

引用格式: LIU Xiaohai, XUE Zhengyue, LI Jun, et al. Detection Technology of Laser Heterodyne Spectroscopy of Atmospheric Water Isotope HDO[J]. Acta Photonica Sinica, 2022, 51(4):0430003

刘笑海,薛正跃,李竣,等. 大气水同位素 HDO 激光外差光谱探测技术研究[J]. 光子学报, 2022, 51(4):0430003

大气水同位素 HDO 激光外差光谱探测技术研究

刘笑海^{1,2}, 薛正跃^{1,2}, 李竣^{1,2}, 王贵师¹, 刘锟¹, 高晓明^{1,2}, 谈图¹

(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)

摘 要:报道了利用自研高精度太阳追踪仪,建立了一套全光纤式激光外差光谱仪系统,对合肥科学岛(31.9°N, 117.2°E)地区进行了实时大气光谱探测,在近红外波段(6 437~6 441 cm⁻¹)得到了水同位素 HDO 分子的激光外差光谱信号。同时对吸收光谱进行了波长定标和离散标准化,得到了信噪比为 46、光谱分辨率为 0.019 6 cm⁻¹的 HDO 整层大气透过率谱,并利用最优估计算法反演计算出 HDO 对流层的垂直浓度廓线。本文研究表明激光外差技术可以用于大气水汽同位素 HDO 的探测技术研究,为大气水汽同位素 HDO 的探测提供了新手段、新方法。

关键词:激光外差;水汽;同位素;HDO;信噪比;光谱分辨率;大气透过率谱;垂直廓线

中图分类号: TN216

文献标识码: A

doi: 10.3788/gzxb20225104.0430003

0 引言

大气中水汽是地球气候系统的重要组成部分,参与了从地表到高层大气的多种大气活动,在地球系统物质、能量传输及演化的过程中起着至关重要的作用^[1]。水汽是大气中最重要的温室气体,在自然条件下,它可以在气、液、固三态之间变化,导致其在大气中含量变化剧烈。随着全球气候变暖的加剧,大气中水汽含量也会增加,从而形成正反馈,加速变暖^[2]。大部分水汽分布在对流层中,平流层空气中水汽含量非常低,两者相差近四个数量级^[3]。

要科学认知大气水汽的源汇问题,首先要解决如何获取水汽信息的问题。同位素示踪是开展大气循环研究的重要方法,因此,如能获取大气水汽同位素信息,就可以很好地解决水汽源汇的科学问题。EHHALT D H 等利用飞机采集的水汽数据校正了其 1974 年测量的对流层水汽 HDO 浓度,并得到其垂直廓线分布^[4]。ZADVORNYKH I V 等基于 GOAST-2 卫星数据通过最优估计算法反演得到大气水汽中 HDO 同位素相对含量的垂直廓线^[5]。水汽的分布受多种因素(如:地表地理环境、纬度、温度等)影响,在不同的地点、不同的时间水汽的浓度变化很大^[6]。这就要求测量仪器在保证性能的技术上必须具有小型化、轻便化等特点。近年来在国际上迅速发展的激光外差光谱技术可以在非常小的仪器体积下快速获取太阳光透过大气后的大气分子高分辨率吸收光谱。

激光外差光谱仪的优点主要是通过较高功率的本地激光放大携带大气分子吸收光谱信息的透过大气后的微弱太阳光,以获得高信噪比、高光谱分辨率的获取大气分子吸收光谱信号^[7]。在理想情况下,本振激光功率足够高时,激光外差系统的信噪比接近散粒噪声极限下的信噪比^[8]。整个外差探测系统的光谱分辨率与电子带宽和激光线宽呈强相关,其光谱分辨率优于传统的傅里叶光谱仪。在体积和重量方面也十分轻

基金项目:国家自然科学基金重点项目(No.41730103),国家自然科学基金青年基金(No.41805018),国家重点研发计划(No.2017YFC0209705)

第一作者:刘笑海(1998-),男,硕士研究生,主要研究方向为激光外差光谱技术及应用。Email:lxh0517@mail.ustc.edu.cn

导 师:高晓明(1965-),男,研究员,博士,主要研究方向为高灵敏度光谱检测技术及应用、气体光学传感技术及应用等。Email:xmgao@aiofm.ac.cn

