

基于吸收光谱激光雷达的甲烷和温度同时反演的算法研究 (特邀)

林斯敏^{1†}, 岳 斌^{2†}, 郭晓娅¹, 方晋贤¹, 上官明佳^{1*}

(1. 厦门大学 海洋与地球学院 海洋生物地球化学全国重点实验室, 福建 厦门 361102;
2. 苏州城市学院 光学与电子信息学院 苏州市生物光子科技重点实验室, 江苏 苏州 215104)

摘 要: 甲烷(CH₄)的短期温室效应强度可达二氧化碳(CO₂)的 84 倍,是全球气候变化的重点监测对象。激光雷达技术凭借高时空分辨率与高精度探测优势,已成为甲烷遥感监测的核心手段。然而,甲烷浓度反演高度依赖于精确的温度参数,在差分吸收激光雷达(DIAL)中,每 1 K 的温度偏差将导致约 14 ppb 的甲烷浓度反演误差,因此非实时、非原位温度数据会显著降低探测精度。针对此问题,提出了一种基于吸收光谱激光雷达技术同步测量大气柱甲烷浓度、温度及水汽浓度(H₂O)的算法。首先通过光谱解构创新构建了九峰洛伦兹函数与二项式背景的复合模型;其次经理论优化将拟合参数从 30 个缩减至 6 个关键变量,接着经扫描优化,在不同环境条件下,基于该模型反演的 CH₄ 浓度、温度及 H₂O 浓度的系统偏差分别小于 1 ppb、0.6 K 和 0.05%。最后考虑了泊松噪声影响,分析不同光程长度与信噪比条件下各参数反演误差分布规律。该技术将推动甲烷通量遥感监测的发展,在能源系统泄漏检测、农业排放评估及碳中和政策制定等领域具有重要应用价值。

关键词: 大气探测; 甲烷探测; 吸收光谱激光雷达; 温度探测

中图分类号: TN958.98 **文献标志码:** A **DOI:** 10.3788/IRLA20250186

引用格式: LIN Simin, YUE Bin, GUO Xiaoya, et al. Algorithm for simultaneous retrieval of methane and temperature using absorption spectroscopy lidar[J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2025, 54(8): 20250186.

林斯敏, 岳斌, 郭晓娅, 等. 基于吸收光谱激光雷达的甲烷和温度同时反演的算法研究 (特邀)[J]. 红外与激光工程, 2025, 54(8): 20250186.

0 引 言

甲烷(CH₄)是仅次于二氧化碳(CO₂)的第二大温室气体,其辐射强迫效应对全球气候变化的驱动作用日益显著,从 1750—2019 年,甲烷对总有效辐射强迫(ERF)的相对贡献为 19%。根据美国国家海洋和大气管理局(NOAA)2024 年数据,大气中甲烷月平均浓度已达到 1936.64 ppb,约为工业革命前水平的 3 倍^[1]。这一显著增长主要源于工业化进程的加速以及农作物和畜牧业生产集约化导致的甲烷排放不断增加^[2]。尽管甲烷的大气寿命仅 11.8 年(约为 CO₂ 的十分之一)^[3],但其百年尺度和 20 年尺度的全球增温潜势

(GWP)分别为 CO₂ 的 27.9 倍和 81.2 倍^[4]。因此,精准监测甲烷浓度并制定针对性减排策略,可在短期内有效缓解温室效应,对实现《巴黎协定》温控目标至关重要。

目前,甲烷探测技术主要分为原位与遥感两类。原位技术(如电化学传感器、质谱仪)虽响应速度快^[5],但受限于空间覆盖能力及复杂环境的适应性。相比之下,遥感技术通过主动或被动方式获取大范围数据,其中激光雷达凭借高时空分辨率、全天候探测及强抗干扰能力,成为大气甲烷监测的核心手段。近年来,差分吸收激光雷达(DIAL)与集成路径差分吸

收稿日期:2025-03-19; 修订日期:2025-04-25

基金项目:量子科学与技术创新计划项目(2021ZD0303102)

作者简介:林斯敏,女,硕士生,主要从事大气探测激光雷达算法方面的研究。

岳斌,女,讲师,博士,主要从事气体浓度探测激光雷达方面的研究。

导师(通讯作者)简介:上官明佳,男,副教授,博士,从事单光子激光雷达技术及其应用研究。

† 为共同第一作者,对文章具有同等贡献。

收激光雷达 (IPDA) 已被广泛应用于大气中的甲烷探测 [6-8], 例如, CHARM-F(CO₂ and CH₄ Remote Monitoring—Flugzeug) 系统实现了 CO₂ 和 CH₄ 的同时探测 [9], 而甲烷遥感激激光雷达任务 (MERLIN) 将提供天基高精度数据支撑气候变化研究 [10]。这些技术为研究甲烷的排放源和传输过程提供了有力支持, 展现出广阔应用前景。

在利用激光雷达技术进行大气甲烷探测时, 吸收光谱线强和展宽效应同时受到环境温度与气体浓度的耦合作用, 若缺乏精确的温度数据, 将导致浓度反演的系统性偏差。而目前使用的温度数据通常是来源于非实时和非原位的无线电探空仪或模型, 因此这些温度数据不可避免的引入甲烷反演误差 [11]。

