, 计算 RFM 模型计算的参考信号和实际外差信号的相关系数, 其中移动步长可以用插值方法定义为任意小的长度 (如 0.0001 cm<sup>-1</sup>). 最后通过相关系数的最大值位置 (如图 4(b) 所示) 可以精确地确定

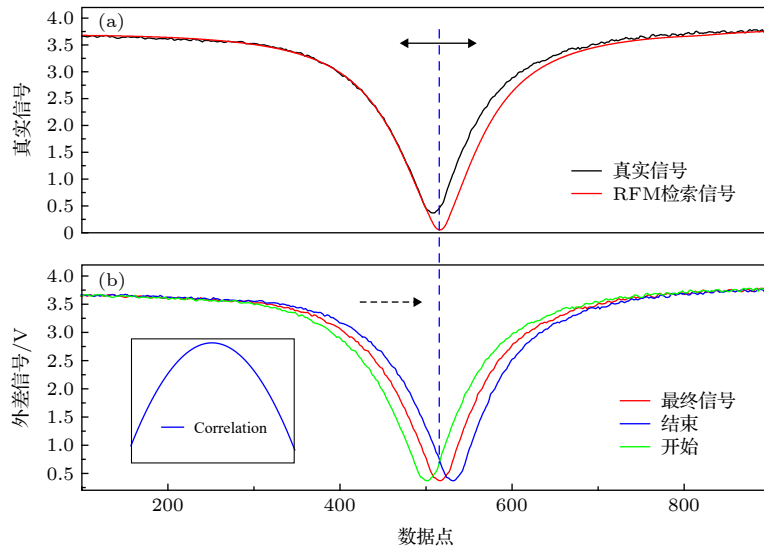


图 4 波数偏移校准原理 (a) 参考信号与实验信号之间的波数偏移; (b) 计算波数偏移的过程, 插图为相关系数的结果

Fig. 4. Principle of the wavenumber shift calibration: (a) Wavenumber shift between the reference signal and real signal; (b) the process of calculating the wavenumber shift. The inset shows the result of correlation coefficients.

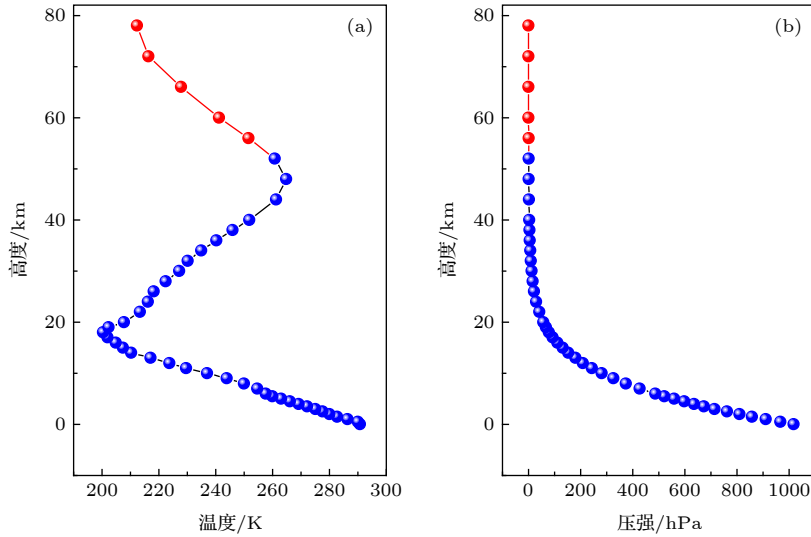


图 5 (a) 温度和 (b) 压力廓线  
Fig. 5. (a) Temperature and (b) pressure profiles.

波长偏移, 该方法在信噪比较差的情况下依然适用. 最终获得处理后的 LHR 频谱 (图 7(a) 中的黑点) 以备下一步的数据反演. 特别指出, 对于太阳光功率波动较大的信号 (大于平均太阳光功率的 10%), 将不再做进一步的处理.