通讯作者:谈图(1984-),男,副研究员,博士,主要研究方向为红外激光外差光谱技术及应用。Email:tantu@aiofm.ac.cn

收稿日期:2021-11-22; **录用日期:**2021-12-31

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

便,可以一定程度上做到便携式探测。

基于激光外差光谱技术在大气遥感探测方面的显著优势,科研工作者已在积极研究激光外差大气遥感探测技术。WEIDMANN D等使用外腔反馈量子级联激光器(Quantum Cascade Laser, QCL)作为本振光源建立激光外差装置并测量了大气中 O_3 、 N_2O 等多种气体的吸收光谱^[9-10]。RODIN A使用近红外激光外差装置测量了大气中的 CH_4 ,并反演了柱浓度^[11]。WILSON E L等在开发用于大气 CO_2 和 CH_4 柱测量的全光纤近红外激光外差光谱仪方面进行了开创性的工作,极大地实现了其小型化和低成本^[12]。安徽光机所利用分布式反馈激光器(Distributed Feedback Laser, DFB)建立了全光纤近红外双通道激光外差光谱仪的小型样机,并在合肥地区开展了实际的大气探测,得到了 CO_2 和 CH_4 的吸收光谱^[13-14]。

本文建立了一套中心波长位于水汽同位素HDO($6\ 438.534\ 4\ cm^{-1}$)的激光外差装置,开展激光外差光谱方法用于大气水汽同位素HDO的探测,并研制出原理样机。激光外差装置以太阳光为信号光,扫描波段位于水汽同位素HDO吸收峰的激光作为本振光,获取太阳光和激光的高分辨率外差光谱信号,通过波长标定和离差标准化处理得到HDO的整层大气透过率谱,计算出外差系统的光谱分辨率和信噪比并反演得到HDO垂直浓度廓线分布,并对如何提升系统性能进行了下一步规划和展望。

1 激光外差探测基本原理

激光外差探测基于本振光和信号光在非线性光电探测器光敏面上的拍频相干效应,是一种检测微小信号的有效手段,基本原理如图1所示。

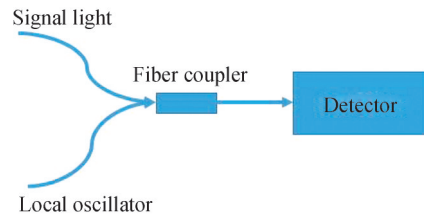


图1 激光外差探测原理

Fig.1 Principle of laser heterodyne detection

拍频后的光外差信号的功率表示为

$$P_{ac} = i_{ac}^2 R = 2\alpha^2 P_1 P_s R [1 + \cos 2(\omega_1 - \omega_s)t] \quad (1)$$

式中, α 为光电探测器的内量子效率, ω_1 、 ω_s 分别为本振光和入射信号光的频率, R 为负载电阻, P_1 为本振光功率, P_s 为信号光功率。因为探测器得到的功率是一段时间的平均功率,所以当探测平均时间长度大于外差周期时,式(1)表示为

$$P_{ac} = 2\alpha^2 P_1 P_s R \quad (2)$$

由式(2)可以看出,外差信号功率 P_{ac} 正比于本振光功率 P_1 和信号光功率 P_s 的乘积^[15-16],利用光外差技术对微弱的信号光进行放大,从而实现高光谱分辨率、高信噪比的探测。

2 实验

借助HITRAN2012光谱数据库(<https://hitran.iao.ru/>)的检索对水同位素HDO的探测谱线进行选择。如图2(a)所示,在波数为 $6\ 438.534\ 4\ cm^{-1}$ 附近,HDO吸收强度为 $1.025 \times 10^{-25}\ cm/mol$,其他气体成分干扰较少。参考的傅里叶变换光谱仪数据和相对吸收线强度如图2(b)所示,位于阴影处的吸收峰是水汽同位素HDO的吸收信号,可用于实验探测。

近红外激光外差光谱测量原理如图3所示,太阳光收集采用自研的高精度太阳跟踪仪,太阳高度角和方位角的追踪分别由两个步进电机控制,采用视日运动轨迹和光电成像跟踪这种开环控制和闭环控制结合的方式,精准确定太阳实时位置。通过准直器(THORLABS, F810APC, NA=0.24)将太阳光收集进单模光纤中,后由光纤光开关(Agiltron CrystaLatch™ Optical Switch, 1×2)对太阳光进行调制,斩波频率设定为125 Hz。调制后的太阳光分为两束,一束用于耦合激光,另一束利用光纤分束器分为两部分,一部分作为参

