

引用格式: HUANG Jun, HUANG Yinbo, LU Xingji, et al. Measurement and Concentration Inversion of Ozone in Golmud by Laser Heterodyne Spectrometer[J]. Acta Photonica Sinica, 2021, 50(4):0401002

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

# 格尔木地区整层大气臭氧浓度激光外差测量与反演研究

黄俊<sup>1,2,3</sup>, 黄印博<sup>1,3</sup>, 卢兴吉<sup>1,3</sup>, 曹振松<sup>1,3</sup>, 齐刚<sup>1,2,3</sup>, 袁子豪<sup>1,2,3</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 中国科学院大气光学重点实验室, 合肥 230031)

(2 中国科学技术大学 研究生院科学岛分院, 合肥 230026)

(3 先进激光技术安徽省实验室, 合肥 230037)

**摘要:** 搭建了便于外场观测的 3.3  $\mu\text{m}$  激光外差光谱仪, 实测其光谱分辨率为 0.004  $\text{cm}^{-1}$ 。利用该设备测量了青海格尔木地区整层大气臭氧的吸收光谱, 并结合最优估算法反演了该地区的臭氧浓度。测量期间, 格尔木地区臭氧柱浓度均值约 241.7 DU, 且浓度随观测时间呈上升趋势, 上升速度约 4 DU/h。结果表明, 该激光外差光谱仪结合最优估算法能够实现高海拔地区整层大气臭氧浓度的测量, 在环境、气象及激光大气传输等研究领域具有重要的应用前景。

**关键词:** 激光外差; 仪器线型函数; 最优估算法; 臭氧; 柱浓度

中图分类号: TN216

文献标识码: A

doi: 10.3788/gzxb20215004.0401002

## Measurement and Concentration Inversion of Ozone in Golmud by Laser Heterodyne Spectrometer

HUANG Jun<sup>1,2,3</sup>, HUANG Yinbo<sup>1,3</sup>, LU Xingji<sup>1,3</sup>, CAO Zhensong<sup>1,3</sup>, QI Gang<sup>1,2,3</sup>,  
YUAN Zihao<sup>1,2,3</sup>

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

(2 Science Island Branch of Graduate School, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China)

(3 Advanced Laser Technology Laboratory of Anhui Province, Hefei 230037, China)

**Abstract:** In order to measure the ozone concentration, a 3.3  $\mu\text{m}$  laser heterodyne spectrometer for field observation was built and the spectral resolution was measured to be 0.004  $\text{cm}^{-1}$ . The ozone spectrum was measured at Golmud in Qinghai Province by the 3.3  $\mu\text{m}$  laser heterodyne spectrometer, and the ozone concentration was inverted by using the optimal estimation algorithm. During the field observation, the average column concentration of ozone was inverted to be 241.7 DU, the column concentration increased about 4 DU/h. The results show that the laser heterodyne spectrometer combines with the optimal estimation algorithm is capable of measuring the ozone concentration of the whole atmosphere at the plateau, and has important applications for the environment, meteorology and laser atmospheric transmission assessment.

**Key words:** Laser heterodyne; Instrument line shape function; Optimal estimation algorithm; Ozone;

基金项目: 中国科学院战略性先导科技专项(A类)(No.XDA17010104)

第一作者: 黄俊(1994—), 男, 博士研究生, 主要研究方向为激光外差光谱、光电检测。Email: hungjune@mail.ustc.edu.cn

导师: 黄印博(1976—), 男, 研究员, 博士, 主要研究方向为激光大气传输物理特性及光电工程应用。Email: ybhuang@aiofm.ac.cn

通讯作者: 卢兴吉(1992—), 男, 助理研究员, 博士, 主要研究方向为激光外差光谱及温室气体浓度反演。Email: xjlu@aiofm.ac.cn

收稿日期: 2020-10-16; 录用日期: 2021-02-07

<http://www.photon.ac.cn>

Column concentration

OCIS Codes: 010.1290; 010.4950; 010.5620; 070.4790; 120.6200

## 0 引言

臭氧(O<sub>3</sub>)是氧气的一种同素异形体,由大气中的氧气吸收太阳光中波长小于185 nm的紫外线后生成。臭氧层“空洞”问题一直备受人们的关注,目前平流层臭氧浓度虽有所恢复,但仍处于相对较低水平。由于人类活动造成的氮氧化物(NO<sub>x</sub>)和挥发性有机物(VOCs)等臭氧前体物的过量排放,导致对流层臭氧浓度有一定程度增加<sup>[1]</sup>。臭氧具有强氧化性,对流层中较高的臭氧浓度会威胁人类健康和其他生物的生存<sup>[2]</sup>。近年来,中国因经济高速发展而排放了较多的臭氧前体物,导致近地面臭氧污染成为比较突出的空气污染问题<sup>[3]</sup>。同时,臭氧在紫外、可见光以及9~10 μm等波段都有较强吸收,影响地球大气的辐射收支平衡。