### 2.3 大气参数及状态向量

如图 5 所示, 数据反演所采用的地表温度、压力数据来自于中国气象数据服务中心 (CMCC), 而 0.2—55.0 km 数据源自于美国气象环境预报中心 (NCEP) 合肥站的数据 (蓝点), 对于 55 km 以上的数据 (红点) 通过对欧洲中期天气预报中心 (ECMWF) 的月纬向平均廓线数据插值得到. 对于 CO<sub>2</sub> 的先验廓线, 使用了典型的中纬度白天廓线数据. 大气分层采用 45 层, 从地表到 78 km 高空, 高度网格依次为 0.5, 1.0, 2.0, 4.0 和 6.0 km.

### 2.4 迭代反演过程

LHR 数据反演的流程图如图 6 所示, 主要由参考正向模型、测量实验数据预处理和迭代反演等过程组成.

迭代反演采用 Rodgers<sup>[19,20]</sup> 提出的最佳估计方法 (OEM). 对于 OEM 方法在基于 LHR 大气探测中的应用, Weidmann 等<sup>[13]</sup> 已经做了详细的介绍. 在此仅做简要说明, 测量数据与大气状态向量之间的关系被描述为

$$\mathbf{y}_m = F(\mathbf{x}, a, b, c) + \boldsymbol{\varepsilon}, \quad (2)$$

其中  $\mathbf{y}_m$  是  $m$  维的测量向量,  $\mathbf{x}$  是  $n$  维参考正向模型中状态向量,  $\boldsymbol{\varepsilon}$  是误差向量, 二阶多项式基线 (系数为  $a$ ,  $b$  和  $c$ ) 表示目标光谱区域中的非选择性吸收和未校正的功率.

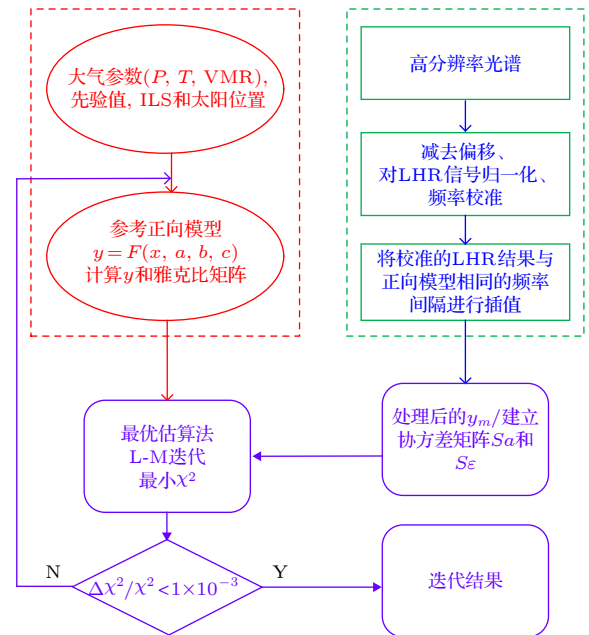


图 6 数据反演流程图 VMR, 体积混合比; ILS, 仪器线形; LM, Levenberg–Marquardt

Fig. 6. Data inversion flow chart. VMR, volume mixing ratio; ILS, instrument linear; LM, Levenberg–Marquardt.

OEM 算法为最小化损耗函数  $\chi^2$  的迭代运算过程, 其中损耗函数表示为

$$\chi^2 = (\mathbf{y} - F)^T \mathbf{S}_\varepsilon^{-1} (\mathbf{y} - F) + (\mathbf{x}_i - \mathbf{x}_a)^T \mathbf{S}_a^{-1} (\mathbf{x}_i - \mathbf{x}_a), \quad (3)$$

$S_\epsilon$  是测量协方差矩阵,  $S_a$  是先验协方差矩阵,  $x_a$  是先验 CO<sub>2</sub> 廓线. 迭代过程采用 Levenberg-Marquardt (LM) 方法,

$$x_{i+1} = x_i + [(1 + \gamma)S_a^{-1} + K_i^T S_\epsilon^{-1} K_i]^{-1} \times [K_i^T S_\epsilon^{-1} (y_m - F_i) - S_a^{-1} (x_i - x_a)], \quad (4)$$

其中  $K$  为雅可比矩阵 (或加权函数),  $\gamma$  为 LM (Levenberg-Marquardt) 参数.