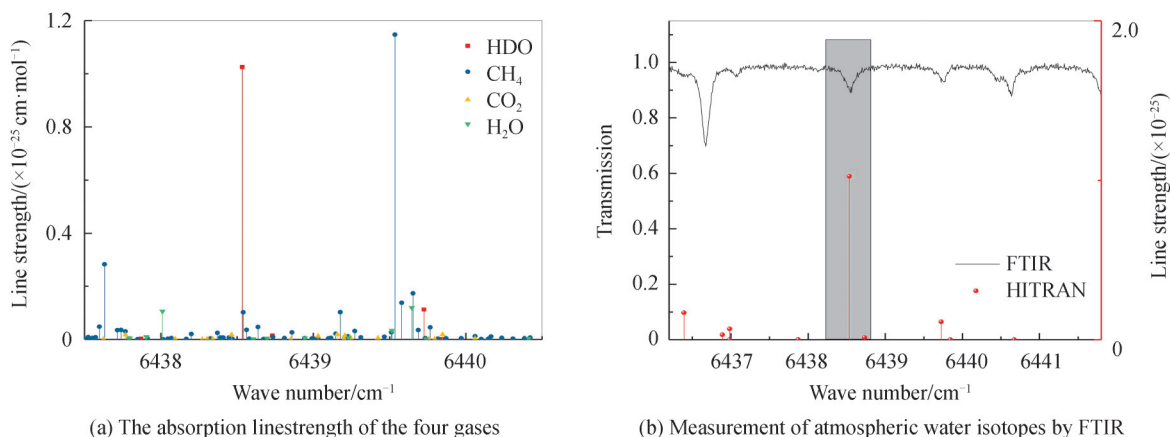


图2 HITRAN数据库及FTIR光谱数据
Fig.2 HITRAN database and FTIR spectral data

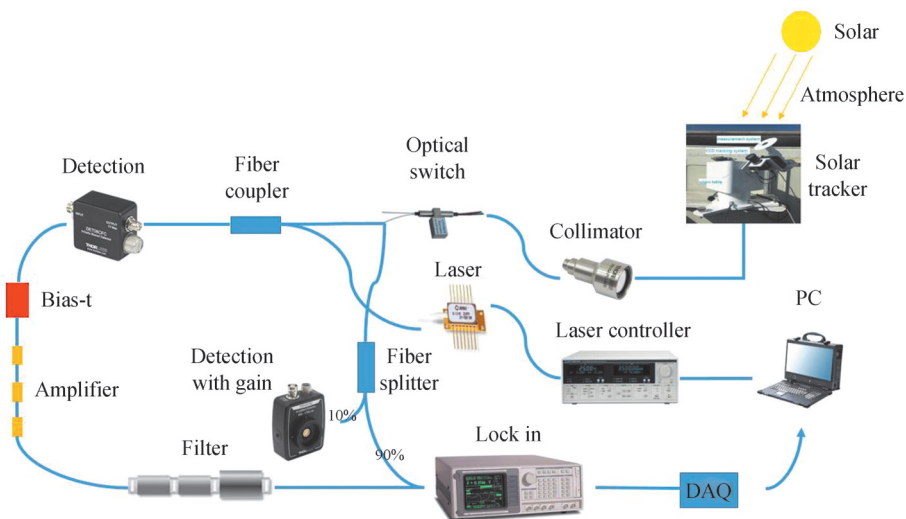


图3 激光外差辐射计原理图
Fig.3 Schematic diagram of laser heterodyne radiometer

考信号送入锁相放大器进行相关性解调,另一部分由高速放大光电探测器(THORLABS,PDA20CS2)进行实时监测,保证太阳光功率相对变化在一定范围内。

采用的DFB激光器(武汉六九传感科技,1 550 nm)激光线宽为5MHz,由激光控制器(ILX Lightwave, LDC-3724C)控制,激光器设定温度为23°C。激光和太阳光通过光纤合束器耦合后,在高速光电探测器(Thorlabs,DET08CFC/M)上进行光混频,后经过Bias-T(Mini-Circuits,ZFBT-6G-FT)滤除直流信号,并利用低噪放大器(Mini-circuits,ZX60-4016E-S+)对交流信号即外差信号进行三级放大,后根据功率谱选定频段对射频信号滤波处理。由于射频信号无法直接采样,采用肖特基二极管(DHM020BB)对放大后的射频外差拍频信号进行功率测量并转换为电压信号,最后由数字锁相放大器(Lock In Amplifier-SR830,LIA)进行解调,并输出外差吸收光谱信号。利用数据采集卡(National Instruments,USB6366)的信号采样和信号输出功能,结合LABVIEW程序驱动激光器电流等间距递增进行波长扫描,从而得到外差光谱信号,每组信号所需扫描时间为1.8 min。太阳跟踪仪见图4,射频电路见图5。



图4 太阳跟踪仪
Fig.4 Sun tracker

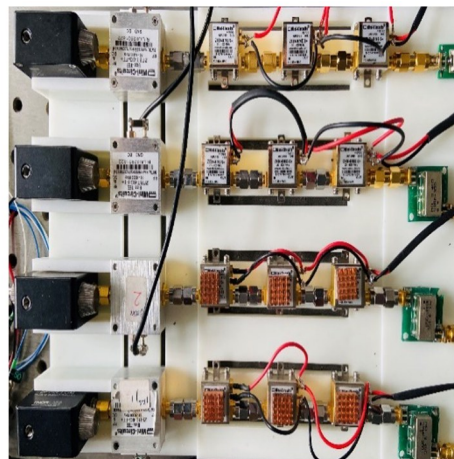


图5 射频电路
Fig.5 RF circuit

3 测量结果与讨论

3.1 仪器函数

测量得到的激光外差光谱实际上是仪器线型函数与大气吸收光谱的卷积,由于激光器线宽远小于电子带宽,因此电子学部分的带宽决定了整个外差系统的光谱分辨率。在光电探测器的电子带宽内,由于热噪声、工频噪声、散粒噪声等的影响,会出现一些频谱尖峰,需要使用滤波器滤除噪声频率,选择低噪声频率进行外差探测。如图6(a)所示,使用频谱分析仪(Agilent Technologies, N9000A)对系统的功率谱分别在以下三种情况下进行了分析。图中蓝色曲线为背景频谱,即无任何信号输入时所呈现的功率谱,红色曲线为激光输入后未滤波功率谱,在高频和低频部分出现较多尖峰,黄色曲线为带通滤波器滤波后频谱。由图中可以看出,噪声主要分布在0~150 MHz和600~800 MHz频段,为了避开这些频段的影响,保证外差系统具有高信噪比。根据激光外差原理和功率谱响应函数,得到如图6(b)所示的外差系统仪器函数,它实际上是射频滤波函数、本振光波长变化函数和低通滤波函数卷积的结果^[17],可以看出探测频段为225~520 MHz,计算双边带宽为590 MHz,并由此得到光谱分辨率约为 0.0196 cm^{-1} 。

