

3.93  $\mu\text{m}$  激光外差光谱系统光学结构与  $\text{N}_2\text{O}$  测量张天民<sup>1,2,4</sup>, 黄俊<sup>2,4</sup>, 黄尧<sup>2,4</sup>, 齐刚<sup>2,3,4</sup>, 袁子豪<sup>2,3,4</sup>, 曹振松<sup>2,4</sup>, 黄印博<sup>2,4</sup>, 饶瑞中<sup>2,4</sup>, 卢兴吉<sup>2,4\*</sup><sup>1</sup>中国科学技术大学环境科学与光电技术学院, 安徽 合肥 230026;<sup>2</sup>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, 中国科学院大气光学重点实验室, 安徽 合肥 230031;<sup>3</sup>中国科学技术大学研究生院科学岛分院, 安徽 合肥 230026;<sup>4</sup>先进激光技术安徽省实验室, 安徽 合肥 230037

**摘要** 激光外差光谱(LHS)系统具有光谱分辨率高、探测灵敏度高和体积小等特点,在高分辨率太阳光谱和整层大气透过率测量等应用中受到关注。以 3.93  $\mu\text{m}$  分布反馈式带间级联激光器(DFB-ICL)作为本振光源搭建了激光外差光谱测量系统,以太阳光作为信号光,利用 Zemax 光学仿真软件对太阳光与激光的耦合进行设计和仿真。基于开普勒望远镜原理设计了太阳光整形结构。光斑整形后有效提高了外差耦合效率,将系统信噪比提高至 162.1,比无整形条件下获得的信噪比提高了一倍。利用搭建的激光外差系统实测了合肥地区整层大气  $\text{N}_2\text{O}$  吸收光谱,采用最优估算法反演了  $\text{N}_2\text{O}$  的柱浓度,均值为  $0.311 \times 10^{-6}$ ,反演结果与 EM27/SUN 的实测结果进行比较,两种方式获得的  $\text{N}_2\text{O}$  柱浓度相关性为 0.856。测量结果表明,激光外差光谱测量系统的光学结构经设计和优化后,光学耦合效率和系统信噪比均得到有效提升,基于实测太阳光谱反演获得的  $\text{N}_2\text{O}$  柱浓度也与商用仪器观测结果具有较好的一致性。

**关键词** 光谱学; 激光外差; 信噪比; 光斑整形; 光学仿真; 反演算法

**中图分类号** O433.1

**文献标志码** A

**DOI:** 10.3788/CJL230453

## 1 引言

大气中的  $\text{N}_2\text{O}$  近 80% 来源于农作物耕种,其余主要为化石燃料的燃烧。 $\text{N}_2\text{O}$  作为继  $\text{CO}_2$  和  $\text{CH}_4$  之后第三重要的温室气体,在大气中停留的平均寿命可达 150 年,全球百年升温潜能更是较  $\text{CO}_2$  高约 298 倍、比  $\text{CH}_4$  高约 11.92 倍,且在大气中的含量以每年 0.2%~0.3% 的速率增加<sup>[1-2]</sup>。同时,平流层中的  $\text{N}_2\text{O}$  受到紫外线照射后活性增加从而大量消耗  $\text{O}_3$ ,造成臭氧层的破坏,使得地表紫外辐射变强,对生态系统造成严重影响<sup>[3]</sup>。 $\text{N}_2\text{O}$  在 3.9  $\mu\text{m}$  和 4.5  $\mu\text{m}$  波段有较强的吸收,使得该波段的红外辐射在穿透地球大气时会被强烈吸收,因此大气中  $\text{N}_2\text{O}$  吸收光谱及其浓度测量研究不仅可以为大气物理化学过程研究和污染防治提供支撑,而且可以为红外辐射传输和激光大气传输研究提供基础。

测量大气中  $\text{N}_2\text{O}$  浓度的方法主要包括原位测量、卫星遥感和地基遥感等<sup>[4-6]</sup>。原位测量主要包括光声光谱、腔增强和腔衰荡等技术。光声光谱技术的理论检测极限最高可达到  $10^{-13}$  量级<sup>[4]</sup>,例如孙柳雅等<sup>[7]</sup>以 444 nm 波段激光器为激发光源,基于光声光谱技术高

灵敏度的特点搭建了一套气体传感器,实现了对  $\text{N}_2\text{O}$  的测量,系统的浓度探测极限为  $1 \times 10^{-9}$ 。腔增强吸收光谱技术因灵敏度高、适应性强等特点而可用于大气中氮氧化物的检测,其检测极限可达到  $0.5 \times 10^{-12}$ ~ $2.0 \times 10^{-12}$  量级<sup>[8]</sup>,吴志伟等<sup>[9]</sup>根据  $\text{N}_2\text{O}$  在  $6561.39 \text{ cm}^{-1}$  处的基频吸收,采用腔增强吸收光谱技术对其进行检测,获得了  $2.34 \times 10^{-7}$  的检测极限。腔衰荡光谱技术具有灵敏度高、稳定性好等特点,常用于高精度痕量气体的检测,唐靖<sup>[10]</sup>搭建了一套腔衰荡激光光谱痕量气体检测系统,实现了 7.6  $\mu\text{m}$  波段大气中  $\text{N}_2\text{O}$  的高精度检测,测量灵敏度达到  $2.32 \times 10^{-10}$ 。卫星遥感是获取温室气体总量、水平分布以及垂直廓线的一种重要手段,欧洲 Metop 系列极轨气象卫星通过搭载干涉红外大气探测仪,实现大气  $\text{N}_2\text{O}$  在  $1350 \sim 2420 \text{ cm}^{-1}$  波段内的吸收光谱测量,但目前卫星遥感的探测能力和验证能力需进一步改善<sup>[11]</sup>。傅里叶变换光谱探测技术由于其测量精度高、准确度高、可连续观测等特点,被广泛应用于温室气体地基遥感,Berhe 等<sup>[12]</sup>使用傅里叶变换光谱仪测量了大气中  $\text{N}_2\text{O}$  的吸收光谱,并反演获得了  $\text{N}_2\text{O}$  柱浓度,然而高光谱分辨率的傅里叶变换光谱仪一般体积较大,且维护成本高昂。目前,国内针对整

收稿日期: 2023-01-12; 修回日期: 2023-02-16; 录用日期: 2023-02-27; 网络首发日期: 2023-03-09

基金项目: 国家自然科学基金重大科研仪器研制项目(42027804)、先进激光技术安徽省实验室青年基金(AHL2021QN01)

通信作者: \*xjlu@aiofm.ac.cn

层大气 N<sub>2</sub>O 浓度的测量研究尚不充分,且由于大气中 N<sub>2</sub>O 本底浓度低,仅约 0.31×10<sup>-6</sup>,因此测量仪器的精度需达到较高水平,才能满足 N<sub>2</sub>O 的测量要求。