在之前的工作中, 提出了基于吸收光谱的五峰洛伦兹反演模型用于同时探测大气中的 CO₂、半重水 (HDO) 与温度 (T) [12]。鉴于该光谱拟合反演技术在多参数探测方面展现出的潜力, 该研究将其拓展至大气甲烷监测领域, 创新性地提出了一种柱平均 CH₄ 吸收光谱激光雷达, 可以同时测量 CH₄ 浓度 (X_{CH_4})、 T 和 H₂O 浓度 (X_{H_2O})。首先对 CH₄ 激光雷达的工作原理进行了阐述, 并深入剖析了 DIAL 技术中, 温度偏差 (ΔT) 对 X_{CH_4} 反演精度所产生的影响。通过建立温度与吸收光谱半高半宽的理论关联, 验证了基于 CH₄ 光谱同步反演温度的可行性。研究构建了九峰洛伦兹函数与二项式背景叠加的光谱拟合模型, 通过理论优化将拟合参数由 30 项减至 6 个关键变量, 接着对选点进行优化。最后, 通过数值仿真验证该模型的有效性, 建立了 X_{CH_4} 、 T 、 X_{H_2O} 误差与信噪比和距离的关系, 为实验研究提供了理论指导。

1 CH₄ 激光雷达原理

激光雷达方程可表示为 [13]:

$$N_s(x_i, R) = \frac{E}{h x_i} \eta_0 \eta_q \frac{A_t}{R^2} O(R) \frac{\tau}{2} \beta(x_i, R) T_r^2(x_i, R) \quad (1)$$

式中: N_s 为雷达回波信号; E 为脉冲能量 (单位: J); x_i 为激光波数 (单位: cm⁻¹); R 表示距离 (单位: m); h 为普朗克常数; η_0 为发射信号的光学效率 (单位: %); η_q 为量子效率 (单位: %); A_t 为望远镜面积 (单位: m²); $O(R)$ 为距离 R 处的几何重叠因子; c 为光速; τ 为脉冲宽度 (单位: s); β 为米氏体积后向散射系数 (单位: m⁻¹); T_r 为透过率函数。其可表示为:

$$T_r(x_i, R) = \exp\left\{-\int_0^R [\alpha_a(x_i, R) + \alpha_s(x_i, R)] dr\right\} \quad (2)$$

式中: α_a 为气溶胶消光系数 (单位: m⁻¹), 包括散射和吸收的影响; α_s 为分子消光系数, 表示为 $\alpha_s = \alpha + \alpha_m$, 其中 α 为被研究气体的吸收系数, α_m 代表其他分子的消光系数。

激光雷达基于大气中 CH₄ 对特定波长激光的吸收特性实现 CH₄ 浓度探测。测量过程中, 由于各波长之间的差异通常在 30 GHz 范围内, β 、 α_a 和 α_m 被认为不随波长变化, 因此双波数激光回波信号比值可表示为:

$$\frac{N_{si}}{N_{s0}} = \exp\left(-2 \int_0^R [\alpha_i - \alpha_0] dr\right) \quad (3)$$

式中: α_i 和 α_0 分别为波数 λ_i 和 λ_0 下的 CH₄ 吸收系数, 其中 λ_i 为测量点, λ_0 为参考点。

考虑到甲烷在 1645 nm 波段具有强的吸收峰, 可显著提升检测灵敏度。同时水蒸气和其他常见气体的吸收干扰较弱, 有效降低干扰。此外该波段兼容成熟的半导体激光器技术和探测器技术, 兼顾了系统稳定性与成本效率, 因此选择 6077 cm⁻¹ (1645.549 nm) 波段进行甲烷反演。以 CH₄ 吸收弱的 6077.80 cm⁻¹ 为参考点, 从 0 到距离 R 对吸收系数进行积分, 获得光学深度 (OD), 表示为:

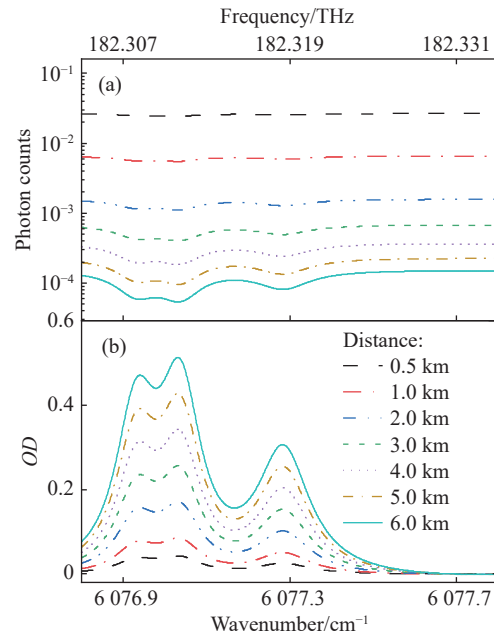


图 1 (a) 回波信号 $N_s(x_i, R)$ 的吸收光谱和 (b) 在不同距离处的甲烷总光学深度 (OD) 光谱

Fig.1 (a) Spectra of backscattered photon counts $N_s(x_i, R)$ and (b) total optical depth (OD) spectra of CH₄ at various distances

$$OD(x_i, R) = -0.5 \ln \left[\frac{N_{si}}{N_{s0}} \right] = \int_0^R [\alpha(x_i, R) - \alpha(x_0, R)] dr \quad (4)$$

6076.80~6077.80 cm⁻¹波段的雷达回波信号 $N_s(x_i, R)$ 可以由公式(1)得到,不同距离处的相对光谱如图1(a)所示。接着应用公式(4),可以计算出不同距离下的光学深度光谱,如图1(b)所示。由图1可见,随着距离的增加,回波信号光谱和光学深度光谱的对比度均有所提高,这将有助于后续的气体浓度及温度探测工作。