青藏高原号称“第三极”,其气候和环境的变化可直接对东亚乃至整个地球产生影响。1994年,ZHOU X等<sup>[4]</sup>根据臭氧总量测绘分光仪(Total Ozone Mapping Spectrometer, TOMS)数据进行分析,发现青藏高原地区存在臭氧的低值中心,该发现引发了各界对青藏高原地区臭氧浓度的关注。此外,研究人员根据大量观测数据分析发现青藏高原地区存在臭氧损耗问题<sup>[5]</sup>。因此监测青藏高原地区整层大气臭氧浓度可以为臭氧层空洞、臭氧前体物的工业排放和气候变化等研究提供参考。

地基遥感、卫星遥感和无线电探空等探测方法能够较为有效地监测整层大气臭氧浓度的变化<sup>[6-8]</sup>。国内外在测量仪器和方法上已进行了大量研究,并获得了部分地区立体化、全天候的臭氧浓度观测结果。然而,平流层臭氧和近地面臭氧污染研究需要大量高精度、高时空分辨率的臭氧浓度数据,现有的测量方法稍显不足。无线电探空可获得臭氧廓线,但其测量时间一般为固定时间且路径随机,时空分辨率较低;地基臭氧激光雷达可得到较高的时空分辨率数据,然而其测量高度有限,难以实现整层大气臭氧浓度的测量;卫星遥感虽可实现大范围长时间的臭氧浓度监测,但其空间分辨率较低,无法对特定区域的臭氧浓度进行高精度的监测。上述测量手段在臭氧浓度测量中均发挥着各自的独特作用,但也需各种测量方法相互补充才能得到更加全面、准确的测量结果。

激光外差光谱仪是一种新型的光谱测量仪器,它具有高光谱分辨率、高信噪比等优点<sup>[9]</sup>。在同等光谱分辨率的情况下,其体积远小于傅里叶变换光谱仪,这些特点较好地满足了臭氧观测的需求。针对激光外差光谱仪的上述优点,1990年,TAGUCHI M等<sup>[10]</sup>利用以9.12 μm铅盐激光器为本振光源的激光外差光谱仪测量了整层大气中的臭氧。2007年,WEIDMANN D等<sup>[11]</sup>使用以9.06 μm量子级联激光器为本振光源的激光外差光谱仪测量了整层大气中的臭氧。2012年,WEIDMANN D等<sup>[12]</sup>又利用8.8 μm波段激光外差光谱仪测量了整层大气O<sub>3</sub>、CH<sub>4</sub>和N<sub>2</sub>O等气体的浓度。因此,激光外差光谱仪是一种比较理想的臭氧测量仪器,可对大气中臭氧浓度的变化进行快速、有效地监测。

关于臭氧浓度的激光外差测量,国外均是在长波红外波段测量臭氧红外吸收光谱并对臭氧浓度进行反演,所用的测量器件成本相对较高,部分器件需要液氮制冷。国内自研的整层大气臭氧浓度测量仪器较少,地基臭氧浓度测量仪器仍主要依赖Dobson、Brewer型分光光度计和Filter型臭氧测量仪<sup>[13]</sup>,发展新型臭氧浓度测量技术并研制新型测量仪器可有效提升我国臭氧浓度的高精度实时监测能力。近年来,国内针对激光外差光谱仪的结构性能及H<sub>2</sub>O、CH<sub>4</sub>、CO<sub>2</sub>等温室气体的吸收光谱测量进行了大量研究,取得了较好的研究成果<sup>[14-16]</sup>,但尚无系统利用激光外差技术测量大气臭氧吸收光谱并进行臭氧浓度反演研究的相关报道。

基于上述原因,实验室利用3.3 μm分布反馈式带间级联激光器(Distributed Feedback Interband Cascade Laser, DFB-ICL)搭建了激光外差光谱仪,并实测了仪器的光谱分辨率。利用该光谱仪测量了2019年夏季青海格尔木地区(北纬36.41°,东经94.90°,海拔约2.8 km)整层大气臭氧的吸收光谱,研究了基于最优估算法的臭氧柱浓度反演算法,获得了臭氧柱浓度反演结果,为后续利用该仪器进行臭氧浓度长期观测打下了基础。

# 1 测量原理与数据反演

## 1.1 激光外差光谱仪测量原理

大气臭氧主要集中在20~40 km的平流层区域,该区域内平均大气压强小于100 hPa。根据气体吸收谱线展宽与气压间的关系,该环境下臭氧吸收谱线展宽小于 $0.01\text{ cm}^{-1}$ 。此外,3.3  $\mu\text{m}$ 波段内臭氧的吸收线强约 $3 \times 10^{-22}\text{ cm}^{-1}/(\text{molecule} \cdot \text{cm}^{-2})$ ,而大气中臭氧柱浓度仅约300多普森单位(Dobson Unit, DU, 约 $6.9 \times 10^{18}\text{ molecule}/\text{cm}^2$ )。因此,整层大气臭氧的吸收强度较弱,光谱测量仪器需具有较高的光谱分辨率和信噪比才能满足测量臭氧吸收光谱的需要。

激光外差光谱测量技术基于光学差频的原理,利用窄线宽激光作为本振光与包含光谱信息的信号光进行合束,从而得到外差信号。关于激光外差光谱仪的组成、结构及性能在前期研究中已有介绍<sup>[14]</sup>,其结构示意图如图1。