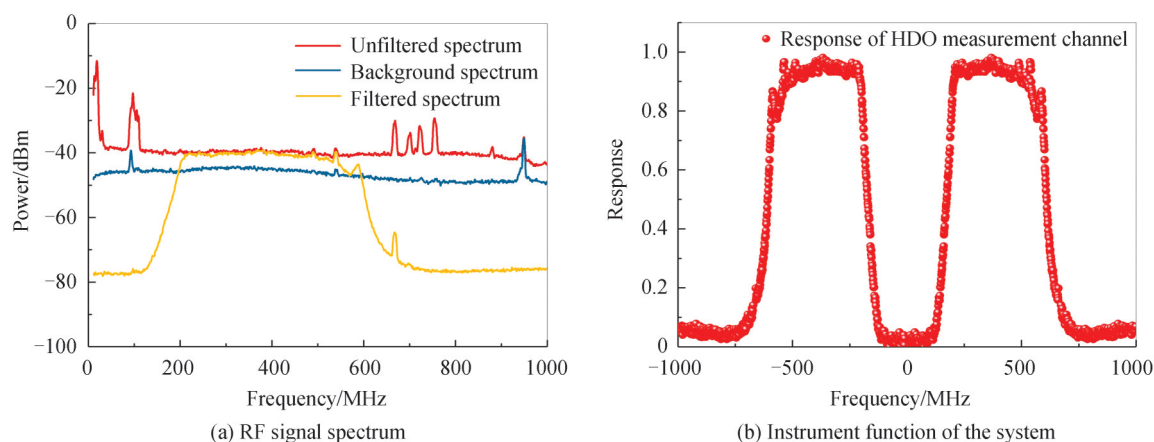


图6 信号频谱及仪器函数
Fig.6 Signal spectrum and function of the system

3.2 数据分析

利用建立的激光外差测量装置在合肥(31.9°N , 117.2°E)科学岛地区进行了实际大气测量,并同时对接激光器进行波长标定,得到如图7(a)所示激光外差信号。激光器驱动温度为 23°C ,电流调谐范围为30~90 mA,对应波数为 $6437.6167\sim 6441.1285\text{ cm}^{-1}$,覆盖了水汽同位素HDO在 6438.5344 cm^{-1} 的吸收峰。实验过程

每个采样点的电流间隔为 0.2 mA,与之相对应的波数变化低于 0.012 cm^{-1} ,表现出良好的线性度。实验过程中由于外差信号受天气的影响较大,这使得对太阳光相对强度变化的监测成了一个不可或缺的条件,以便于有效外差信号的选取。如图 7(b)所示,测量期间太阳光功率相对稳定,残差稳定在 $\pm 0.15 \text{ V}$ 以内,给实验带来的噪声影响较小。

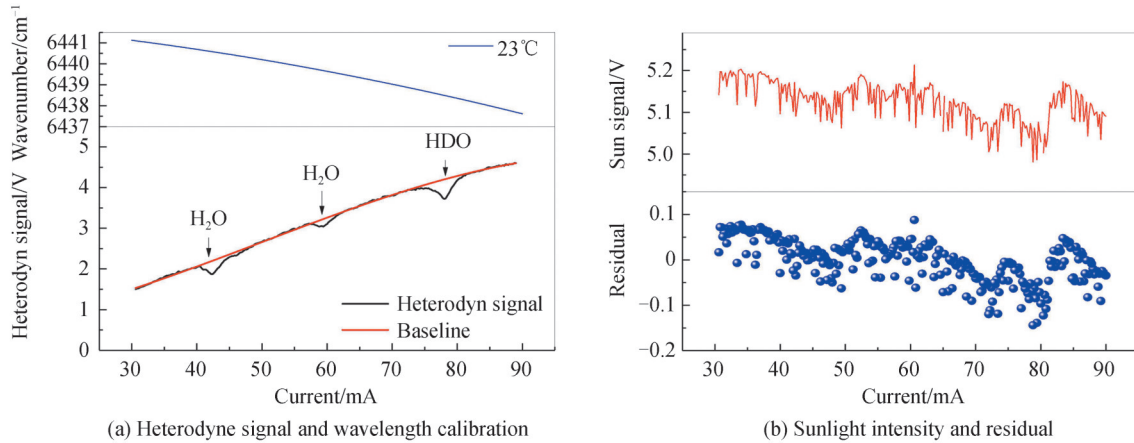


图 7 实测外差信号及参考数据

Fig.7 Measured heterodyne signal and reference data

由于太阳光波动和背景噪声的影响,图 7(a)中测量的外差信号需要扣除背景值,再进行三次多项式拟合基线,取拟合相关度大于 0.999 的实验数据,再用标准偏差方法对光谱进行归一化处理。如图 8 所示,得到 HDO 分子的整层大气透过率谱,比较可得其吸收峰位置与先验数据库位置相吻合,均位于 $6438.5344 \text{ cm}^{-1}$ 附近,其测量吸收信号的信噪比为 46,在吸收线强较低的情况下,依然具有良好的信噪比。通过和模拟吸收光谱对比可得,残差如图 8 所示,相对精度数值在 $(-0.04, 0.01)$ 之内。