图2所示为该研究的技术路线图。

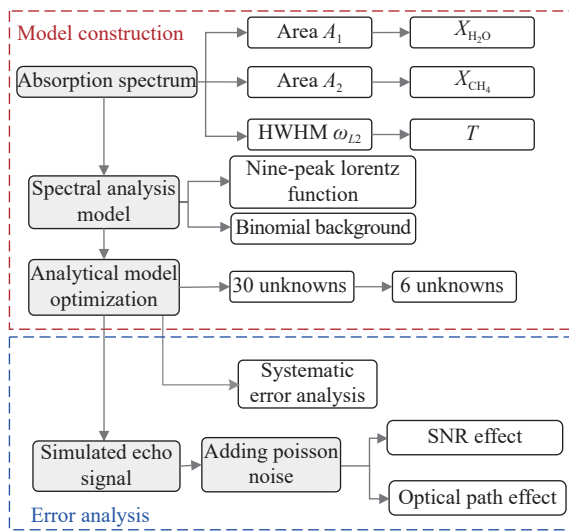


图2 技术路线图

Fig.2 Technology roadmap

2 温度偏差对 CH₄-DIAL 的影响

在甲烷差分吸收激光雷达 (CH₄ DIAL) 中,通常采用两束不同波长的激光作为探测光束,其中在线波长 (λ_{on}) 选取甲烷强吸收特征谱线中心位置,而离线波长 (λ_{off}) 则设置于吸收较弱的谱带区域。通过接收硬目标或大气散射体后向散射信号,即可获得路径积分形式的柱平均 X_{CH_4} ^[14]。根据公式(4),DIAL 的 OD 可以表示为:

$$OD = -0.5 \ln \left[\frac{N_{on}}{N_{off}} \right] \quad (5)$$

式中: N_{on} 为 λ_{on} 处的回波信号; N_{off} 为 λ_{off} 处的回波信号。根据 OD , 大气中的 CH₄ 分子数密度 N_{CH_4} (molecule/m³) 可反演为:

$$N_{CH_4} = \frac{OD}{(\sigma_{on} - \sigma_{off})R} \quad (6)$$

式中: σ_{on} 为 CH₄ 在 λ_{on} 处的吸收截面; σ_{off} 为 CH₄ 在 λ_{off} 处的吸收截面。

根据理想气体状态方程 N_{CH_4} 可转化为 X_{CH_4} :

$$X_{CH_4} = \frac{N_{CH_4}}{n} \times 10^6 = \frac{N_{CH_4} k_b T}{P} \times 10^6 \quad (7)$$

式中: n 为大气分子数密度 (molecule/m³); P 为环境压力 (Pa); T 为环境温度 (K); k_b 为玻尔兹曼常数。

温度偏差 ΔT 对 X_{CH_4} 的反演精度具有显著影响,图3展示了在 DIAL 技术中, ΔT 对甲烷浓度反演误差 (ΔX_{CH_4}) 的影响。包括以下三种情况: 由 ΔT 引起的吸收截面偏差导致的 ΔX_{CH_4} (虚线); 将 N_{CH_4} 转换为 X_{CH_4} 过程中, ΔT 引起的误差 (点划线); 两种因素共同作用下的总 CH₄ 反演误差 (实线)。由图可知, ΔT 越大将引起更大的 ΔX_{CH_4} , 其中温度每偏差 1 K, 由 ΔT 引起的吸收截面偏差导致的 ΔX_{CH_4} 为 7.6 ppb; 由 ΔT 引起的 N_{CH_4} 转换为 X_{CH_4} 过程中导致的 ΔX_{CH_4} 为 6.4 ppb; 两种因素共同作用下的总 ΔX_{CH_4} 为 14.0 ppb。

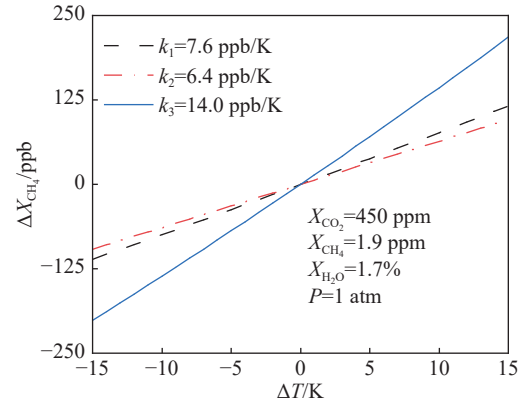


图3 DIAL 中 ΔT 引起的 ΔX_{CH_4} 分析。(图中参数 k 为直线斜率, 表示每 1 K ΔT 引起的 ΔX_{CH_4})

Fig.3 Analysis of ΔX_{CH_4} caused by ΔT in DIAL. (The parameter k in the figure represents the slope of the line, indicating the error in ΔX_{CH_4} retrieval for each 1 K deviation)

3 模型建立

3.1 光谱分解

基于 HITRAN 2020 数据库计算获得目标波段下的吸收光谱^[15], 提出了一种多峰分解结合背景校正的光谱解析方法^[12]。依据峰值强度高于背景吸收峰两