在反演过程中, 通过 LM 算法 ((4) 式) 迭代调用参考正向模型以最小化损耗函数 ((3) 式), 最终反演出 CO<sub>2</sub> 的廓线. 其中,  $S_\epsilon$  是基于  $y_m$  测量向量的标准偏差构建的, 协方差矩阵设为对角矩阵, 而  $S_a$  依据先验向量的估计误差构建 (表 1). 迭代上

限设为 20 次, 收敛条件设为  $\Delta\chi^2/\chi^2 < 1 \times 10^{-3}$ . 在条件设置合理的反演中, 最终损耗函数  $\chi^2$  应该接近测量向量的维数大小. 图 7(a) 显示了经过预处理的 LHR 数据和在 6238.2—6239.3 cm<sup>-1</sup> 的光

表 1 数据反演中使用的状态向量的定义

Table 1. Definition of the state vector used in the data retrieval.

状态向量	先验值	定义
$x$ (CO <sub>2</sub> )	1	先验廓线的比例因子 (ECMWF) 45层.
$a$	$a_0$	基线中 $a_0$ 、 $b_0$ 和 $c_0$ 的多项式系数由对预处理的 LHR 信号与模型结果 (去除吸收部分后) 的比值进行二阶多项式拟合得到.
$b$	$b_0$	
$c$	$c_0$	