激光外差光谱(LHS)测量技术具有光谱分辨率高、探测灵敏度高、采样时间短等特点。该技术不仅可以获得整层大气分子的高分辨光谱信息,同时因体积小、易集成等优势也便于实现不同场景下气体浓度的观测<sup>[13-15]</sup>。基于上述特点,激光外差技术非常适合 N<sub>2</sub>O 的吸收光谱测量研究,因此 Weidmann 等<sup>[16]</sup>用 8.4 μm 波段的量子级联激光器(QCL)作为本振光源搭建激光外差系统,对大气中 N<sub>2</sub>O 等多种分子的吸收谱线进行了测量;薛正跃等<sup>[17]</sup>利用自制高精度太阳跟踪仪获得了 3.9 μm 波段 N<sub>2</sub>O 分子的整层大气透过率谱,系统信噪比(SNR)达 93。目前,国内针对激光外差光谱测量系统的研究主要集中在太阳跟踪、光谱分辨率和反演算法等方面。由于外差系统接收的探测信号功率低等问题,外差系统实际工作时的信噪比偏低,尤其是当以能量较小的太阳光作为信号光与本振激光耦合时,其外差耦合效率会严重影响系统信噪比。安徽光学精密机械研究所邓昊<sup>[18]</sup>采用光学放大器对输入光信号进行放大,提高了近红外激光外差系统的信噪比,但中红外波段的系统信噪比无法使用该方式提高。通过对输

入的太阳光进行整形来提高太阳光与本振激光的耦合效率,是提高中红外波段激光外差系统信噪比的有效方法。

针对上述需求,本文利用 3.93 μm 分布反馈式带间级联激光器(DFB-ICL)作为本振光源搭建了激光外差光谱测量系统,并基于开普勒望远镜原理设计了一套太阳光整形结构,对太阳光光斑尺寸的缩束规律和外差拍频效果进行研究。通过光束整形提升太阳光的功率以及通过对两光束光斑大小匹配提高系统信噪比,从而提高 N<sub>2</sub>O 吸收光谱测量灵敏度。利用最优估算法(OEM)反演整层大气 N<sub>2</sub>O 浓度,并将柱浓度反演结果与傅里叶变换光谱仪 EM27/SUN 反演结果进行了对比分析。

## 2 实验原理

### 2.1 外差耦合效率与信噪比分析

激光外差光谱测量的原理如图 1 所示,太阳光经光学斩波器调制后和激光在合束镜(BC)上合束,再入射到探测器光敏面上混频,产生外差信号,该信号通过射频放大器一级或多级放大、带通滤波器滤除噪声后,再由功率检波器输出得到与输入信号相关的光谱信号<sup>[19-21]</sup>。

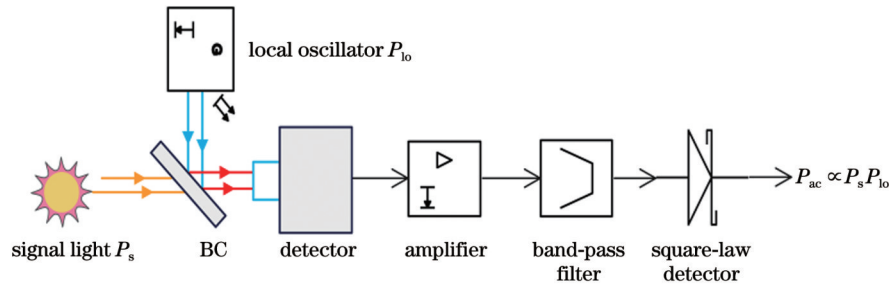


图 1 激光外差光谱测量原理图

Fig. 1 Schematic diagram of laser heterodyne spectrum measurement

由探测器产生的光电流交流项记为  $i_{ac}$ ,则外差信号功率可表示为<sup>[15]</sup>

$$P_{ac} = i_{ac}^2 R_L = 2\alpha^2 P_s P_{lo} R_L, \quad (1)$$

式中: $\alpha$ 为探测器的量子效率; $P_s$ 为信号光功率; $P_{lo}$ 为本振光功率; $R_L$ 为探测器的负载电阻。

由式(1)可知,当太阳光作为信号光源、激光作为本振光源时,外差信号功率与太阳光功率、激光功率成正比,因此提高太阳光功率  $P_s$  对提升外差系统的信噪比有着重要意义。

激光外差测量系统中,由于激光功率  $P_{lo}$  较高,系统的热噪声和背景噪声被抑制,因此信噪比  $R_{SN}$  主要受激光诱导的散粒噪声影响。 $R_{SN}$  可表示为<sup>[22]</sup>

$$R_{SN} = \frac{\alpha P_s}{h\nu B}, \quad (2)$$

式中: $h\nu$ 为光子能量; $B$ 为系统的滤波带宽。

本振光的电场振幅为  $A_{lo}$ ,角频率为  $\omega_{lo}$ ,相位角为

$\varphi_{lo}$ ;信号光的电场振幅为  $A_s$ ,角频率为  $\omega_s$ ,相位角为  $\varphi_s$ ;探测器光敏面面积为  $A_T$ ,表面介质本征阻抗为  $r$ 。则探测器输出光电流均值为<sup>[22]</sup>

$$i = \frac{\alpha e}{2h\nu r} \cdot \iint_{A_T} (A_s^2 + A_{lo}^2) dA_T + \frac{\alpha e}{h\nu r} \cdot \iint_{A_T} A_s A_{lo} \cos [(\omega_s - \omega_{lo})t + (\varphi_s - \varphi_{lo})] dA_T. \quad (3)$$

式(3)右边第一项为直流输出,记为  $i_{dc}$ ;第二项为中频输出,记为  $i_{if}$ 。若  $(\varphi_s - \varphi_{lo})$  在探测器光敏面上为恒值,则式(2)可进一步表示为<sup>[22-23]</sup>

$$R'_{SN} = \frac{i_{if}^2}{2e i_{dc} B} = \frac{\left( \iint_{A_T} A_s A_{lo} dA_T \right)^2}{\iint_{A_T} A_{lo}^2 dA_T \int_0^\infty A_s^2 dA_T} \cdot \frac{\alpha P_s}{h\nu B}. \quad (4)$$

由式(4)可以看出,信噪比与探测器光敏面的尺寸

以及本振光、信号光在探测器上的电场分布等因素有关。对比式(2)和式(4),信噪比存在一个衰减系数  $\eta$ ,用归一化振幅  $U$  表示  $A$ ,则  $\eta$  表示为

$$\eta = \frac{\left( \iint_{A_T} U_s U_{lo} dA_T \right)^2}{\iint_{A_T} U_{lo}^2 dA_T \iint_0^\infty U_s^2 dA_T} \quad (5)$$

当信号光与本振光的光斑尺寸存在一个比例因子  $\beta$  时,归一化电场分布函数可表示为

$$U_{lo}(x) = \frac{2J_1(x)}{x}, \quad U_s(x) = \frac{2J_1(\beta x)}{\beta x}, \quad (6)$$

式中:  $J_1(x)$  为一阶贝塞尔函数;  $x = \pi l / \lambda F_\#$ ,  $l$  为探测器光敏面的半径,  $\lambda$  为光的波长,  $F_\#$  为收集光学器件的  $F$  数。

于是  $\eta$  可进一步表示为

$$\eta = \frac{\left[ \iint_{A_T} \frac{J_1(\beta x)}{\beta x} \cdot \frac{J_1(x)}{x} dA_T \right]^2}{\frac{\pi}{\beta^2} \iint_{A_T} \left[ \frac{J_1(x)}{x} \right]^2 dA_T} \quad (7)$$

衰减系数  $\eta$  为外差耦合效率。根据数值模拟结果<sup>[22]</sup>,当比例因子  $\beta$  控制在 0.8~1.2 范围内时,系统的信噪比大于  $0.7R_{SN}$ 。因此,若两光斑尺寸在探测器光敏面上失配较小,则对提高耦合效率和信噪比有着重要意义。