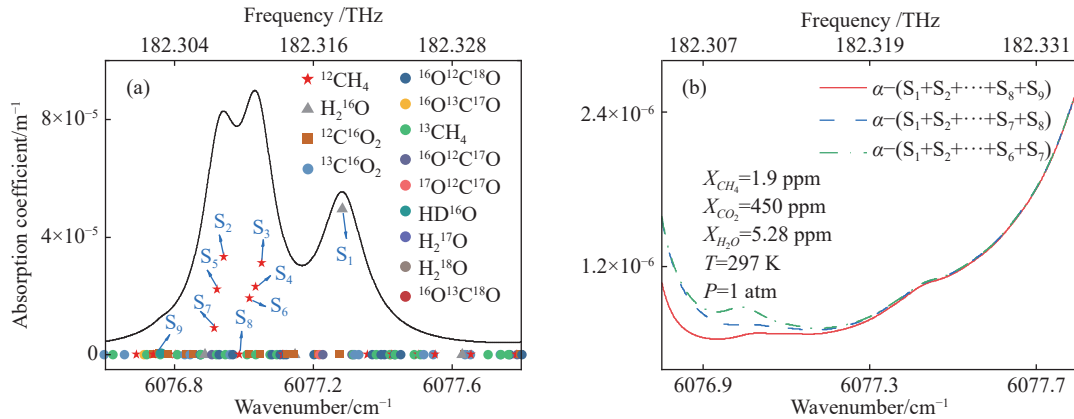


图 4 (a) 6077 cm⁻¹ 波段的吸收光谱; (b) 去除峰 S₁~S₉ 后的残余光谱 (实线), 去除 S₁~S₈ 后的残余光谱 (划线), 以及去除 S₁~S₇ 后的残余光谱 (点划线)

Fig 4 (a) Absorption spectrum in the 6077 cm⁻¹ band; (b) Residual spectrum (solid line) after removing peaks S₁-S₉, and the residual spectrum (dashed line) after removing S₁-S₈, and the residual spectrum (dashed-dotted line) after removing S₁-S₇

倍以上的标准, 在目标波段内筛选出 S₁~S₉ 这 9 个吸收峰, 其位置如图 4(a) 所示。

接着通过逐级去除优势吸收峰的方式分析次级峰的光谱贡献: 当去除 S₁~S₇ 这 7 个吸收峰后, 剩余光谱如图 4(b) 中的点划线所示, 其中 S₈ 峰仍呈现显著吸收特征; 继续去除 S₈ 峰后, 剩余光谱如图 4(b) 中的划线所示, 发现 S₉ 峰对背景基线拟合具有重要影响; 最终去除 S₉ 峰后的背景残余光谱如图 4(b) 中的实线所示, 呈现典型多项式分布特征, 经拟合验证其符合二次函数规律。此外, 验证了 CO₂ 浓度变化对目标波段吸收光谱的影响, 分析结果表明, 当 CO₂ 浓度由 350 ppm 变化至 550 ppm 时, 吸收系数几乎不变。基于上述分析, 构建了九峰洛伦兹线型结合二次函数背景的光谱模型用于描述 CH₄ 吸收光谱:

$$F(x) = \sum_{i=1}^9 f_i(x) + B_1 \cdot (x - B_2)^2 + B_3 \quad (8)$$

其中, $f_i(x)$ 表示洛伦兹函数。则:

$$f_i(x) = \frac{A_i}{\pi} \frac{\omega_L}{\omega_L^2 + (x - x_{ci})^2} \quad (i = 1, 2, \dots, 8, 9) \quad (9)$$

式中: A 为吸收峰的积分面积 (单位: cm⁻²); ω_L 为洛伦兹线型的半高半宽 (单位: cm⁻¹); x_c 为吸收峰的中心波数 (单位: cm⁻¹)。其中, 中心波数 x_c 计算如下:

$$x_c = x_0 + P \times P_{shift} \times \left(\frac{T_0}{T} \right)^{n_{air}} \quad (10)$$

式中: x_0 表示真空环境下的中心波数 (单位: cm⁻¹); P_{shift} 表示谱线位置的压力位移系数 (单位: cm⁻¹·atm⁻¹); T_0 表示标准温度 296 K; n_{air} 表示压力展宽的温度依赖

系数 (无量纲)。

吸收峰的积分面积 A 计算如下:

$$A = \frac{S(T) P_{self}}{k_b T \times 10^6} \quad (11)$$

式中: $S(T)$ 表示环境温度 T 下谱线的跃迁强度 (单位: cm·molecule⁻¹); P_{self} 表示目标气体分压 (单位: atm)。计算如下:

$$S(T) = S(T_0) \cdot \frac{Q(T_0)}{Q(T)} \cdot \left\{ \frac{1 - \exp[-c_2 x_0 / T]}{1 - \exp[-c_2 x_0 / T_0]} \right\} \cdot \exp \left[E'' c_2 \left(\frac{1}{T_0} - \frac{1}{T} \right) \right] \quad (12)$$

$$c_2 = \frac{h \times c}{k_b} = 1.438 \, 776 \, 9 \, \text{cm} \cdot \text{K} \quad (13)$$

$$P_{self} = P \cdot X \cdot \text{abundance} \quad (14)$$

式中: $S(T_0)$ 表示标准温度 T_0 下谱线的跃迁强度 (单位: cm·molecule⁻¹); k_b 表示玻尔兹曼常数; c_2 表示第二辐射常数; h 表示普朗克常数; c 表示光速; $Q(T)$ 和 $Q(T_0)$ 分别表示在 T 与 T_0 下吸收气体配分函数; E'' 表示跃迁的低能态能量 (单位: cm⁻¹); X 表示目标气体在大气中的含量; abundance 表示目标同位素在自然界中的丰度。