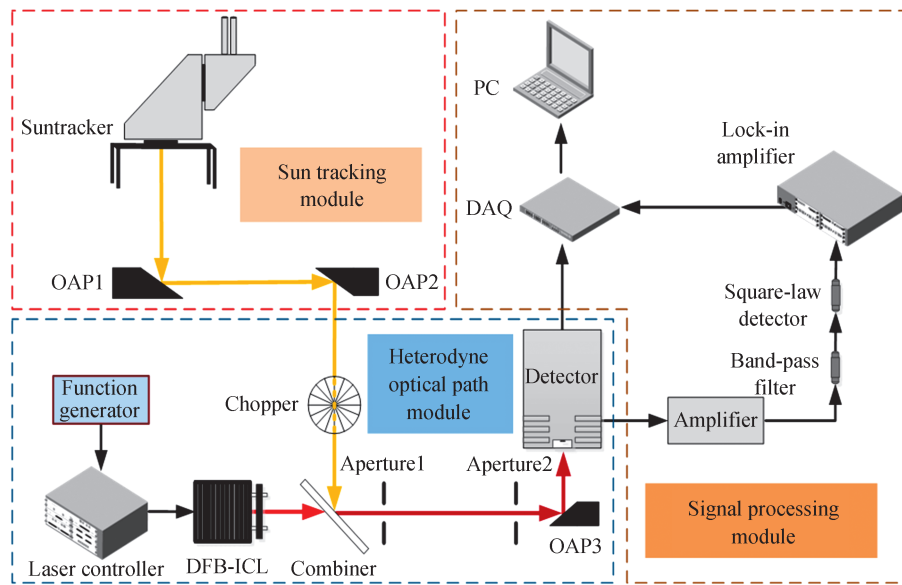


图1 激光外差光谱仪结构示意图  
Fig.1 Structure diagram of laser heterodyne spectrometer

本系统中太阳跟踪器由实验室自行研制,其0.07 mrad的跟踪精度能够满足实验要求。太阳光经过斩波器调制,调制频率为1 kHz。测量时,本振光波长扫描范围为 $3\ 039.982 \sim 3\ 040.675\text{ cm}^{-1}$ ,有效扫描时间为27 s。该波长范围内包含6个臭氧吸收峰,可获得较为丰富的臭氧吸收信息。为尽可能减小探测系统对臭氧吸收特征的平滑,滤波带宽设置为10~32 MHz。探测器为VIGO公司的PV-2TE-4型二级制冷探测器,响应带宽为100 MHz。该系统主要参数设置如表1所示。

表1 系统主要参数设置  
Table 1 Main parameters setting of the system

Parameter	Value
Linewidth of local oscillator laser/MHz	<10
Laser power/mW	~6
Measurement range/ $\text{cm}^{-1}$	3 039.982~3 040.675
Filter bandwidth/MHz	10~32
Sensitivity/ $\mu\text{V}$	500
Integration time/ms	10

## 1.2 数据处理与臭氧浓度反演

气体浓度的反演一般包括两个过程:一是构建大气辐射传输模型和仪器模型,对太阳光谱与大气系统及光谱测量系统的卷积过程进行模拟,从而得到模拟光谱;二是将实测光谱与模拟光谱根据约束条件进行

循环迭代,得到反演结果。因此,准确地构建大气辐射传输模型和仪器模型是精确反演的前提。

大气对太阳辐射的影响主要为气体分子和气溶胶粒子的散射和吸收作用,由于激光外差光谱仪的光谱测量范围一般较小(仅几个波数),气体分子的散射、气溶胶粒子的散射和吸收对测量结果的影响很小。因此,在大气辐射传输分析中,重点考虑气体分子的吸收作用。分子光谱参数可从高分辨率分子吸收数据库(High-resolution Transmission, HITRAN)中获得,包括谱线中心波长、吸收线强等参数,其最新版HITRAN2016中收录了5种臭氧分子同位素。逐线积分辐射传输模型(Line-by-line Radiative Transfer Model, LBLRTM)可以进行水平和斜程的大气透过率、大气辐射量等参数的计算。利用LBLRTM读取并处理HITRAN2016数据库分子谱线参数可获得大气辐射传输模型,该模型可以进行探测窗口的选择和反演过程中正向模型参数的计算。