在外差拍频的过程中,光束在探测器光敏面  $A_T$  上的分布如图 2 所示。入射到探测器光敏面上的太阳光只有与激光叠加的部分才有助于外差探测,杂散光将产生噪声。探测器的有效接收面  $A_T$  被激光照射时,有效的太阳光只在立体角  $\Omega_s$  范围内<sup>[24-25]</sup>。

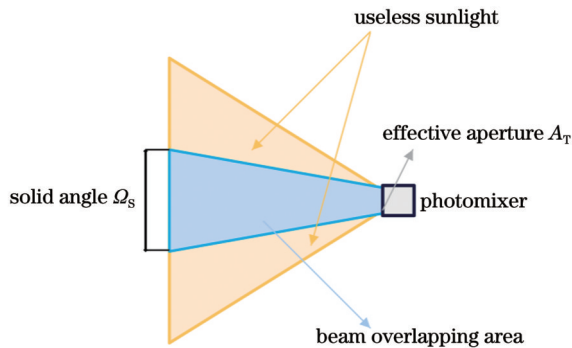


图 2 光束在探测器光敏面  $A_T$  上的分布

Fig. 2 Distribution of light beam on photosensitive surface  $A_T$  of detector

通过圆形光阑的太阳光符合夫琅禾费衍射理论,探测器的视场(FOV)可表示为<sup>[24,26]</sup>

$$\theta_{FOV} = \frac{2R}{f} = \frac{4\lambda}{\pi D}, \quad (8)$$

式中:  $f$  为收集太阳光透镜的焦距;  $R$  为透镜的半径;  $D$  为透镜的直径,即  $D = 2R$ 。

图 3 所示为探测器视场和透镜的几何关系图。

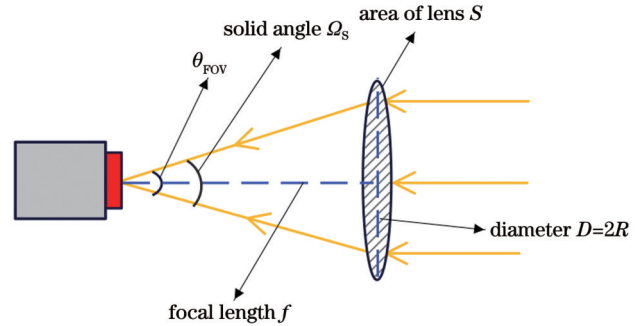


图 3 探测器视场和透镜的几何关系

Fig. 3 Geometric relationship between FOV of detector and lens

根据上述理论分析,如图 4 所示,为提高外差系统信噪比,入射到探测器光敏面上的两光斑尺寸 ( $H_s$ 、 $H_L$ ) 比例应在 0.8~1.2 范围内,且两光束聚焦角 ( $\theta$ 、 $\theta'$ ) 和光斑尺寸分别小于探测器视场  $\theta_{FOV}$  和有效接收面积  $A_T$ 。

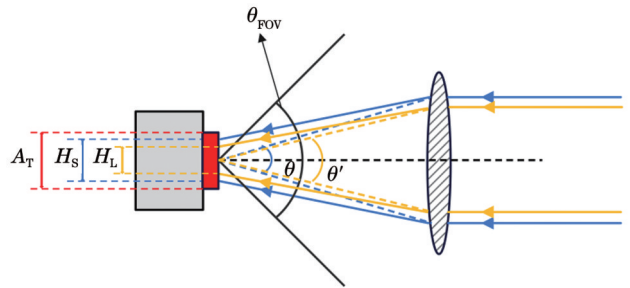


图 4 光束尺寸、聚焦角与探测器视场、有效接收面积的几何关系

Fig. 4 Geometric relationship among beam size, beam focus angle and FOV, effective receiving area in detector

## 2.2 N<sub>2</sub>O 柱浓度反演算法

最优估算法最早由 Rodgers<sup>[27]</sup> 提出,目前在气体分子柱浓度反演方面的运用已趋于成熟。本文基于最优估算法编写了 N<sub>2</sub>O 柱浓度反演程序,其反演流程如图 5 所示<sup>[28]</sup>。具体流程为:(1)对实验测得的原始信号进行去调制、去背景信号和本振激光功率校正等预处理,得到测量光谱;(2)利用欧洲中期天气预报中心(ECMWF)和 TCCON 网站获取的温度、压力和先验 N<sub>2</sub>O 浓度廓线等信息,结合外差仪器函数、HITRAN 数据库光谱参数输入前向模型,计算初始透过率;(3)根据初始透过率计算 Jacobin 矩阵;(4)根据最优估算法进行反演,并对 N<sub>2</sub>O 浓度廓线进行迭代,直到代价函数的变化小于设定的范围,更新输出 N<sub>2</sub>O 浓度廓线,再积分得到 N<sub>2</sub>O 气体柱浓度<sup>[28-31]</sup>。



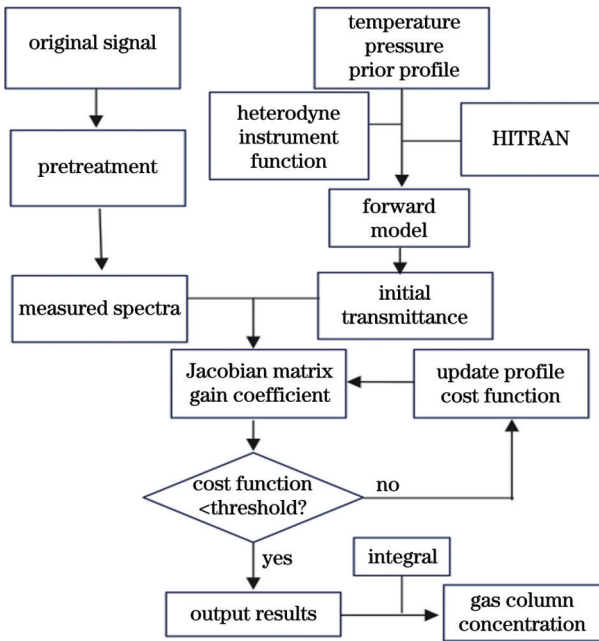


图 5 N<sub>2</sub>O 柱浓度反演流程图

Fig. 5 Flow chart of N<sub>2</sub>O column concentration inversion

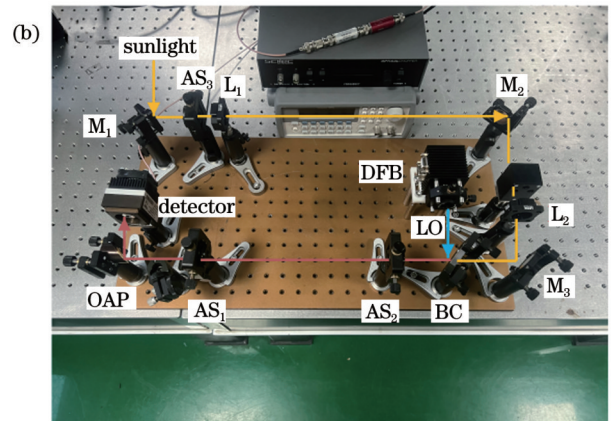
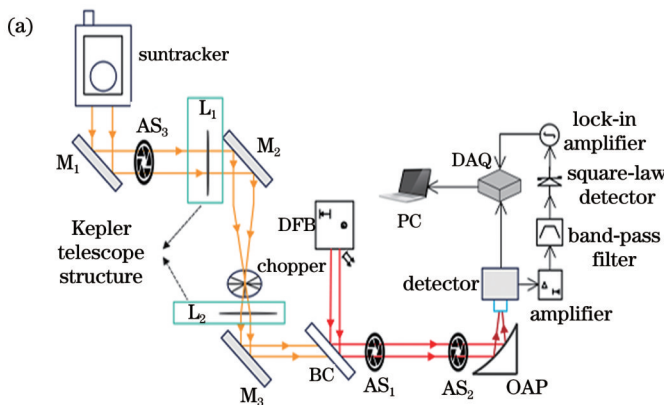