洛伦兹线型的半高半宽 ω_L 计算如下:

$$\omega_L(P, T) = \left(\frac{T_0}{T} \right)^{n_{air}} \cdot [\gamma_{air}(P_0, T_0)(P - P_{self}) + \gamma_{self}(P_0, T_0)P_{self}] \quad (15)$$

式中: γ_{air} 为环境加宽 (单位: cm⁻¹/atm); γ_{self} 为自加宽 (单位: cm⁻¹/atm)。模型中所使用的 9 个吸收峰的相关

表 1 模型中使用的 9 个吸收峰的相关参数

Tab.1 Parameters of the nine absorption peaks used in the model

Formula	H ₂ ¹⁶ O	¹² CH ₄	¹² CH ₄	¹² CH ₄	¹² CH ₄	¹² CH ₄	¹² CH ₄	¹² CH ₄	¹² C ¹⁶ O ₂
Peak number	S ₁	S ₂	S ₃	S ₄	S ₅	S ₆	S ₇	S ₈	S ₉
AFGL code	161	211	211	211	211	211	211	211	626
x_0	6077.289	6076.953	6077.063	6077.045	6076.934	6077.028	6076.928	6077	6076.758
$S(T_0)$	2.87×10^{-25}	1.29×10^{-21}	1.17×10^{-21}	7.51×10^{-22}	7.74×10^{-22}	7.76×10^{-22}	4.21×10^{-22}	5.75×10^{-24}	1.65×10^{-25}
γ_{air}	0.0725	0.0575	0.0559	0.0484	0.0518	0.0604	0.0702	0.0627	0.0949
γ_{self}	0.352	0.077	0.077	0.077	0.077	0.077	0.077	0.077	0.127
E''	704.2141	219.9198	219.9452	219.9413	219.9151	219.9368	219.9135	293.1542	0
n_{air}	0.59	0.7	0.7	0.7	0.7	0.7	0.7	0.85	0.69
P_{self}	-0.0038	-0.0122	-0.0122	-0.0122	-0.0122	-0.0122	-0.0122	-0.0122	-0.00311
abundance	0.997317	0.988274	0.988274	0.988274	0.988274	0.988274	0.988274	0.988274	0.984204

参数如表 1 所示。

在进行拟合前, 先将 OD 归一化处理为 UOD:

$$UOD(x_i, R) = -\frac{1}{2R} \ln \left[\frac{N_{si}}{N_{s0}} \right] = \alpha(x_i, R) - \alpha(x_0, R) \quad (16)$$

在近地大气环境中, 分子吸收光谱特征主要表现为洛伦兹线型分布^[16], 特定波数 x 处的总吸收系数可表征为各吸收峰在该波数位置的吸收系数叠加, 这种效应反映了不同分子或同一分子的不同能级跃迁对总吸收系数的贡献:

$$\alpha(x) = \sum_{i=1}^n f_i(x) \quad (17)$$

式中: $f(x)$ 表示洛伦兹函数, 如公式 (9) 所示。

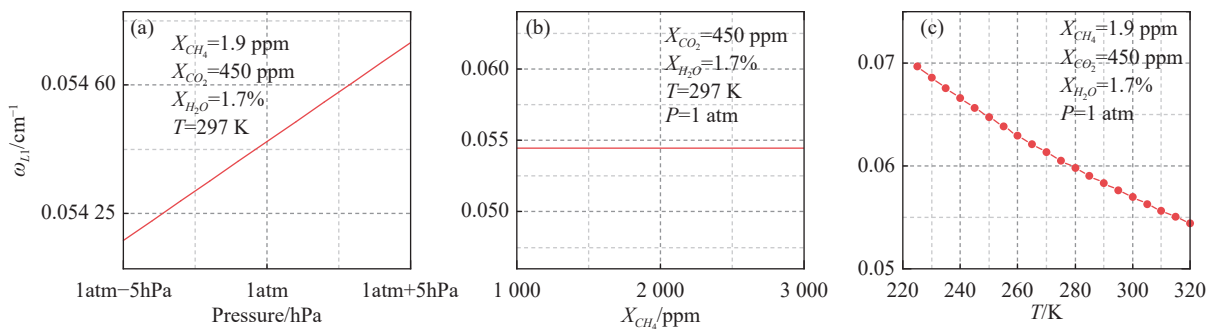
通过洛伦兹拟合面积 A 可以反演得到 CH₄ 及 H₂O 浓度, 目标气体的浓度表示为:

$$X = \frac{A}{S(T)n_L} \frac{P_0}{P} \frac{T}{T_0} \quad (18)$$

式中: P_0 为 1 atm; T_0 为 296 K; n_L 为 P_0 、 T_0 条件下大气的分子数密度 (单位: molecule/m³)。

3.2 温度反演可行性分析

由公式 (15) 可知, 半高半宽 ω_L 由 T 、 P 和 P_{self} 共同决定, 下面分别分析这 3 个参数对 ω_L 的影响, 以吸收峰 S₂ 为例: 由于大气压力在垂直方向上相对稳定, 可以使用模型数据, 其偏差在 ± 2 hPa 以内^[17], 如图 5(a) 所示, 当 P 为 1 atm, 压力偏差为 ± 5 hPa 时, ω_L 的变化保持在 1% 以内。因此, 尽管 P 影响 ω_L 的大小, 但准确压力数据可以最小化其引入的误差。此外, P_{self} 对 ω_L 的影响约为自身大小的 $10^{-9} \sim 10^{-10}$ 范围, 因此可忽略不计。在公式 (15) 中, $\gamma_{air}(P_0, T_0)(P - P_{self})$ 表示大气中其他气体对 ω_L 贡献, 而 $\gamma_{air}(P_0, T_0)P_{self}$ 表示甲烷分压对 ω_L 的贡献。如图 5(b) 所示, 当甲烷浓度从 1000 ppb 变化到 3000 ppb 时, ω_L 仅增加 $3.85 \times 10^{-8} \text{ cm}^{-1}$, 约为自身大小的 10^{-7} 。如图 5(c) 所示, 当温度从 220 K 变化到 320 K, 温度每变化 1 K, S₂ 峰的