激光外差光谱测量及数据处理的过程如图2所示。

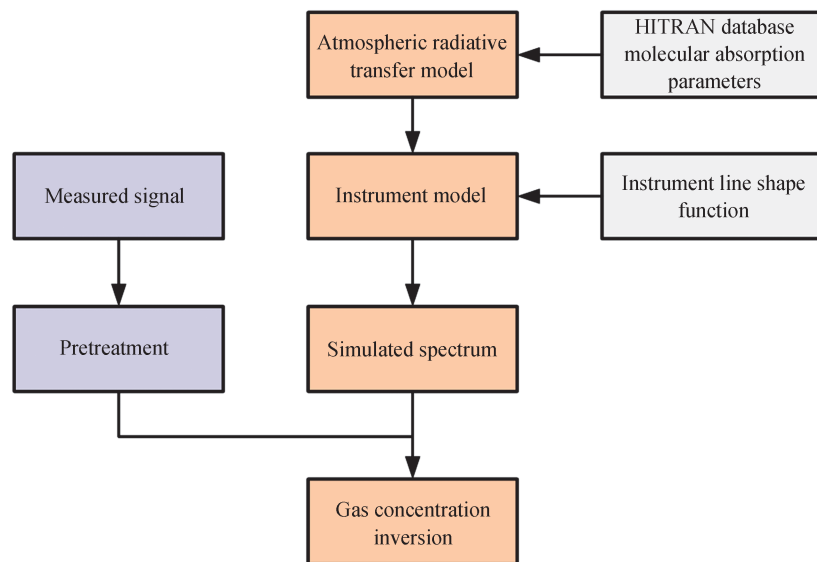


图2 激光外差光谱测量及数据处理流程

Fig.2 Laser heterodyne spectrum measurement and data processing flow

臭氧浓度的反演算法基于最优估算法原理,该算法根据贝叶斯统计理论结合 Tikhonov 约束条件等实现气体浓度的反演。研究人员利用激光外差光谱仪观测的  $\text{CO}_2$ 、 $\text{CH}_4$  和  $\text{N}_2\text{O}$  等温室气体吸收谱线,结合最优估算法进行了气体浓度的反演,获得了较好的反演结果<sup>[12,17-18]</sup>。在利用最优估算法进行臭氧浓度反演之前需对实测光谱数据预处理,激光外差光谱仪测量得到的实测光谱信号中含有噪声分量、背景偏移以及本振光的直流调制分量,进行预处理可以提高气体浓度反演的精度。首先,利用经验模态分解<sup>[19]</sup>与主成分分析<sup>[20]</sup>相结合的方式对实测光谱信号进行降噪处理;处理后的光谱信号再减去背景信号的均值以去除背景信号造成的信号整体偏移;最后将光谱信号除以本振光的功率变化曲线,即可得到预处理后的光谱信号<sup>[17]</sup>。

假设测量得到的光谱数据为  $\mathbf{y}$ ,反演的过程为根据大气辐射传输模型并利用函数关系  $R$  在各种约束条件下确定大气状态参数  $\mathbf{x}$ ,即

$$\mathbf{x} = R(\mathbf{y}, \mathbf{x}_a, c) \quad (1)$$

式中, $R$ 为测量结果到状态空间的函数关系, $\mathbf{x}_a$ 为先验信息向量, $c$ 为不影响反演的其他常量。

反演臭氧所需的先验廓线及相关大气参数来自欧洲中尺度天气预报中心(European Centre for Medium-Range Weather Forecasts, ECMWF)网站。在反演的过程中,需要一个能够表征不同光学厚度对气体浓度敏感程度的参数,这里利用 Jacobian 矩阵进行表示, Jacobian 矩阵的元素可由式(2)计算得到。

$$K_i = \frac{\partial F(x_i)}{\partial x_i} = \frac{\Delta T_i}{\Delta \rho_i} \quad (2)$$

式中, $T$ 为透过率, $\rho$ 为气体浓度。

在反演气体浓度的过程中,由于气体浓度的变化而导致不同光学厚度对气体浓度的敏感程度也发生变

化,因此每进行一次迭代,Jacobian矩阵也更新一次。利用大气辐射传输模型仿真得到3.3 μm波段臭氧的Jacobian矩阵,如图3所示。该图较为直观地显示了该波段中臭氧在不同高度对透过率的影响程度,主要集中在6个区域。因此,理论上该波段应有6个较强的臭氧吸收峰。

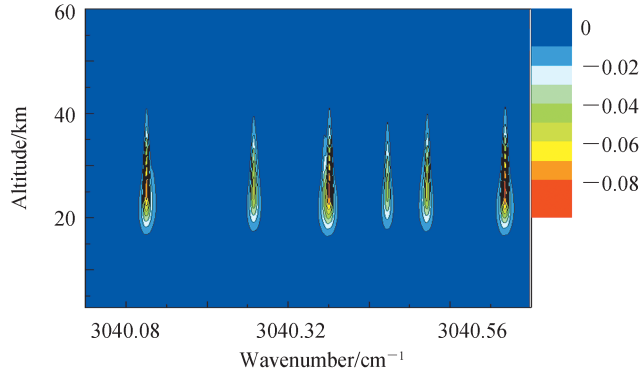


图3 3.3 μm 波段臭氧的 Jacobian 值  
Fig.3 Jacobian value of ozone in 3.3 μm

循环迭代过程中的代价函数和状态向量的表达式分别为

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

$$\mathbf{x}_{i+1} = \mathbf{x}_i + [\mathbf{K}_i^T \mathbf{S}_\epsilon^{-1} \mathbf{K}_i + (1 + \gamma_i) \mathbf{S}_a^{-1}]^{-1} [\mathbf{K}_i^T \mathbf{S}_\epsilon^{-1} (\mathbf{y} - F(\mathbf{x}_i)) - \mathbf{S}_a^{-1} (\mathbf{x}_i - \mathbf{x}_a)] \quad (4)$$