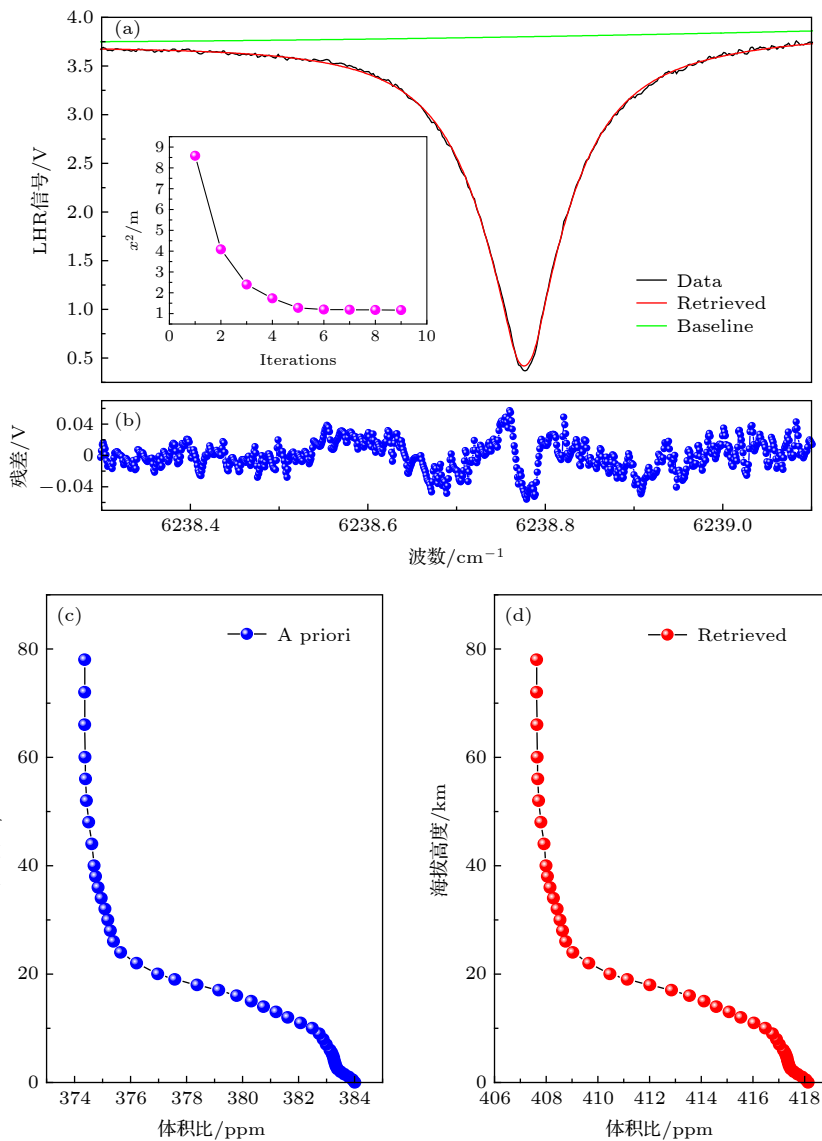


图 7 LHR 数据反演结果 (a) 实验和拟合 LHR 谱图以及迭代过程的收敛性 (插图); (b) 残差; (c) 和 (d) 分别获取的 CO<sub>2</sub> 的先验和反演的垂直浓度分布图

Fig. 7. Inversion results of LHR data: (a) Experimental and fitted LHR spectrogram and convergence of iterative process (illustration); (b) residue; (c) and (d) obtained prior and inversion vertical concentration profiles of CO<sub>2</sub>, respectively.

谱区域内的拟合光谱, 其间隔为  $0.001 \text{ cm}^{-1}$ . 迭代过程如图 7(a) 的插图所示, 经过 8 次迭代后获得的  $\chi^2/m$  约为 1.17. 预处理数据和拟合结果之间的残差如图 7(b) 所示, 其随机分布表明拟合良好. 通过将反演得到的比例因子乘以先验廓线, 可以计算出反演后  $\text{CO}_2$  廓线如图 7(d) 所示.

利用理想气体状态方程<sup>[21]</sup>  $n(h)$  以及反演得到的廓线  $x(h)$ , 则  $\text{CO}_2$  的柱浓度为

$$\text{Column\_CO}_2 = \int_0^{78} x(h)n(h)dh, \quad (5)$$

其中  $n(h)$  为高度  $h$  处的分子数密度, 整个大气层 78 km,  $x(h)$  为  $\text{CO}_2$  在高度  $h$  处的体积百分比.  $\text{CO}_2$  的柱浓度为  $8.2184 \times 10^{21} \text{ molecule/cm}^2$ .

图 8(a) 显示了 2019 年 3 月 14 日的连续测量结果,  $X_{\text{CO}_2}$  (表示为  $\text{CO}_2$  的柱浓度) 的标准偏差约为 0.47 ppm. 本研究仅对上午 11:00 至下午 13:00 的测量结果进行了分析, 这是因为美国气象环境预报中心 NCEP 和中国气象数据服务中心 CMCC 提供的时间点为 12:00, 且认为该段时间内大气参数是稳定的.

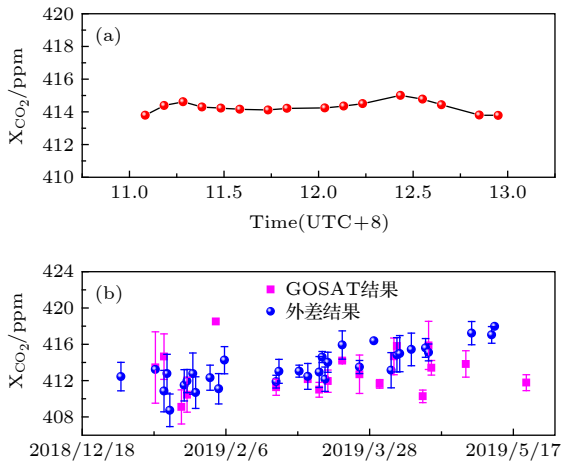


图 8 (a) 2019 年 3 月 14 日从 11:00 至 13:00 的  $X_{\text{CO}_2}$  的反演结果; (b)  $X_{\text{CO}_2}$  的外差结果和 GOSAT 结果的时间序列  
Fig. 8. (a) Retrieval results of the  $X_{\text{CO}_2}$  versus time from 11:00 to 13:00 on March 14, 2019; (b) time series of the LHR results and GOSAT results of  $X_{\text{CO}_2}$ .