图 5 (a) 压强、(b) X_{CH_4} 和 (c) 温度对 ω_L 产生的影响Fig.5 Effects of (a) pressure, (b) X_{CH_4} , and (c) temperature on ω_L

ω_L 变化约 $1.6 \times 10^{-4} \text{ cm}^{-1}$, 约为自身大小的 10^{-3} , 因此 ω_L 的温度敏感性较浓度效应高 4 个数量级, ω_L 受气体浓度影响很小, 主要由温度决定, 这一特性为使用 ω_L 进行温度反演提供了基础。

3.3 参数优化

基于公式 (8) 的九峰洛伦兹拟合模型, 未知参数数量达 30 个, 这不仅显著增加了拟合的复杂性, 还可能降低结果的准确性。因此, 寻找参数间的关联性以减少需独立确定的变量数量, 对于提高拟合效率和精度至关重要。

首先, 需要确定 9 个洛伦兹函数的中心波数。根据公式 (10), 中心波数受温度和压力的影响, 以吸收峰 S_2 为例: 温度每变化 1 K 会导致 x_c 变化约 $3.5 \times 10^{-5} \text{ cm}^{-1}$ 。同样, 压力变化 1 hPa 会导致 x_c 约 $1.2 \times 10^{-5} \text{ cm}^{-1}$ 的变化。然而, 与 x_c 本身相比, 这些变化量可以忽略不计, 因此在不考虑由大气风速引起的光谱偏移的情况下, 9 个洛伦兹函数的中心波数可以被视为已知常数。

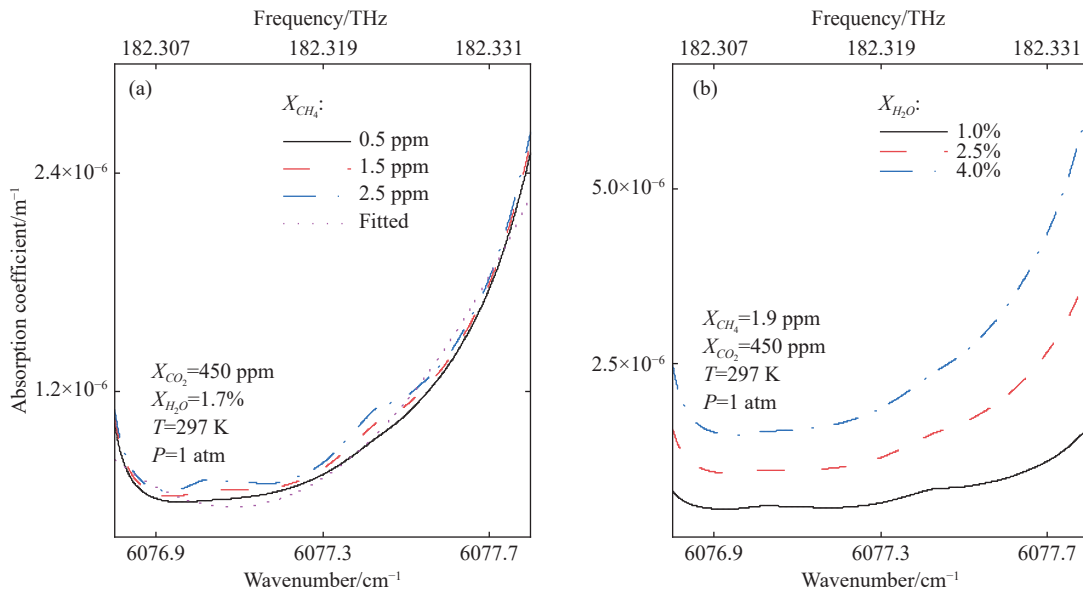
其次, ω_L 主要受温度影响而非气体浓度, 因此同一气体不同吸收峰的 ω_L 可以通过温度相关联。由表 1 可知, 吸收峰 $S_2 \sim S_7$ 的压力展宽温度依赖系数 n_{air} 相同, 这意味着 $S_3 \sim S_7$ 相对于 S_2 的 ω_L 比值不随温度变化。此外, 对于吸收峰 S_8 , 温度每升高 1 K, ω_{L8}/ω_{L2} 下降约 6.2×10^{-4} , 这表明甲烷吸收峰 $S_3 \sim S_8$ 相对于 S_2 的 ω_L 比值可以被视为常数。因此, 将 CH_4 吸收峰 S_2 的 ω_{L2} 确定为未知数即可以确定剩余甲烷吸收峰