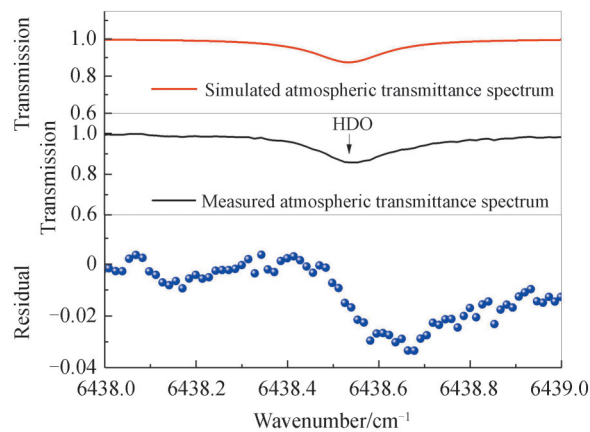


图 8 HDO 实测大气透过率谱与模拟结果比较

Fig.8 Comparison between measured and simulated atmospheric transmittance spectra of HDO

基于实验所得的光谱数据,预先对数据进行处理,包括波长校准和去除背景噪声等,结合先验廓线以及欧洲中期天气预报中心(European Centre for Medium-range Weather Forecasts, ECMWF)的地表温度、压力廓线,计算出初始 Jacobian 矩阵、增益系数等^[18]。最后进行循环迭代计算,对 HDO 进行廓线反演,得到如图 9 (a)蓝色曲线所示 HDO 的对流层垂直浓度廓线分布。与先验廓线对比,其标准偏差为 $0.14 \times 10^{-9} \sim 0.686 \times 10^{-6}$,对应相对误差范围为 $0.8\% \sim 13\%$ 。由于仪器函数、光谱信噪比等参数对反演精度的影响,加之近地面水汽浓度受天气、温度影响较多,导致近地面反演误差偏大。受观测点科学岛(31.9° N , 117.2° E)附近大型水库影响,且测量时间为夏季中午 12:00 附近,水汽蒸发动能强劲,浓度较高,而在不同海拔高度水汽中的 HDO 占比变化不大,波动基本处于一个量级^[4-5]。从图中可以看出,近地面 HDO 浓度变化较为剧烈,最高可