式中, $\mathbf{S}_\epsilon$ 是测量误差协方差矩阵, $\mathbf{S}_a$ 是先验协方差矩阵, $\gamma_i$ 是第*i*次迭代时的拉格朗日因子。反演中的循环迭代过程即是计算代价函数 $\chi^2$ 和状态向量。当满足条件时退出循环,即可得到整层大气臭氧浓度的廓线<sup>[21]</sup>。

利用最优估算法反演臭氧浓度的整个流程如图4所示。

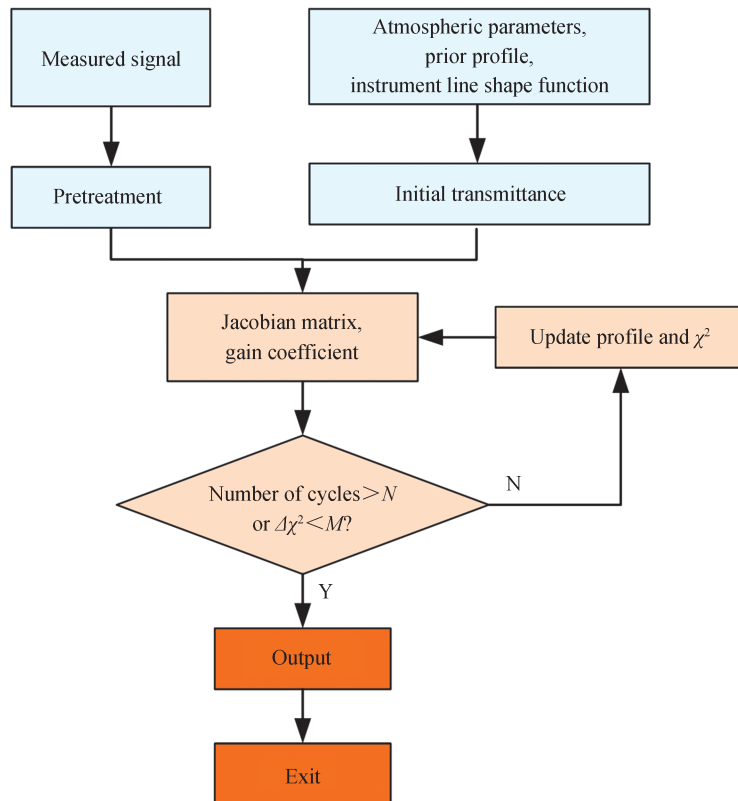


图4 最优估算法气体浓度反演流程  
Fig.4 Gas concentration inversion process of optimal estimation algorithm

## 2 仪器线型函数的测量

仪器模型一般用仪器线型函数进行描述,体现了仪器对输入信号的调制作用,通常会造成吸收谱线的平滑,严重的可能造成吸收特征的丢失。通过测量仪器线型函数不仅可以在反演的过程中扣除仪器线型函数对光谱数据的影响,提高反演精度,还可以获得仪器的光谱分辨率和谱线的能量分布<sup>[22]</sup>。

激光外差光谱仪的仪器线型函数主要受滤波带宽、积分时间内本振光波长的变化和锁相放大器低通滤波响应的限制<sup>[23]</sup>。因此,激光外差光谱仪的仪器线型函数可表示为

$$ILS = f(\nu) * H(\nu) * h_{LP} \quad (5)$$

式中, $f(\nu)$ 为积分时间内本振光波长的变化函数, $H(\nu)$ 为滤波函数, $h_{LP}$ 为锁相放大器低通滤波时域响应函数,仪器线型函数的半高全宽即为光谱分辨率。

利用两束波长相近的窄带激光(带宽 $<10$  MHz)进行差频即可得到激光外差光谱仪的仪器线型函数。激光外差光谱仪的仪器线型函数测量原理如图5所示,在原系统结构的基础上,信号光替换成窄线宽激光光源,通过调节激光控制器温度和电流使其出射激光波长大致处于本振激光扫描范围的中心,本振激光扫描范围及其他系统参数设定均保持不变。

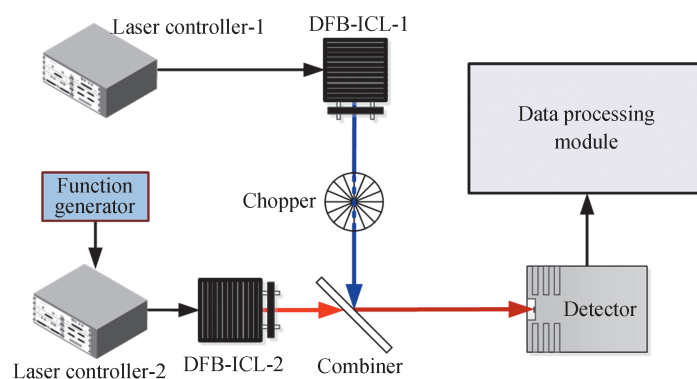


图5 激光外差光谱仪仪器线型函数测量示意图

Fig.5 Schematic diagram of line shape function measurement of laser heterodyne spectrometer