的 ω_L 值。以上分析将 ω_L 中的未知数从 9 个减少到两个, 即吸收峰 S_1 的 ω_{L1} 与吸收峰 S_2 的 ω_{L2} 。

根据公式 (11), 面积 A 与气体浓度和谱线跃迁强度 $S(T)$ 有关, 对于同种气体, 面积 A 仅取决于 $S(T)$ 。因此根据公式 (12), 同一气体不同吸收峰间的 A 比值仅取决于吸收峰本身的参数和温度。当环境温度变化时, 甲烷各吸收峰面积的比值变化如下: 温度每升高 1 K, 吸收峰 $S_3 \sim S_8$ 相对于 S_2 的 A 比值仅变化约 $10^{-7} \sim 10^{-9}$ 。因此, 对于同一气体, 不同峰之间的面积比可以通过温度来确定, 以上分析将 A 中的未知数从 9 个减少到 2 个, 即吸收峰 S_1 的 A_1 与吸收峰 S_2 的 A_2 。

最后, 通过分析不同 CH_4 浓度、 H_2O 浓度、温度和压力条件下, 去除 $S_1 \sim S_9$ 峰后的剩余背景光谱, 发现背景值可以通过二次方程 $B_1(x-B_2)^2+B_3$ 进行拟合, 拟合结果如图 6(a) 短点线所示。此外图 6(a) 为不同 CH_4 浓度下的背景光谱, 图 6(b) 为不同 H_2O 浓度下的背景光谱, 图 6(c) 为不同温度下的背景光谱, 图 6(d) 为不同压强下的背景光谱。通过分析, B_2 的值稳定地收敛于 6077.10, 因此 B_2 可以固定为常数 6077.10, 由此将背景中的未知数从 3 个减少到 2 个。

基于上述分析, 将未知数从 30 个简化为 6 个, 分别为吸收峰 S_1 的面积 A_1 、 S_2 的面积 A_2 、 S_1 的 ω_{L1} 、 S_2 的 ω_{L2} 、背景参数 B_1 和 B_3 。其中, A_1 将用于反演 H_2O 浓度 $X_{\text{H}_2\text{O}}$, A_2 将用于反演 CH_4 浓度 X_{CH_4} , ω_{L2} 将用于反演温度。



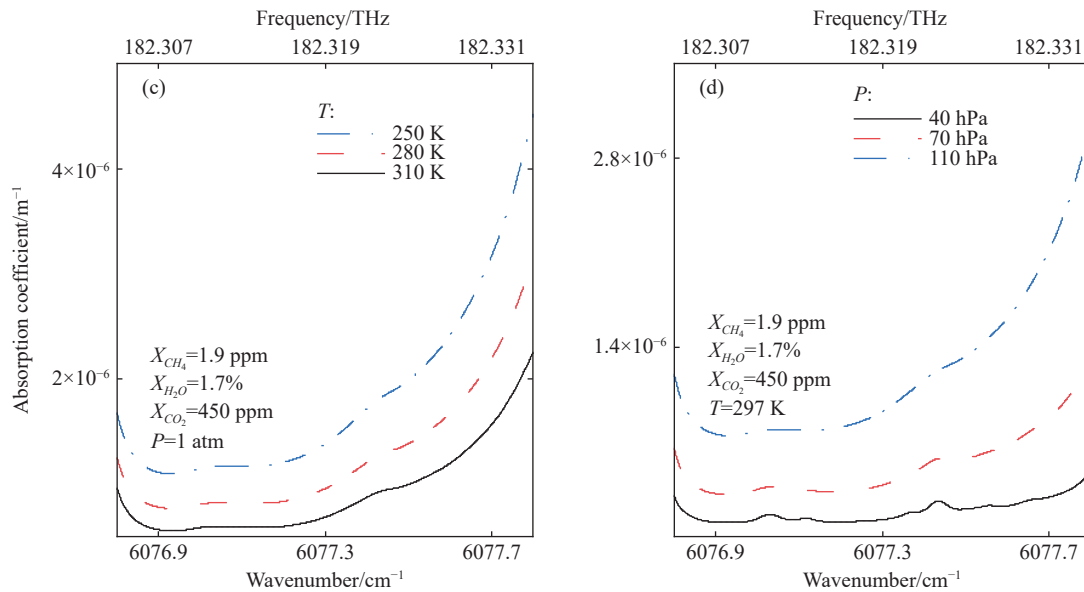


图6 不同 (a) 甲烷浓度; (b) 水浓度; (c) 温度; (d) 压力条件下的移除 9 个吸收峰后的背景光谱

Fig.6 (a) CH_4 concentration; (b) H_2O concentration; (c) Temperature and (d) pressure on the background spectra after removing the nine absorption peaks

3.4 扫描策略

为优化吸收光谱扫描策略并提升参数反演精度, 系统分析了在同一时间分辨率下采样起点对反演结果的影响规律。为使扫描范围覆盖甲烷双峰与水峰, 在双峰特征区中的 182.3054~182.3110 THz 范围与水峰特征区中的 182.3150~182.3185 THz 范围分别设置扫描起点进行参数扫描(即图 7(b) 中的绿色阴影区与蓝色阴影区)。根据激光器 4 GHz 扫描带宽和 300 MHz 步长参数, 在两个特征谱区分别设置 4 GHz 宽谱扫描

范围与 0.3 GHz 采样间隔, 此时总采样点数为 29 个。

如图 7(a) 为无噪声条件下, 两个扫描区间在不同扫描起点下的甲烷反演误差绝对值。由图可知, 甲烷反演系统误差主要受双峰特征区起点位置影响, 其中当扫描起点在 182.3073~182.3079 THz 与 182.3091~182.3095 THz 两个范围内时(即图 7(a) 中两处蓝色条纹区与图 7(b) 中两处灰色阴影区), 设置环境条件 X_{CH_4} 为 1900 ppb, X_{CO_2} 为 450 ppm, $X_{\text{H}_2\text{O}}$ 为 1.7%, P 为 1 atm, T 为 297 K, 此时甲烷反演系统误差的绝对值不超过 3 ppb。因此后续模拟的扫描策略为: 双峰区以