为了进一步验证系统探测结果, 进行了 2019 年 1 月至 5 月长达 5 个月的晴天探测, 将实验数据反演结果与温室气体观测卫星 GOSAT 数据产品进行了比较. 图 8(b) 显示了该系统  $X_{\text{CO}_2}$  日平均反演结果 (以标准差为误差棒) 和 GOSAT 结果的时间序列, 其中 GOSAT 结果选取在以观测点 (合肥,  $31.9^\circ\text{N}$ ,  $117.166^\circ\text{E}$ ) 为中心,  $3^\circ$  半径范围内

的数据. 在测量过程中,  $X_{\text{CO}_2}$  的标准偏差为 0.12—3.92 ppm, 对应相对误差范围为 0.03%—0.95%. 从图 8(b) 可以看出, 对于  $X_{\text{CO}_2}$  的测量结果与 GOSAT 结果吻合较好, 其差异与 GOSAT 数据量较少、经纬度范围较大以及与系统测量误差等相关. 今后将对大气中  $\text{CO}_2$  进行长时间的探测, 进而开展季节和年度变化的研究.

### 3 系统测量误差近似评估模型

为了近似评估系统测量误差, 通过模拟正向计算谱叠加不同幅度白噪声, 得到 SNR,  $3\sigma$ , Max (平均值加上  $3\sigma$ )、Min (平均值减去  $3\sigma$ ) 与白噪声幅度之间的关系; 通过改变  $\text{CO}_2$  的廓线比例, 透过率谱最低点变化引起柱浓度变化; 以此 Max, Min 进行柱浓度插值, 从而得到了 SNR 和柱总量的差值 (测量误差) 间的近似对应关系.

首先, 对正向计算谱叠加不同幅值的白噪声以模拟不同的信噪比, 如图 9(a), RFM 模型加载

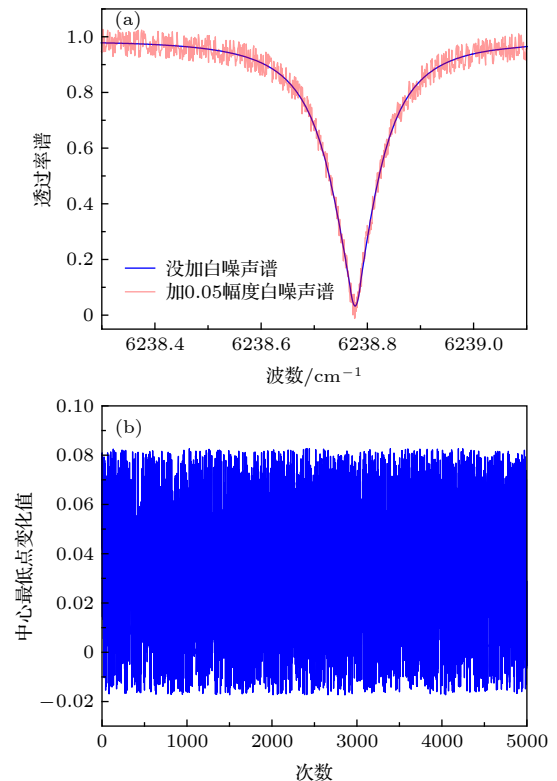


图 9 (a) 叠加 0.05 幅度的白噪声后的透过率谱; (b) 叠加 5000 次后透过率谱最低点的变化

Fig. 9. (a) The transmittance spectrum after adding white noise with the amplitude of 0.05; (b) change range of the lowest point of transmittance spectrum after adding 5000 times.

0.05 幅度的白噪声; 图 9(b) 为加载 5000 次幅值为 0.05 白噪声, 由波段吸收峰波谷位置的变化情况, 获得信噪比计算公式

$$\text{SNR} = (T' - T'')/\sigma, \quad (6)$$

其中  $T'$  和  $T''$  分别代表图 9(a) 透过率谱吸收峰的最大值和最小值,  $\sigma$  代表图 9(b) 的 5000 次数据的标准偏差.