由于信号激光带宽极窄,相当于对系统输入一个频域上的冲击,即 $F_s(\nu) = \delta$ 。系统输出信号可视为输入信号与仪器线型函数的卷积,即

$$F_o(\nu) = F_s(\nu) * ILS = ILS \quad (6)$$

因此,此时系统输出的外差信号即为仪器线型函数的实测结果。

在进行臭氧吸收光谱测量期间,利用上述仪器线型函数测量方案对激光外差光谱仪的仪器线型函数进行了实际测量。在仪器线型函数测量过程中应注意:1)系统各参数应与进行臭氧浓度测量时的参数设置保持一致,否则测量结果与实际情况会出现较大偏差;2)信号激光应设置衰减装置,否则差频信号极易出现

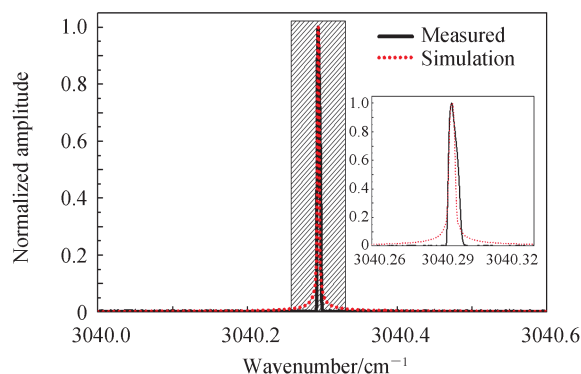


图6 仪器线型函数实测结果

Fig.6 Measured results of instrument line shape function

饱和。

归一化线型函数的测量结果和理论计算结果如图6所示,实测光谱分辨率约 $0.004\text{ cm}^{-1}$ (黑色曲线),理论仿真结果约 $0.0032\text{ cm}^{-1}$ (红色曲线),二者存在一定的差异。这主要是在理论计算中,本振激光线型、射频滤波响应和低通滤波函数无法与实际值完全相同而造成的偏差。将仪器模型(线型函数)耦合进反演过程,可进一步提高臭氧浓度的反演精度。 $3.3\text{ }\mu\text{m}$ 激光外差光谱仪的实际光谱分辨率已接近商用傅里叶变换光谱仪(Bruker IFS120HR)的光谱分辨率( $0.0035\text{ cm}^{-1}$ ),然而相近光谱分辨率的傅里叶变换光谱仪体积比较庞大,难以进行外场实验测量。

### 3 典型测量结果与分析

2019年8月,利用搭建的 $3.3\text{ }\mu\text{m}$ 波段激光外差光谱仪对青海格尔木地区整层大气臭氧吸收谱线进行了测量,并以8月15日的观测数据反演了该地区整层大气的臭氧浓度。

如图7所示,为实测的臭氧吸收光谱与反演拟合谱以及两者的残差结果。黑色曲线为实测臭氧吸收光谱,红色曲线为反演拟合谱,蓝色曲线为二者的残差。图中所示的6个明显的吸收特征皆为臭氧的吸收峰,基线处的弱吸收主要为甲烷和臭氧的一些弱吸收峰,这些弱吸收对臭氧浓度反演结果影响有限。测量结果与反演拟合结果一致性较好,残差幅值小于 $\pm 0.1\text{ V}$ 。

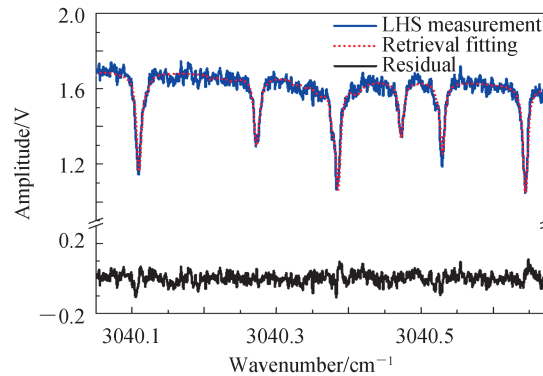


图7  $3.3\text{ }\mu\text{m}$ 波段臭氧吸收谱线测量与反演拟合结果

Fig.7  $3.3\text{ }\mu\text{m}$  ozone absorption feature measurement and inversion fitting results

格尔木地区臭氧浓度先验廓线与反演廓线如图8所示。红色曲线为反演得到的臭氧浓度廓线,黑色曲线为先验廓线。臭氧浓度的峰值位于 $32\text{ km}$ 高度附近,体积分数峰值约 $6.6 \times 10^{-6}$ 。由图可知,大气中的臭氧主要集中在 $20\sim 50\text{ km}$ 高度的平流层内,这与目前关于臭氧浓度的报道结果是一致的,因为大气中臭氧的主要来源是平流层中紫外线辐射作用下氧气分子的光解。在对流层内臭氧浓度相对较低,这是由于对流层内紫外线辐射强度较低,并且臭氧不稳定更易分解为氧气。因为对流层和平流层顶臭氧浓度较低,因此该范围内臭氧浓度的变化对整层大气透过率的影响很小,反演结果与先验值几乎一致。