达到 10×10^{-6} , 4 km 以上 HDO 浓度显著降低, 符合对流层水汽浓度变化的一般规律。

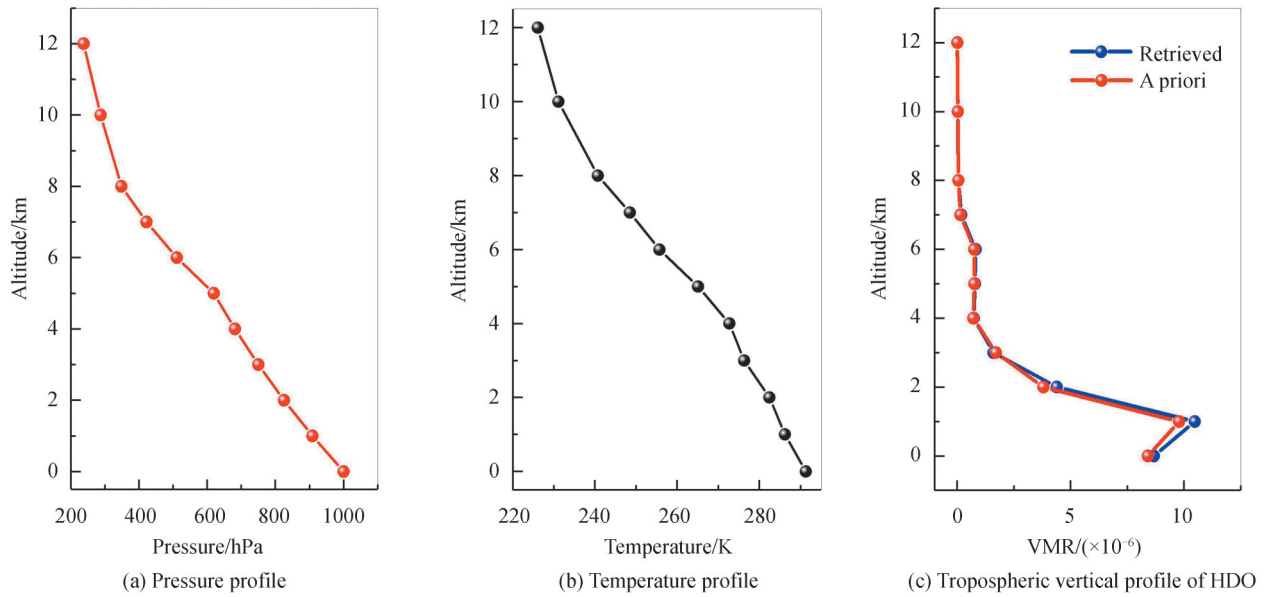


图9 正向数据及反演结果
Fig.9 Forward data and Inversion results

4 结论

以中心波长为 1 553 nm 的 DFB 激光器作为本振光源, 研制了一套近红外全光纤大气水汽同位素 HDO 分子激光外差光谱原理样机, 实现了大气水汽同位素 HDO 光谱的精确探测, 光谱分辨率约为 0.0196 cm^{-1} , 信噪比为 46, 并反演了大气水汽 HDO 垂直廓线分布。同位素示踪作为大气循环机制研究的有效手段, 激光外差技术为大气水汽同位素 HDO 的探测提供了一种新手段和新方法, 在吸收线强很低的情况下依旧表现出良好的光谱分辨率和信噪比。

参考文献

- [1] HELD I M, SODEN B J. Water vapor feedback and global warming[J]. Annual Review of Energy and the Environment, 2000, 25(1):441-475.
- [2] GAO Fei, LEI Ning, HUANG Bo, et al. Design of polychromator and technical implementation of daytime roamn lidar for atmospheric water vapor measurement[J]. Acta Photonica Sinica, 2018, 47(4):0401003.
高飞, 雷宁, 黄波, 等. 全天时喇曼激光雷达探测大气水汽的技术实现及分光系统设计[J]. 光子学报, 2018, 47(4): 0401003.
- [3] ROSENLOF K H. How water enters the stratosphere [J]. Science, 2003, 302(5651):1691-1692.
- [4] EHHALT D H. Vertical profiles of HDO/H₂O in the troposphere [J]. Journal of Geophysical Research, 2005; 110.
- [5] ZADVORNYKH I V, GRIBANOV K G, DENISOVA N Y, et al. Method for retrieval of the HDO/H₂O ratio vertical profile in the atmosphere from satellite spectra simultaneously measured in thermal and near-IR ranges[J]. Atmospheric and Oceanic Optics 2021, 34:81-86.
- [6] ZHANG Shanglu, HUANG Yinbo, LU Xingji, et al. Retrieval of atmospheric H₂O column concentration based on mid-infrared inter-band cascade laser heterodyne radiometer[J]. Spectroscopy and Spectral Analysis, 2019, 39(4):1317-1322.
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.
- [7] XUE Zhengyue, LI Jun, LIU Xiaohai, et al. Measurement and profile inversion of atmospheric N₂O absorption spectrum based on laser heterodyne detection[J]. Acta Physica Sinica, 2021, 70(21):309-317.
薛正跃, 李竣, 刘笑海, 等. 基于激光外差探测的大气 N₂O 吸收光谱测量与廓线反演[J]. 物理学报, 2021, 70(21): 309-317.
- [8] PARVITTE B, ZENINARI V, THIEBEAUX C, et al. Infrared laser heterodyne systems [J]. Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy, 2004, 60(5):1193-1213.