模拟白噪声从幅度 0.001 到幅度 0.050, 步长为 0.001, 获得了 SNR,  $3\sigma$ , Max (平均值加上  $3\sigma$ ), Min (平均值减去  $3\sigma$ ) 的变化, 如图 10 所示. 从结果分析得到  $3\sigma$  和 Max 随着白噪声的幅度增加而增加, 而 Min 和 SNR 随着白噪声的幅度减少而减少.

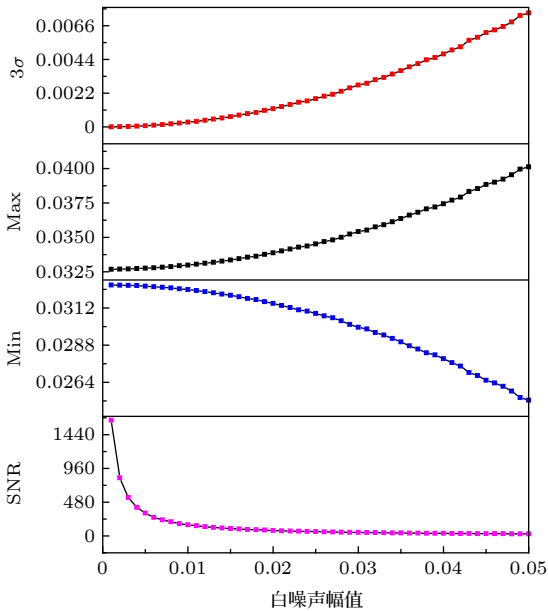


图 10 白噪声幅度 0.001 变化到幅度 0.050 引起的  $3\sigma$ , Max, Min 和 SNR 的变化

Fig. 10. Changes of  $3\sigma$ , Max, Min, and SNR caused by the white noise amplitude increasing from 0.001 to 0.050.

其次, 通过改变  $\text{CO}_2$  的廓线比例, 透过率谱最低点也随之变化, 相应的柱浓度变化情况如图 11(b). 利用图 10 中的 Max 插值获得柱总量 1, Min 插值获得柱总量 2, 柱总量 2 减去柱总量 1 为柱浓度差值, 即为测量误差.

最终建立近似 SNR 和柱总量的差值关系, 如图 12 所示. SNR 越大, 测量误差越低. 2019 年 3 月 12 日探测结果显示, 信噪比为 365.55, 通过此模型获得该系统测量误差为 0.44 ppm. 需说明的是, 在此仅考虑了信噪比对测量误差的近似评估,

其他影响如激光频率偏差、路径偏差以及仪器函数等的影响并未考虑, 后期将对该问题做进一步研究.

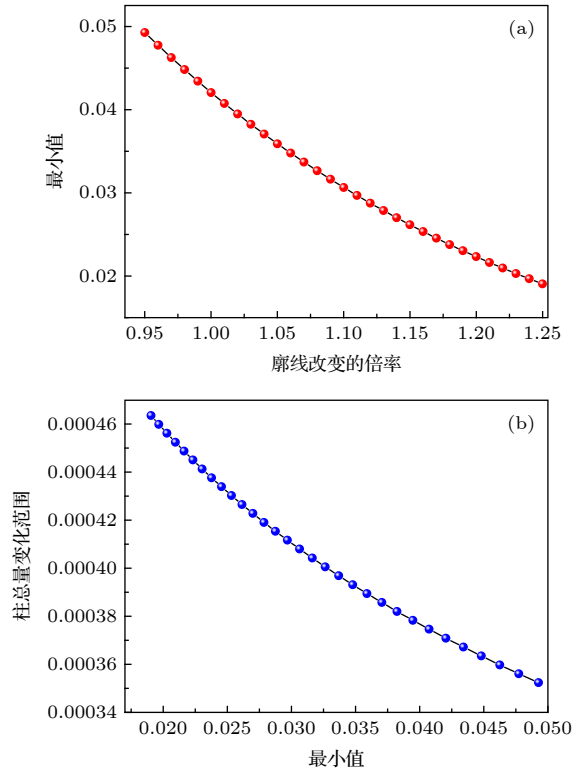


图 11 (a) 最小值与廓线变化关系; (b) 柱总量变化与最小值关系

Fig. 11. (a) The relationship between the minimum value and the change of profile; (b) the relationship between the change of column total and the minimum.