图 6 激光外差光谱探测系统。(a)结构图;(b)实物图

Fig. 6 Laser heterodyne spectrometer. (a) Structure diagram; (b) real picture

激光外差系统采用的 DFB 激光器线宽优于 10 MHz。在实验过程中,为了满足 N<sub>2</sub>O 吸收光谱所需的分辨率和信噪比,并在系统噪声得到抑制的同时获得更快的响应速度和更短的采样时间,对本振激光波长扫描范围、本振激光扫描周期、射频滤波带宽和积分时间等参数进行了分析和优化。系统主要参数设置如表 1 所示。

根据仪器线型函数理论公式计算<sup>[32]</sup>,在上述扫描

表 1 3.93 μm 激光外差系统主要参数

Table 1 Main parameters of 3.93 μm laser heterodyne system

| Parameter                        | Value         |
|----------------------------------|---------------|
| Spectral range /cm <sup>-1</sup> | 2542.9–2545.0 |
| Filter bandwidth /MHz            | 88            |
| Scan period /s                   | 36            |
| Integration time /ms             | 30            |

### 3 系统组成与光学仿真

#### 3.1 激光外差系统组成

本文搭建的 3.93 μm 激光外差光谱测量系统结构图和实物图如图 6 所示,主要包括太阳跟踪模块、外差光路模块和信号处理模块三个部分。实验过程中,太阳光经斩波器调制后与激光在合束镜上合束,合束光再由抛物面镜聚焦在探测器上产生外差信号。外差信号通过后续的射频放大、带通滤波、功率检波后经锁相放大器解调,最终得到光谱信号。

对于系统光路部分,太阳跟踪仪跟踪到太阳后,由反射镜 M<sub>1</sub> 将太阳光反射到外差光路模块。为满足太阳光尺寸和功率的要求,在反射镜 M<sub>1</sub> 后添加光阑 AS<sub>3</sub> 控制入射太阳光的光通量,平凸透镜 L<sub>1</sub> 和平凸透镜 L<sub>2</sub> 构成开普勒望远镜结构,用于对太阳光的缩束。同时,若入射到探测器上的激光和太阳光存在夹角,系统信噪比也会降低,因此在离轴抛物面镜 OAP 和合束镜 BC 之间设置光阑 AS<sub>1</sub>、AS<sub>2</sub>,其间距设置为 400 mm,保证两束光的共线要求。

周期、滤波带宽和积分时间条件下,激光外差系统的光谱分辨率为 0.008 cm<sup>-1</sup>,在确保系统光谱分辨率的同时,可获得较好的光谱测量结果。

#### 3.2 光学结构仿真

激光经准直镜出射后,光斑直径为 3.0 mm。选择透镜组成开普勒望远镜结构时,透镜间的距离越长光束的波前质量越好,因此焦距较长的透镜组合更加合适。为匹配激光光斑大小实现两束光的高效耦合,且避免探测器饱和以及杂散光噪声的影响,收集的太阳光光束尺寸不能过大。综上,考虑整形透镜与探测器光敏面的距离、耦合效率和探测器的性能,入射太阳光光束直径设置为 4.5 mm,选择焦距为 750 mm 的平凸透镜 1 和焦距为 500 mm 的平凸透镜 2 构成 1.5 倍光束收缩开普勒望远镜结构用于对太阳光的整形。

利用 Zemax 仿真软件对太阳光缩束结构进行仿真,镜头数据编辑器相关参数设置如表 2 所示。透镜

表 2 Zemax 仿真设计主要参数

Table 2 Main parameters of Zemax simulation design

| Surface type |          | Radius /mm | Thickness /mm | Glass            | Semi-diameter /mm |
|--------------|----------|------------|---------------|------------------|-------------------|
| OBJ          | Standard | Infinity   | Infinity      | -                | 0                 |
| STO          | Standard | Infinity   | 200.00        | CaF <sub>2</sub> | 2.250             |
| 2            | Standard | 325.4      | 2.20          | -                | 12.700U           |
| 3            | Standard | Infinity   | 1320.155V     | CaF <sub>2</sub> | 12.700U           |
| 4            | Standard | 216.9      | 2.40          | -                | 12.700U           |
| 5            | Standard | Infinity   | 800.00        | -                | 12.700U           |
| IMA          | Standard | Infinity   | -             | -                | 1.500U            |

的曲率半径、厚度、材料以及净口径均为常数,将标准面 3(平凸透镜 1 的后表面)和标准面 4(平凸透镜 2 的前表面)的距离设置为变量,入瞳直径设置为 4.5 mm。输入相关参数,开普勒望远镜结构仿真优化后,太阳光光束整形结构图如图 7(a)所示,两透镜间的距离为 1320.155 mm。由图 7(b)光斑缩束点列图可以看出,

太阳光经该结构 1.5 倍收缩后的光束半径为 1499.76  $\mu\text{m}$ ,符合所需光斑尺寸要求。整形后的太阳光与激光经抛物面镜聚焦,再入射到探测器上,经抛物面镜聚焦后的焦点处激光和太阳光光斑直径分别为 0.44 mm 和 0.45 mm,聚焦角  $\theta$  为 3.4°,分别小于探测器 1 mm  $\times$  1 mm 的接收面积和 36°的视场。

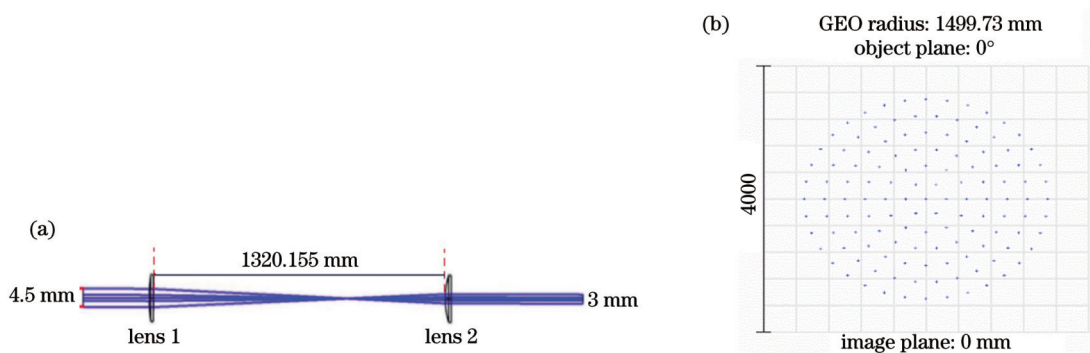


图 7 太阳光光束整形仿真结果。(a)太阳光光束整形结构图;(b)太阳光光斑缩束点列图

Fig. 7 Simulation results of sunlight beam shaping. (a) Structure diagram of sunlight beam shaping; (b) spot diagram of sunlight spot after beam reduction