- [9] WEIDMANN D, REBURN W J, SMIYH K M. Ground-based prototype quantum cascade laser heterodyne radiometer for atmospheric studies [J]. Review of Scientific Instruments, 2007, 78(7):073107.
- [10] 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]. *Optic Letters*, 2011, 36(11):1951-1953.
- [11] RODIN A, KLIMCHUK A, CHURBANOV D, et al. Vertical profiling of methane and carbon dioxide using high resolution near-infrared heterodyne spectroscopic observations[C]. *EGU General Assembly Conference Abstracts*, 2014, 16:2611.
- [12] WILSON E L, DIGREGORIO A J, VILLANUEVA G, et al. A portable miniaturized laser heterodyne radiometer (mini-LHR) for remote measurements of column CH₄ and CO₂ [J]. *Applied Physics B*, 2019, 125(11): 1-9.
- [13] WANG Jingjing, TAN Tu, WANG Guishi, et al. Research on all-fiber dual-channel atmospheric greenhouse gases laser heterodyne detection technology[J]. *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 2021, 41(2):354-359.
王晶晶, 谈图, 王贵师, 等. 全光纤双通道大气温室气体激光外差光谱探测技术研究[J]. *光谱学与光谱分析*, 2021, 41(2):354-359.
- [14] WANG Jingjing. Research on remote sensing detection technology and application of near-infrared laser heterodyne spectroscopy for atmospheric greenhouse gases[D]. Hefei: University of Science and Technology of China, 2021.
王晶晶. 大气温室气体近红外激光外差光谱遥感探测技术及应用研究[D]. 合肥:中国科学技术大学, 2021.
- [15] HUANG Yinbo, CAO Zhengsong, LU Xingji. 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.
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.
- [16] ZHANG Shanglu. Retrieval of main greenhouse gases column concentration based on mid-infrared inter-band cascade laser heterodyne radiometer[D]. Hefei: University of Science and Technology of China, 2018.
张尚露. 基于激光外差光谱仪的主要温室气体柱浓度反演研究[D]. 合肥:中国科学技术大学, 2018.
- [17] LU Xingji, CAO Zhengsong, TAN Tu, et al. Instrument line shape 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.
- [18] 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.