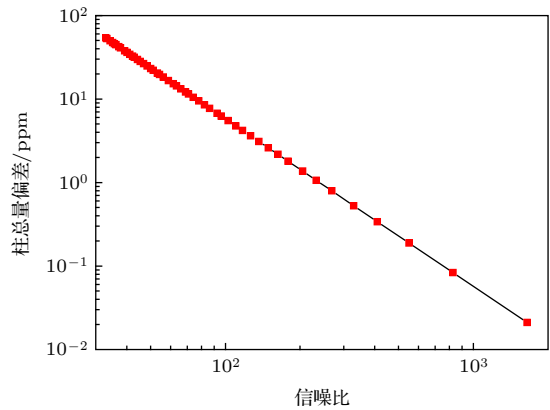


图 12 SNR 与测量误差间的对应关系

Fig. 12. The relationship between SNR and measurement error.

## 4 总结

本文通过对中国科学院合肥物质科学研究院 1 号楼探测的  $6238.2\text{--}6239.3\text{ cm}^{-1}$  波段的高分辨



率激光外差光谱进行预处理, 提出了精准的波长相关校准方法, 并利用参考正向模型及最优估计算法实现了实际大气整层  $\text{CO}_2$  柱浓度的反演; 随后进行了长期探测对比实验, 在测量过程中,  $X_{\text{CO}_2}$  的标准偏差为 0.12—3.92 ppm, 对应其精度范围为 0.03%—0.95%, 其数据与同期 GOSAT 数据吻合较好; 最后, 还提出了将白噪声叠加到正向计算谱上, 建立了系统测量误差的近似评估方法. 后续将对反演算法进行优化完善, 以实现多组分温室气体柱浓度的反演, 并进一步提高系统的测量精度.

## 参考文献

- [1] Xiang L, Gao Q X, Zhou S Q, Chen Y L 2009 *Adv. Clim. Change Res.* **5** 278 (in Chinese) [向亮, 高庆先, 周锁铨, 陈永立 2009 气候变化研究进展 **5** 278]
- [2] Shao J Y, Lin Z X, Liu L M, Gong W 2017 *Acta Phys. Sin.* **66** 104206 (in Chinese) [邵君宜, 林兆祥, 刘林美, 龚威 2017 物理学报 **66** 104206]
- [3] Wu J 2013 *Ph. D. Dissertation* (Hefei: University of Science and Technology of China) (in Chinese) [吴军 2013 博士学位论文 (合肥: 中国科学技术大学)]
- [4] Knorr W 2009 *Geophys. Res. Lett.* **36** L21710
- [5] Ding W W, Sun L Q, Yi L Y 2017 *Acta Phys. Sin.* **66** 100702 (in Chinese) [丁武文, 孙利群, 衣路英 2017 物理学报 **66** 100702]
- [6] Guan L Q, Deng H, Yao L, Nie W, Xu Z Y, Li X, Zang Y P, Hu M, Fan X L, Yang C G, Kan R F 2019 *Acta Phys. Sin.* **68** 084204 (in Chinese) [管林强, 邓昊, 姚路, 聂伟, 许振宇, 李想, 臧益鹏, 胡迈, 范雪丽, 杨晨光, 阚瑞峰 2019 物理学报 **68** 084204]
- [7] Guo X Q, Zheng F, Li C L, Yang X F, Li N, Liu S, Wei J L 2019 *Opt. Lasers Eng.* **115** 243
- [8] Sun K, Chao X, Sur R, Goldenstein C S, Jeffries J B, Hanson R K 2013 *Meas. Sci. Technol.* **24** 125203
- [9] Sun C Y, Cao Y, Chen J J, Wang J J, Cheng g, Wang G S, Gao X M 2020 *Chin. Phys. B* **29** 010704
- [10] Wang W, Liu W Q, Zhang T S 2014 *Acta Optic. Sin.* **34** 0130003 (in Chinese) [王薇, 刘文清, 张天舒, 2014 光学学报 **34** 0130003]
- [11] Zhao Y J, Wexler A S, Hase F, Pan Y, Mitloehner F M 2016 *J. Environ. Prot.* **7** 1719
- [12] Sonnabend G, Wirtz D, Frank Schmölling, Schieder R 2002 *Appl. Opt.* **41** 2978
- [13] Weidmann D, Reburn W J, Smith K M 2007 *Appl. Opt.* **46** 7162
- [14] Tsai T R, Rose R A, Weidmann D, Wysocki G 2012 *Appl. Opt.* **51** 8779
- [15] Wang J, Wang G, Tan T, Zhu G, Sun C, Cao Z, Chen W, Gao X 2019 *Opt. Express* **27** 9610
- [16] Zhang S L, Huang Y B, Lu X j, Cao Z S, Dai C M, Liu Q, Gao X M, Zhong R R, Wang Y J 2019 *Spectrosc. Spect. Anal.* **39** 1317 (in Chinese) [张尚露, 黄印博, 卢兴吉, 曹振松, 戴聪明, 刘强, 高晓明, 饶瑞中, 王英俭 2019 光谱学与光谱分析 **39** 1317]
- [17] Dudhia A 2017 *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **186** 243
- [18] Gordon I E, Rothman L S, Hill C, Kochanov R V, Tan Y, Bernath P F, Chance K V 2017 *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **203** 3
- [19] Rodgers C D 2000 *Inverse Methods for Atmospheric Sounding: Theory and Practise* (1st Ed.) (Singapore: World Scientific Publishing)
- [20] Rodgers C D 1990 *J. Geophys. Res.* **95** 5587
- [21] Shi G Y 2007 *Atmospheric Radiology* (Beijing: Science Press) (in Chinese) [石广玉 2007 大气辐射学 (北京: 科学出版社)]