## 4 实验结果

### 4.1 系统信噪比

为研究太阳光的不同缩束比在与激光耦合时对外差效率的影响,设定入射到平凸透镜 1 上的太阳光光斑直径为 4.5 mm,通过改变平凸透镜 1 和平凸透镜 2

之间的距离,改变整形后的光斑大小。记录本振激光无分子吸收的波段与太阳光进行拍频时锁相放大器输出的外差信号,再切断太阳光的输入,记录系统的背景幅值,即可计算出外差系统的信噪比。太阳光经透镜缩束后直径为 2.2、2.5、3.0、3.4、4.1 mm 时系统的最佳信噪比如图 8 所示。结果表明,在保证两束光以同一

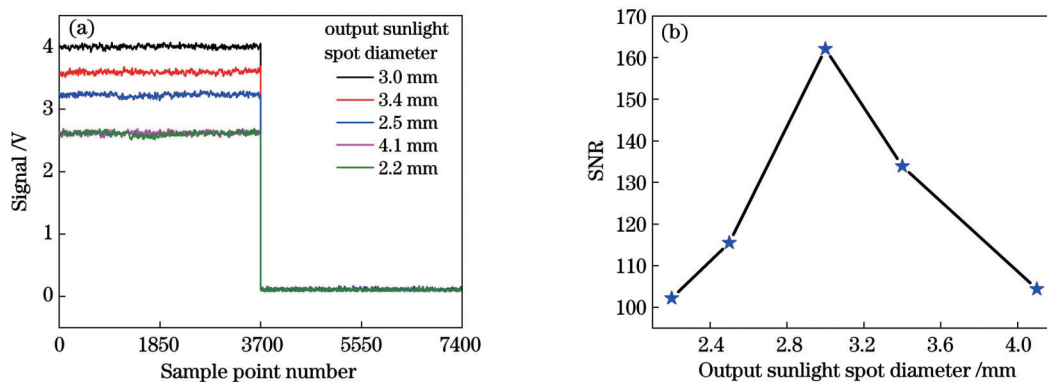


图 8 输出太阳光斑不同尺寸时系统最佳信噪比。(a)实测信号;(b)信噪比与输出太阳光斑尺寸关系

Fig. 8 Optimal SNR of systems with different output sunlight spot sizes. (a) Actual measurement results; (b) relation between SNR and output sunlight spot diameter

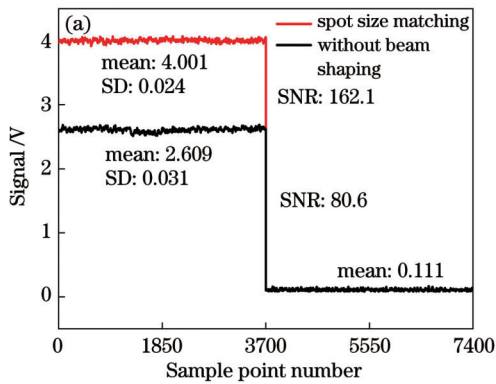
角度入射到探测器光敏面的前提下,整形后的太阳光功率有所提高,两光斑的直径越匹配,两束光有效拍频部分的能量越高,系统信噪比也就越高。

太阳光光斑直径、信噪比和透镜间距离之间的关系如表 3 所示。可以看出,在入射太阳光光斑大小不变的情况下,两透镜间的距离越短,输出的光斑尺寸越大;两光斑的匹配程度越高,系统信噪比越高。

无透镜整形与加整形结构的系统的信噪比如图 9(a)所示。整形前太阳光光斑直径为 4.5 mm,与表 3 透镜 1 与透镜 2 距离、输出太阳光光斑大小以及系统信噪比关系

Table 3 Relationship among distance between lenses  $L_1$  and  $L_2$ , output sunlight spot diameter, and system SNR

| Distance between $L_1$ and $L_2$ /mm | Output sunlight spot diameter /mm | System SNR |
|--------------------------------------|-----------------------------------|------------|
| 1590.9                               | 2.2                               | 102.2      |
| 1490.6                               | 2.5                               | 115.5      |
| 1320.2                               | 3.0                               | 162.1      |
| 1184.1                               | 3.4                               | 133.9      |
| 944.6                                | 4.1                               | 104.4      |



光斑直径 3.0 mm 的激光拍频时,通过探测器直流输出与能量分布测得其有效拍频幅值为 30 mV,系统信噪比为 80.6;整形后太阳光斑直径为 3.0 mm,有效拍频幅值为 78 mV,此时在提高太阳光功率的同时实现了两光斑的大小匹配,两束光拍频时的光功率都得到充分利用,外差耦合效率最好,因此系统信噪比可达最高,为 162.1,相较于无整形系统的信噪比提高了一倍。

实验过程中,激光控制器温度设置为 28.5 °C,电流设置为 65 mA,函数信号发生器的周期设置为 40 s,占空比设置为 10%,采用三角波扫描改变激光器的电流,从而改变激光器的输出波长,记录本振激光有  $N_2O$  分子吸收的波段与太阳光进行拍频时锁相放大器的外差输出,即可获得  $N_2O$  分子吸收光谱。加整形结构前后测量了 2542.9~2545.0  $cm^{-1}$  波段内  $N_2O$  的吸收光谱,该波段内有两条  $N_2O$  的吸收谱线,结果如图 9(b)所示。在抛物面镜上的太阳光光斑直径分别为 4.5 mm 和 3.0 mm,测量结果显示在仅改变太阳光光斑尺寸的情况下,整形后光谱信号的幅值明显提高,可为后续反演  $N_2O$  浓度廓线和柱浓度提供更加准确的光谱数据。

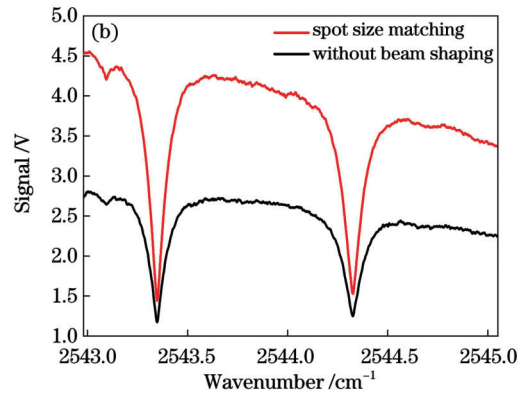


图 9 激光与太阳光光斑大小匹配和无光束整形的测量结果比较。(a)信噪比;(b) $N_2O$ 吸收光谱

Fig. 9 Measurement results of systems with laser and sunlight spot size matching after beam shaping and without beam shaping. (a) SNR; (b)  $N_2O$  absorption spectra

#### 4.2 $N_2O$ 柱浓度反演结果

实测光谱经去斜率和归一化处理,反演拟合光谱与残差结果如图 10 所示。图 10 中黑色曲线为实验测得的光谱信号,红色曲线为反演拟合的光谱信号,两曲线残差在  $\pm 0.08$  V 范围以内,可以看出拟合结果良好。

图 11 所示为 2022 年 11 月 10 日合肥地区  $N_2O$  先验廓线和反演得到的  $N_2O$  浓度廓线,反演中使用的温度、压力廓线等数据均从 ECMWF 获取。由图 11 所示结果可以看出,反演的  $N_2O$  浓度符合其在高度上的变化规律。