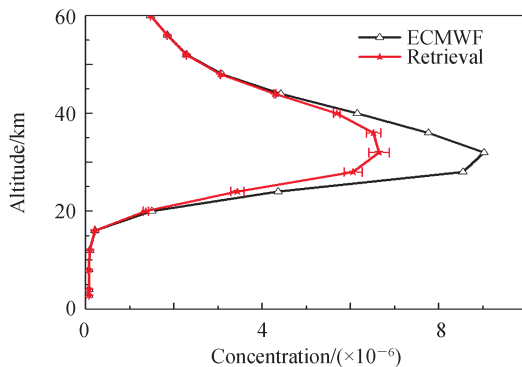


图8 臭氧浓度先验廓线与反演结果

Fig.8 Prior profiles and inversion results of ozone concentration

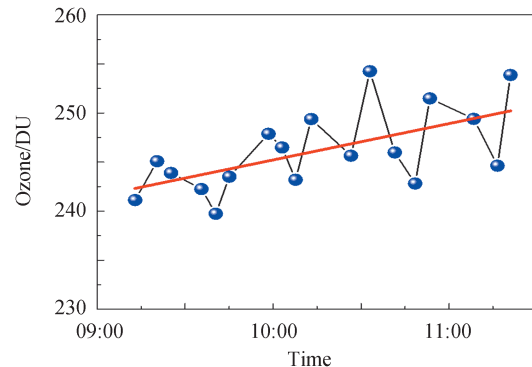


图9 格尔木地区臭氧柱浓度

Fig.9 Ozone column concentration in Golmud

如图9所示,反演得到的格尔木地区8月15日上午9:00~11:30臭氧柱浓度均值为241.7 DU,且呈现比较明显的上升趋势,2 h增加约8 DU。这种现象主要是因为观测时段内,太阳辐射由弱变强,大气中更多的氧气分子因紫外线辐射光解后结合为臭氧分子,使得整层大气中的臭氧浓度升高。

## 4 结论

利用3.3  $\mu\text{m}$  DFB-ICL激光器搭建了激光外差光谱仪,实测该光谱仪的光谱分辨率为 $0.004\text{ cm}^{-1}$ ,开展了格尔木地区整层大气臭氧吸收光谱的观测,在观测时段内该地区的臭氧柱浓度均值约241.7 DU。测量期间,格尔木地区臭氧柱浓度随观测时间呈现比较明显的上升趋势,2 h内增加了约8 DU。在高原的特殊环境下,3.3  $\mu\text{m}$ 波段激光外差光谱仪能够顺利开展观测并反演获得了臭氧浓度,体现了该仪器良好的环境适应性。前期在格尔木地区获得的臭氧整层观测数据有限,后续将利用其他设备同步观测进行对比分析,并针对该系统的集成及臭氧浓度的长期观测与规律分析开展下一步的研究工作。

## 参考文献

- [1] XIE Bing, ZHANG Hua. Main research progress on atmospheric ozone [J]. Science Technology and Engineering, 2014, 14(8): 106-114.  
谢冰, 张华. 关于大气臭氧问题的主要研究进展[J]. 科学技术与工程, 2014, 14(8): 106-114.
- [2] ZHANG Hongxing, SUN Xu, YAO Yuhui, et al. Distribution characteristics of surface ozone pollution and its harmful effects on plants in summer in Beijing [J]. Acta Zoologica Sinica, 2014, 34(16): 4756-4765.  
张红星, 孙旭, 姚余辉, 等. 北京夏季地表臭氧污染分布特征及其对植物的伤害效应[J]. 生态学报, 2014, 34(16): 4756-4765.
- [3] LIU Feng, ZHU Yongguan, WANG Xiaoke. Ground ozone pollution and its eco-environmental effects in China [J]. Journal of Ecological Environment, 2008, 17(4): 1674-1679.  
刘峰, 朱永官, 王效科. 我国地面臭氧污染及其生态环境效应[J]. 生态环境学报, 2008, 17(4): 1674-1679.
- [4] ZHOU X, LUO C. Ozone valley over Tibetan Plateau[J]. Annual Report of CAMS, 1995, 8(4): 505-506.
- [5] JIN Saihua, WANG Chenglin, LIU Huaqiang, et al. Study on the change of total ozone in the northeast of Qinghai Tibet Plateau in recent ten years [J]. Environmental Monitoring and Early Warning, 2011, 3(3): 5-12.  
金赛花, 王成林, 刘华强, 等. 青藏高原东北部近十年臭氧总量变化研究[J]. 环境监控与预警, 2011, 3(3): 5-12.
- [6] ENGEL-COX J, KIM OANH N T, DONKELAAR AVAN, et al. Toward the next generation of air quality monitoring: Particulate Matter[J]. Atmospheric Environment, 2013, 80: 584-590.
- [7] CHEN Liangfu, TAO Jinhua, WANG Zifeng, et al. Progress in satellite remote sensing monitoring of air quality [J]. Acta Atmospheric and Environmental Optics, 2015, 10(2): 117-125.  
陈良富, 陶金花, 王子峰, 等. 空气质量卫星遥感监测技术进展[J]. 大气与环境光学学报, 2015, 10(2): 117-125.
- [8] ZHANG Jinqiang, XUAN Yuejian, LIU Mingyuan, et al. Atmospheric ozone sonde: technical indicators and comparative analysis [J]. Progress in Meteorological Science and Technology, 2015, 5(4): 35-44.  
张金强, 宣越健, 刘明远, 等. 大气臭氧探空仪: 技术指标及对比分析[J]. 气象科技进展, 2015, 5(4): 35-44.
- [9] TAN Tu, CAO Zhensong, WANG Guishi, et al. Study on 4.4  $\mu\text{m}$  mid infrared laser heterodyne spectroscopy detection technology [J]. Spectroscopy and Spectral Analysis, 2015, 35(6): 1516-1519.  
谈图, 曹振松, 王贵师, 等. 4.4 $\mu\text{m}$ 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.
- [10] FUKUNISHI H, OKANO S, TAGUCHI M, et al. Laser heterodyne spectrometer using a liquid nitrogen cooled tunable diode laser for remote measurements of atmospheric  $\text{O}_3$  and  $\text{N}_2\text{O}$ [J]. Applied Optics, 1990, 29(18): 2722-2728.
- [11] WEIDMANN D, REBURN W J, SMITH K M. Retrieval of atmospheric ozone profiles from an infrared quantum cascade laser heterodyne radiometer: results and analysis[J]. Applied Optics, 2007, 46(29): 7162-7171.
- [12] TSAI T R, ROSE R A, WEIDMANN D, et al. Atmospheric vertical profiles of  $\text{O}_3$ ,  $\text{N}_2\text{O}$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{CCl}_2\text{F}_2$ , and  $\text{H}_2\text{O}$  retrieved from external-cavity quantum-cascade laser heterodyne radiometer measurements[J]. Applied Optics, 2012, 51(36): 8779-8792.
- [13] ZHANG Jinqiang, WANG Zhenhui, CHEN Hongbin, et al. Analysis of total atmospheric ozone observed by ground-based and spaceborne instruments [J]. Climate and Environment Research, 2017, 22(2): 177-190.  
张金强, 王振会, 陈洪滨, 等. 地基与星载仪器观测大气臭氧总量分析[J]. 气候与环境研究, 2017, 22(2): 177-190.
- [14] LU Xingji, CAO Zhensong, HUANG Yinbo, et al. 3.53  $\mu\text{m}$  laser heterodyne solar spectrum measurement system [J]. Optical Precision Engineering, 2018, 26(8): 1846-1854.  
卢兴吉, 曹振松, 黄印博, 等. 3.53 $\mu\text{m}$ 激光外差太阳光谱测量系统[J]. 光学精密工程, 2018, 26(8): 1846-1854.
- [15] WANG Jingjing, SUN Chunyan, WANG Guishi, et al. A fibered near-infrared laser heterodyne radiometer for simultaneous remote sensing of atmospheric  $\text{CO}_2$  and  $\text{CH}_4$ [J]. Optics and Lasers in Engineering, 2020, 129: 106083.