Detection Technology of Laser Heterodyne Spectroscopy of Atmospheric Water Isotope HDO

LIU Xiaohai^{1,2}, XUE Zhengyue^{1,2}, LI Jun^{1,2}, WANG Guishi¹, LIU Kun¹,
GAO Xiaoming^{1,2}, TAN Tu¹

(1 *Anhui Institute of Optics and Precision Machinery, Hefei Institute of Material Sciences, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China*)

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

Abstract: As an important driving factor of climate change of the global, water vapor plays an important role in the material and energy transmission and evolution of the earth system. As a natural greenhouse gas, the particularity of water vapor is that it can change among gas, liquid and solid under natural conditions, resulting in drastic changes in its abundance. With the intensification of global warming, the water vapor content in the atmosphere will also increase, thus forming positive feedback and accelerating warming. Isotope tracing is an important means to study the atmospheric cycle. The scientific problem of water vapor source and sink can be solved by obtaining water vapor isotope information. The distribution of water vapor is affected by many factors (such as surface geographical environment, latitude, temperature, etc.), and the concentration of water vapor varies greatly in different places and at different times. This requires that the measuring instrument must have the characteristics of miniaturization and portability in the technology to ensure the performance. As an atmospheric remote sensing method developed rapidly in the world in recent years, laser heterodyne spectroscopy has the characteristics of high signal-to-noise ratio, high spectral resolution and small volume. Based on this, using laser heterodyne technology to obtain the whole

layer of atmospheric water vapor isotope information is an effective means. A system prototype of all fiber laser heterodyne spectrometer is established by using a self-developed high-precision solar tracker. In this paper, the laser heterodyne spectroscopy method is used to detect the atmospheric water vapor isotope HDO through a set of laser heterodyne device whose central wavelength is located in the water vapor isotope HDO ($1\ 553\ \text{cm}^{-1}$). The field atmospheric simulation and detection were carried out in Hefei Science Island area. The laser heterodyne spectral signal of water isotope HDO molecules was obtained in the near-infrared band ($6\ 437\sim 6\ 441\ \text{cm}^{-1}$). The laser heterodyne device takes the sunlight as the signal light, scans the laser with the wavelength at the absorption peak of water vapor isotope HDO as the local oscillator, obtains the high-resolution heterodyne spectrum signal of sunlight and laser, and obtains the whole atmospheric transmittance spectrum of HDO through wavelength calibration and dispersion standardization. The spectral resolution and signal-to-noise ratio of the heterodyne system are calculated to be $0.019\ 6\ \text{cm}^{-1}$ and 46 respectively. When the absorption line is very low, it still shows good spectral resolution and signal-to-noise ratio. At the same time, the inversion of HDO gas concentration is carried out, and the vertical profile of troposphere is obtained. The measurement practice shows that the laser heterodyne technology can be used to study the detection technology of atmospheric water vapor isotope HDO, which provides a new means and method for the detection of atmospheric water vapor isotope HDO.

Key words: Laser heterodyne; Water vapour; Isotopes; HDO; Signal to noise ratio; Spectral resolution; Atmospheric transmittance spectrum; Vertical profile

OCIS Codes: 010.1320; 010.1030; 010.7340; 060.2840