将上述  $N_2O$  浓度廓线进行积分后即可获得  $N_2O$  柱浓度。将测量结果与商用傅里叶变换光谱仪 EM27/SUN 实测结果进行比较。如图 12(a)所示,

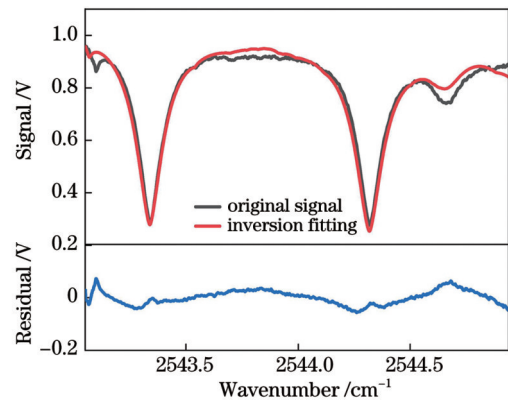
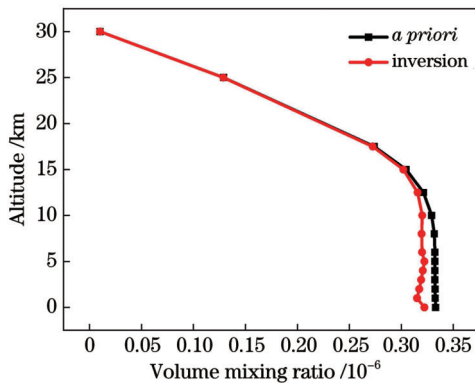
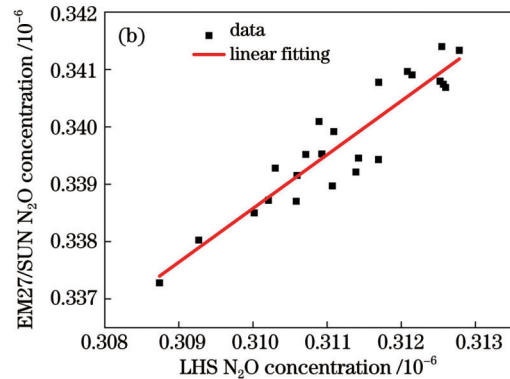
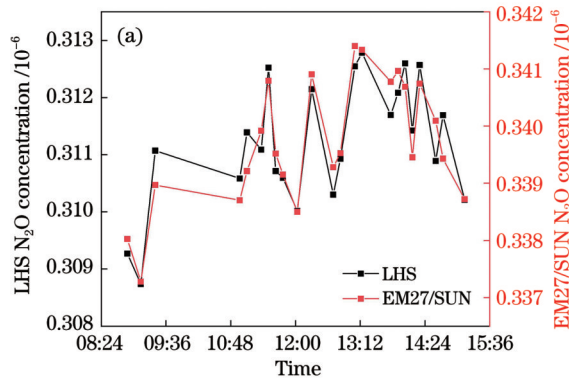


图 10 激光与太阳光光斑匹配后激光外差光谱信号与反演拟合结果

Fig. 10 Laser heterodyne spectral signal and inversion fitting result with laser and sunlight spot matching



图 11 N<sub>2</sub>O 先验廓线与反演结果Fig. 11 N<sub>2</sub>O *a priori* profile and inversion results图 12 N<sub>2</sub>O 柱浓度测量与相关性分析。(a) 柱浓度测量结果；(b) 柱浓度测量结果相关性分析Fig. 12 Column concentration measurement and correlation analysis of N<sub>2</sub>O. (a) Column concentration measurement results; (b) correlation analysis of column concentration measurement results

## 5 结 论

本文以 3.93  $\mu\text{m}$  激光器为本振光源搭建了一套高分辨率激光外差系统,将太阳光作为信号光,利用开普勒望远镜结构结合 Zemax 光学仿真软件对太阳光进行整形,使入射到探测器光敏面上的光斑大小和聚焦角小于探测器的有效接收面积和视场,实现了对自由空间中太阳光束的缩束以及两光斑在光敏面上的大小匹配。实验结果表明,太阳光经整形与本振激光光斑尺寸匹配后,系统单次信噪比高达 162.1,相较于无光束整形系统的信噪比提高了一倍。同时,测量了 N<sub>2</sub>O 的吸收光谱,运用最优估算法实现 N<sub>2</sub>O 柱浓度反演,并将反演结果与傅里叶变换光谱仪 EM27/SUN 测量结果进行比较,两者获得的 N<sub>2</sub>O 柱浓度变化趋势较为一致,相关性为 0.856。通过对 3.93  $\mu\text{m}$  激光外差光谱测量系统的研究,掌握了外差光路部分影响信噪比的主要因素。后续将展开对系统信号处理和仪器线型函数优化的研究,进一步提高信噪比,为大气中温室气体的高灵敏度探测提供有利条件。

### 参 考 文 献

[1] Shcherbak I, Millar N, Robertson G P. Global metaanalysis of the nonlinear response of soil nitrous oxide (N<sub>2</sub>O) emissions to fertilizer nitrogen[J]. Proceedings of the National Academy of Sciences of

the United States of America, 2014, 111(25): 9199-9204.

[2] Ravishankara A R, Daniel J S, Portmann R W. Nitrous oxide (N<sub>2</sub>O): the dominant ozone-depleting substance emitted in the 21st century[J]. Science, 2009, 326(5949): 123-125.

[3] Zhou M Q, Langerock B, Wells K C, et al. An intercomparison of total column-averaged nitrous oxide between ground-based FTIR TCCON and NDACC measurements at seven sites and comparisons with the GEOS-Chem model[J]. Atmospheric Measurement Techniques, 2019, 12(2): 1393-1408.

[4] 王琦, 王世超, 刘泰余, 等. 光声光谱多组分气体检测技术研究进展[J]. 光谱学与光谱分析, 2022, 42(1): 1-8.

Wang Q, Wang S C, Liu T Y, et al. Research progress of multi-component gas detection by photoacoustic spectroscopy[J]. Spectroscopy and Spectral Analysis, 2022, 42(1): 1-8.

[5] Karlovets E V, Kassi S, Tashkun S A, et al. The absorption spectrum of nitrous oxide between 8325 and 8622  $\text{cm}^{-1}$ [J]. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 2021, 262: 107508.

[6] 戴刘新, 梁明璐, 张莹, 等. 非二氧化碳温室气体氧化亚氮的卫星遥感研究综述[J]. 中国环境科学, 2023, 2(10): 1-18.

Dai L X, Liang M J, Zhang Y, et al. Review of the satellite remote sensing studies of the non-CO<sub>2</sub> greenhouse gas N<sub>2</sub>O[J]. China Environmental Science, 2023, 2(10): 1-18.

[7] 孙柳雅, 牛明生, 陈加雪, 等. 基于光声光谱技术的 NO<sub>2</sub> 探测[J]. 中国激光, 2022, 49(23): 2310002.

Sun L Y, Niu M S, Chen J X, et al. Nitrogen dioxide detection based on photoacoustic spectroscopy[J]. Chinese Journal of Lasers, 2022, 49(23): 2310002.

[8] 陈东阳, 周力, 杨复沫, 等. 腔增强吸收光谱技术在大气环境研究中的应用进展[J]. 光谱学与光谱分析, 2021, 41(9): 2688-2695.