# Atmospheric CO<sub>2</sub> column concentration retrieval based on high resolution laser heterodyne spectra and evaluation method of system measuring error\*

Sun Chun-Yan<sup>1)2)3)</sup> Wang Gui-Shi<sup>1)†</sup> Zhu Gong-Dong<sup>1)</sup>

Tan Tu<sup>1)</sup> Liu Kun<sup>1)</sup> Gao Xiao-Ming<sup>1)2)</sup>

1) (*Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Hefei Institutes of Physical Science, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China*)

2) (*University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China*)

3) (*School of Electronic Engineering, Huainan Normal University, Huainan 232038, China*)

( Received 17 January 2020; revised manuscript received 19 April 2020 )

## Abstract

In this paper, a near-infrared laser heterodyne spectrometer developed by the laboratory is used to investigate the inversion of greenhouse gas column concentration and approximately evaluate the system measurement errors based on the optimal estimation algorithm. Firstly, the spectral database and the calculation results from the reference forward model are compared with the ground-based FTIR results, thereby selecting the detection window, the corresponding laser and detector. Secondly, the optimal estimation concentration inversion algorithm based on the reference forward model is established, and the Levenberg-Marquardt (LM) iterative method is adopted to realize the inversion of the concentration and vertical distribution profile of atmospheric CO<sub>2</sub> column in the whole layer, and the long-term observation comparative experiment is carried out to verify the feasibility of this algorithm. Finally, by simulating the selected detection window spectrum in different white noise, the approximate corresponding relationship between the system signal-noise-ratio (SNR) and CO<sub>2</sub> column concentration measuring error is eventually obtained. This research is an indispensable theoretical calculation part of the detection system and will conduce to improving the application of laser heterodyne technology in atmospheric observations.

**Keywords:** laser heterodyne, measuring error, the reference forward model, CO<sub>2</sub> column concentration

**PACS:** 42.62.Fi, 78.47.jh, 32.30.Bv, 29.30.-h

**DOI:** 10.7498/aps.69.20200125

---

\* Project supported by the National Key Research and Development Program of China (Grant No. 2017YFC0209700) and the Key Program of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 41730103).

† Corresponding author. E-mail: [gswang@aiofm.ac.cn](mailto:gswang@aiofm.ac.cn)