- [16] DENG Hao, LI Mingxing, HE Yabai, et al. Laser heterodyne spectroradiometer assisted by self-calibrated wavelength modulation spectroscopy for atmospheric CO<sub>2</sub> column absorption measurements [J]. *Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy*, 2020, 230: 118071.
- [17] SUN Chunyan, WANG Guishi, ZHU Gongdong, et al. Atmospheric CO<sub>2</sub> column concentration retrieval based on high resolution laser heterodyne spectroscopy and evaluation method of systematic measurement error [J]. *Acta Physica Sinica*, 2020, 69(14): 87-95.  
孙春艳, 王贵师, 朱公栋, 等. 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[J]. *物理学报*, 2020, 69(14): 87-95.
- [18] WILSON E L, MCLINDEN M L, MILLER J H, et al. Miniaturized laser heterodyne radiometer for measurements of CO<sub>2</sub> in the atmospheric column[J]. *Applied Physics B*, 2014, 114: 385-393.
- [19] HUANG N E, SHEN Z, LONG S R, et al. The empirical mode decomposition and the Hilbert spectrum for nonlinear and non-stationary time series analysis [J]. *Proceedings Mathematical Physical & Engineering Sciences*, 1998, 454 (1971):903-995.
- [20] WANG Wenbo, ZHANG Xiaodong, WANG Xiangli. Empirical mode decomposition denoising method based on principal component analysis [J]. *Acta Electronica Sinica*, 2013, 41(7): 1425-1430.  
王文波, 张晓东, 汪祥莉. 基于主成分分析的经验模态分解降噪方法[J]. *电子学报*, 2013, 41(7): 1425-1430.
- [21] LU Xingji. Spectral measurement of greenhouse gases by laser heterodyne spectrometer and retrieval algorithm[D]. Hefei: University of science and technology of China, 2019.  
卢兴吉. 温室气体激光外差光谱测量技术与反演算法研究[D]. 合肥: 中国科学技术大学, 2019.
- [22] XIONG Wei, SHI Hailiang, YU Nenghai. Study on a new method for measuring linear function of spatial heterodyne interference spectrometer[J]. *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 2015, 35(1): 267-271.  
熊伟, 施海亮, 俞能海. 空间外差干涉光谱仪仪器线型函数测量新方法研究[J]. *光谱学与光谱分析*, 2015, 35(1): 267-271.
- [23] LU Xingji, CAO Zhensong, TAN Tu, et al. Study on instrument linear function of laser heterodyne spectrometer [J]. *Acta Physica Sinica*, 2019, 68(6): 136-142.  
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): 136-142.