Chen D Y, Zhou L, Yang F M, et al. Application progress of

- cavity-enhanced absorption spectroscopy (CEAS) in atmospheric environment research[J]. *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 2021, 41(9): 2688-2695.
- [9] 吴志伟, 董燕婷, 周卫东.  $N_2O$  的近红外腔增强吸收光谱技术研究[J]. *光谱学与光谱分析*, 2014, 34(8): 2081-2084.  
Wu Z W, Dong Y T, Zhou W D. Near infrared cavity enhanced absorption spectroscopy study of  $N_2O$ [J]. *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 2014, 34(8): 2081-2084.
- [10] 唐靖. 基于光腔衰荡光谱的痕量气体高灵敏检测技术[D]. 成都: 电子科技大学, 2019.  
Tang J. Highly sensitive detection technology of trace gases based on cavity ring-down spectroscopy[D]. Chengdu: University of Electronic Science and Technology of China, 2019.
- [11] 白文广. 温室气体  $CH_4$  卫星遥感监测初步研究[D]. 北京: 中国气象科学研究院, 2010.  
Bai W G. Preliminary study of satellite remote sensing of greenhouse gases methane of Chinese Academy of Meteorological Sciences[D]. Beijing: Chinese Academy of Meteorological Sciences, 2010.
- [12] Berhe T Y, Tsidu G M, Blumenstock T, et al. Methane and nitrous oxide from ground-based FTIR at Addis Ababa: observations, error analysis, and comparison with satellite data[J]. *Atmospheric Measurement Techniques*, 2020, 13(7): 4079-4096.
- [13] Clarke G B, Wilson E L, Miller J H, et al. Uncertainty analysis for the miniaturized laser heterodyne radiometer (mini-LHR) for the measurement of carbon dioxide in the atmospheric column[J]. *Measurement Science and Technology*, 2014, 25(5): 055204.
- [14] 谈图, 曹振松, 王贵师, 等.  $4.4 \mu m$  中红外激光外差光谱探测技术研究[J]. *光谱学与光谱分析*, 2015, 35(6): 1516-1519.  
Tan T, Cao Z S, Wang G S, et al. Study on the technology of the  $4.4 \mu m$  mid-infrared laser heterodyne spectrum[J]. *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 2015, 35(6): 1516-1519.
- [15] 卢兴吉, 曹振松, 黄印博, 等.  $3.53 \mu m$  激光外差太阳光谱测量系统[J]. *光学精密工程*, 2018, 26(8): 1846-1854.  
Lu X J, Cao Z S, Huang Y B, et al. Laser heterodyne spectrometer for solar spectrum measurement in the  $3.53 \mu m$  region [J]. *Optics and Precision Engineering*, 2018, 26(8): 1846-1854.
- [16] Weidmann D, Tsai T, MacLeod N A, et al. Atmospheric observations of multiple molecular species using ultra-high-resolution external cavity quantum cascade laser heterodyne radiometry[J]. *Optics Letters*, 2011, 36(11): 1951-1953.
- [17] 薛正跃, 李竣, 刘笑海, 等. 基于激光外差探测的大气  $N_2O$  吸收光谱测量与廓线反演[J]. *物理学报*, 2021, 70(21): 217801.  
Xue Z Y, Li J, Liu X H, et al. Measurement and profile inversion of atmospheric  $N_2O$  absorption spectrum based on laser heterodyne detection[J]. *Acta Physica Sinica*, 2021, 70(21): 217801.
- [18] 邓昊. 基于激光外差光谱技术的主要温室气体柱浓度测量方法研究[D]. 合肥: 中国科学技术大学, 2020.  
Deng H. Research on column measurement method of main greenhouse gas based on laser heterodyne spectroscopy[D]. Hefei: University of Science and Technology of China, 2020.
- [19] 黄俊. 近红外激光外差光谱探测技术与温室气体测量研究[D]. 合肥: 中国科学技术大学, 2022.  
Huang J. Research on near-infrared laser heterodyne spectroscopy detection technology and greenhouse gases measurements[D]. Hefei: University of Science and Technology of China, 2022.
- [20] 黄俊, 黄印博, 卢兴吉, 等. 格尔木地区整层大气臭氧浓度激光外差测量与反演研究[J]. *光子学报*, 2021, 50(4): 0401002.  
Huang J, Huang Y B, Lu X J, et al. Measurement and concentration inversion of ozone in Golmud by laser heterodyne spectrometer[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2021, 50(4): 0401002.
- [21] Shen F J, Wang G X, Wang J J, et al. Transportable mid-infrared laser heterodyne radiometer operating in the shot-noise dominated regime[J]. *Optics Letters*, 2021, 46(13): 3171-3174.
- [22] 马宗峰, 张春熹, 张朝阳, 等. 光学外差探测信噪比研究[J]. *光学学报*, 2007, 27(5): 889-892.  
Ma Z F, Zhang C X, Zhang Z Y, et al. Signal-noise ratio in optical heterodyne detection[J]. *Acta Optica Sinica*, 2007, 27(5): 889-892.
- [23] Teich M C. Infrared heterodyne detection[J]. *Proceedings of the IEEE*, 1968, 56(1): 37-46.
- [24] Siegman A E. The antenna properties of optical heterodyne receivers[J]. *Applied Optics*, 1966, 5(10): 1588-1594.
- [25] Kostiuik T, Mumma M J. Remote sensing by IR heterodyne spectroscopy[J]. *Applied Optics*, 1983, 22(17): 2644.
- [26] Weidmann D, Reburn W J, Smith K M. Ground-based prototype quantum cascade laser heterodyne radiometer for atmospheric studies[J]. *The Review of Scientific Instruments*, 2007, 78(7): 073107.
- [27] Rodgers C D. Inverse methods for atmospheric sounding: theory and practice[M]. Singapore: World Scientific, 2000.
- [28] 潘文雪, 黄印博, 刘丹丹, 等. 合肥地区  $N_2O$  柱浓度的观测与反演研究[J/OL]. *光子学报*: 1-12 [2023-01-06]. <http://kns.cnki.net/kcms/detail/61.1235.o4.20221114.1358.002.html>.
- [29] 潘文雪, 黄印博, 刘丹丹, 等. 合肥地区  $N_2O$  柱浓度的观测与反演研究[J/OL]. *Acta Photonica Sinica*: 1-12 [2023-01-06]. <http://kns.cnki.net/kcms/detail/61.1235.o4.20221114.1358.002.html>.
- [29] 黄印博, 曹振松, 卢兴吉, 等. 激光外差技术高分辨整层大气透过率测量及水汽浓度反演研究[J]. *量子电子学报*, 2020, 37(4): 497-505.  
Huang Y B, Cao Z S, Lu X J, et al. Measurement of high-resolution total atmospheric transmittance and retrieval of water vapor with laser heterodyne technology[J]. *Chinese Journal of Quantum Electronics*, 2020, 37(4): 497-505.
- [30] 张尚露, 黄印博, 卢兴吉, 等. 激光外差光谱仪的水汽柱浓度反演研究[J]. *光谱学与光谱分析*, 2019, 39(4): 1317-1322.  
Zhang S L, Huang Y B, Lu X J, et al. Retrieval of atmospheric  $H_2O$  column concentration based on mid-infrared inter-band cascade laser heterodyne radiometer[J]. *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 2019, 39(4): 1317-1322.
- [31] 黄俊, 黄印博, 卢兴吉, 等.  $3.66 \mu m$  激光外差光谱仪设计与水汽柱浓度反演[J]. *红外与毫米波学报*, 2020, 39(5): 610-618.  
Huang J, Huang Y B, Lu X J, et al. Design of  $3.66 \mu m$  laser heterodyne spectrometer and retrieval of water vapor column concentration[J]. *Journal of Infrared and Millimeter Waves*, 2020, 39(5): 610-618.
- [32] 卢兴吉, 曹振松, 谈图, 等. 激光外差光谱仪的仪器线型函数研究[J]. *物理学报*, 2019, 68(6): 064208.  
Lu X J, Cao Z S, Tan T, et al. Instrument line shape function of laser heterodyne spectrometer[J]. *Acta Physica Sinica*, 2019, 68(6): 064208.



# Optical Structure Design of 3.93 $\mu\text{m}$ Laser Heterodyne Spectrometer and $\text{N}_2\text{O}$ Measurement

Zhang Tianmin<sup>1,2,4</sup>, Huang Jun<sup>2,4</sup>, Huang Yao<sup>2,4</sup>, Qi Gang<sup>2,3,4</sup>, Yuan Zihao<sup>2,3,4</sup>, Cao Zhensong<sup>2,4</sup>,  
Huang Yinbo<sup>2,4</sup>, Rao Ruizhong<sup>2,4</sup>, Lu Xingji<sup>2,4\*</sup>

<sup>1</sup>*School of Environmental Science and Optoelectronic Technology, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, Anhui, China;*

<sup>2</sup>*Key Laboratory of Atmospheric Optics, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, HFIPS, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, Anhui, China;*

<sup>3</sup>*Science Island Branch of Graduate School, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, Anhui, China;*

<sup>4</sup>*Advanced Laser Technology Laboratory of Anhui Province, Hefei 230037, Anhui, China*

## Abstract

**Objective** Laser heterodyne spectrum measurement technology has the characteristics of high spectral resolution, high detection sensitivity and short sampling time. This technology can not only obtain the high-resolution spectral information of the whole layer of atmospheric molecules, but also facilitate the observation of gas concentration in different scenarios due to its small size and easy integration. Therefore, it has been widely concerned by researchers. At present, domestic research on laser heterodyne spectrum measurement system mainly focuses on solar tracking, spectral resolution and inversion algorithm. Due to the low power of the detection signal received by the heterodyne system, the signal-to-noise ratio (SNR) of the heterodyne system is low in actual operation. Therefore, based on the principle of Kepler telescope, a set of sunlight beam shaping structure is designed to improve the sunlight power, and the system SNR is improved by matching the size of the two beams.

**Methods** In this paper, a 3.93  $\mu\text{m}$  distributed feedback interband cascade laser (DFB-ICL) is used as the local oscillator light source to build a laser heterodyne spectrum measurement system, and sunlight is used as the signal light. The coupling of sunlight and laser is designed and simulated by Zemax optical simulation software. In the experiment, considering the distance between the shaping lens and the photosensitive surface of the detector, the coupling efficiency and the performance of the detector, the incident sunlight diameter is set to 4.5 mm, the plane-convex lens 1 with a focal length of 750 mm and the plane-convex lens 2 with a focal length of 500 mm are selected to form the Kepler telescope structure for shaping the sunlight. The absorption spectrum of  $\text{N}_2\text{O}$  in the range of 2542.9–2545.0  $\text{cm}^{-1}$  is measured by studying the beam reduction rule of the sunlight and the SNR of the system. The optimal estimation method is used to inverse the measured spectra, and the  $\text{N}_2\text{O}$  column concentration is obtained. Finally, the inversion results of the laser heterodyne spectrum measurement system and the commercial Fourier transform spectrometer are compared and analyzed.

**Results and Discussions** After the laser is emitted from the collimator, the spot diameter is 3.0 mm. Zemax simulation software is used to simulate the structure for sunlight beam reduction. After the simulation and optimization of Kepler telescope structure, the input parameters are as follows: the distance between the two lenses is 1320.155 mm, and the radius of sunlight after 1.5 times beam reduction is 1499.76  $\mu\text{m}$  (Fig. 7). These meet the required spot size requirements. The diameter of the sunlight spot before beam shaping is 4.5 mm, and the SNR of the system is 80.6 when compared with the laser beat frequency result of 3.0 mm diameter sunlight spot. In this case, the size of the two spots can be matched while improving the sunlight power. The optical power of the two beams at the beat frequency is fully utilized, and the heterodyne coupling efficiency is the best. Therefore, the SNR of the system can reach the highest, which is 162.1 [Fig. 9(a)]. According to the best SNRs of the system with the diameter of 2.2, 2.5, 3.0, 3.4 and 4.1 mm after the sunlight beam is reduced through the lenses, the more matched the diameters of the two facula, the higher the SNR of the system (Fig. 8). The  $\text{N}_2\text{O}$  absorption spectrum in the range of 2542.9–2545.0  $\text{cm}^{-1}$  was measured before and after the beam shaping structure was added. There are two  $\text{N}_2\text{O}$  absorption spectral lines in this band [Fig. 9(b)]. The measurement results show that the amplitude of the spectral signal after beam shaping is significantly improved when only the size of the sunlight spot is changed, which can provide more accurate spectral data for the subsequent inversion of  $\text{N}_2\text{O}$  concentration profile and column concentration.

Comparing the measured spectrum with the inversion fitting spectrum, the residual error of the two curves is within  $\pm 0.08$  V (Fig. 10). The  $\text{N}_2\text{O}$  column concentration results obtained by the laser heterodyne spectrum measurement system are compared with the measured results of commercial Fourier transform spectrometer EM27/SUN. The variation trend of  $\text{N}_2\text{O}$  concentration measured by the two methods is relatively consistent, and the measurement results obtained using the two methods show a correlation coefficient of 0.856 (Fig. 12).

**Conclusions** In this paper, a set of high-resolution laser heterodyne system is built with a 3.93  $\mu\text{m}$  laser as the local oscillator light source, the sunlight is taken as the signal light, and the Kepler telescope structure and Zemax optical simulation software are used to shape the sunlight, so that the size and focus angle of the light spot incident on the photosensitive surface of the detector are smaller than the effective receiving area and field of view of the detector, respectively. The beam reduction of the sunlight in the free space and

the size matching of the two spots on the photosensitive surface are realized. The experimental results show that the single-pass SNR of the system is up to 162.1 after the sunlight is shaped and matched with the laser beam, which is twice as high as that of the system without beam shaping. At the same time, the absorption spectrum of  $N_2O$  was measured, the optimal estimation method was used to realize the inversion of  $N_2O$  column concentration, and the inversion results were compared with those measured by the Fourier transform spectrometer EM27/SUN. The variation trend of  $N_2O$  column concentration obtained by the two methods is relatively consistent, and the measurement results obtained using the two methods show a correlation coefficient of 0.856. Through the research on the  $3.93\ \mu m$  laser heterodyne spectrum measurement system, the main factors affecting the SNR of the heterodyne optical path are grasped. The follow-up research will be carried out on the system signal processing and instrument linear function optimization to further improve the SNR and provide favorable conditions for the subsequent high-sensitivity detection of greenhouse gases in the atmosphere.

**Key words** spectroscopy; laser heterodyne; signal-to-noise ratio; spot shaping; optical simulation; inversion algorithm