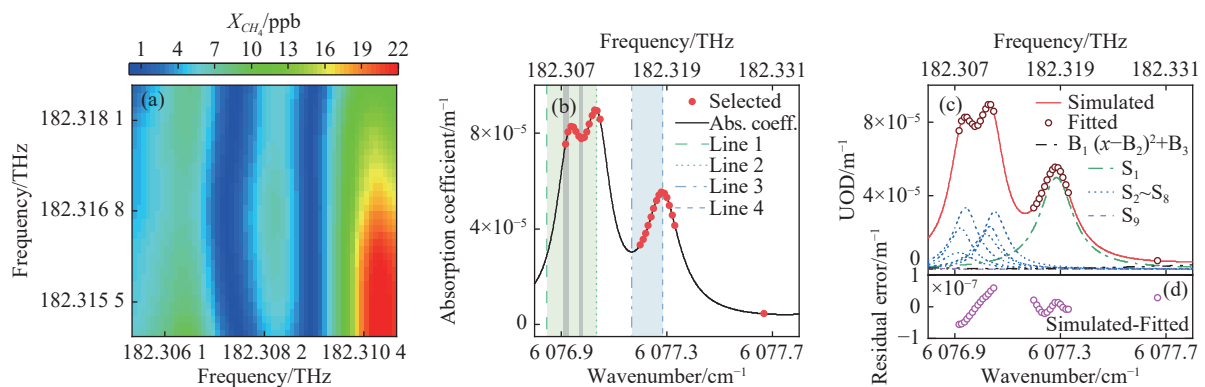


图7 (a) 两个区间分别在不同扫描起点下的甲烷反演系统误差绝对值, 扫描范围为 4 GHz, 采样间隔为 0.3 GHz; (b) 优化后的选点策略; (c) 九峰模型的拟合结果; (d) 对应的拟合残差

Fig.7 (a) The absolute values of methane inversion systematic errors in the two scan intervals at different start points, with a 4 GHz scan range and 0.3 GHz sampling interval; (b) Optimized point selection strategy; (c) Fitting results for the nine-peak model; (d) The corresponding residual error

182.3075 THz 为起点, 以 0.3 GHz 步长递增扫描; 水峰区以 182.3160 THz 为起点, 也以 0.3 GHz 步长递增扫描, 优化后选点策略如图 7(b) 所示。该选点策略有效覆盖了 CH_4 双峰结构特征, 同时完整捕获 H_2O 吸收峰。

如图 7(c)、(d) 所示为无噪声情况下的九峰模型拟合结果及残差, 由图分析表明, 九峰模型的拟合残差绝对值小于 $6 \times 10^{-8} \text{ m}^{-1}$, 约为 UOD 自身数量级的 10^{-3} 。进一步在不同的环境条件下应用九峰模型和优化后的扫描策略, 研究其系统误差, 发现对于大部分环境条件, X_{CH_4} 的系统误差小于 1 ppb; T 的系统误差小于 0.6 K; $X_{\text{H}_2\text{O}}$ 系统误差保持在 0.05% 以下。模拟结果表明, 该模型在宽泛的环境条件下均保持较高可靠性。

4 系统模拟分析

为验证模型在噪声环境中的性能, 进行了仿真研究。由于 CH_4 激光雷达系统采用单光子探测方案, 其主要噪声源包括散粒噪声 (即泊松噪声)、太阳辐射噪声和探测器暗噪声。对于太阳辐射噪声, 激光雷达工作在近红外范围, 太阳噪声最小, 窄带滤波器可以有效抑制^[18]。关于暗噪声, 目前的单光子探测技术, 如 SNSPD, 可以实现超低的系统暗计数率^[19-20]。此外, 现有技术, 如基于频率梳参照的锁频技术, 可实现激光频率优于 1 MHz 的高精度稳定性。而在扫描过程中, 激光能量的抖动及大气参数的变化等影响因素, 则可通过在每一个扫描波长下引入一个固定的 off 波长 (采用时分复用技术) 来进行修正^[19]。因此, 在仿真中, 不考虑激光频率和能量抖动所引入的误差, 而仅

考虑泊松噪声, 具体步骤如下:

步骤 1: 在 $6076.80 \sim 6077.80 \text{ cm}^{-1}$ 光谱范围内, 基于大气环境参数与气体浓度, 计算优化后的 29 个选点处吸收系数 (参考点为 6077.667 cm^{-1})。

步骤 2: 根据公式 (1) 模拟不同波数及距离 R 下的返回光子数, 并添加泊松噪声。其中, 信噪比 (SNR) 特指 6077.027 cm^{-1} 处的值。

步骤 3: 根据公式 (4) 和 (16) 计算 UOD 。

步骤 4: 使用如公式 (8) 所述的九峰洛伦兹模型对模拟的 UOD 进行非线性拟合。拟合参数 A_1 、 A_2 、 ω_{L1} 与 ω_{L2} 的初始值是基于以下环境条件计算的: X_{CH_4} 为 1900 ppb, X_{CO_2} 为 450 ppm, $X_{\text{H}_2\text{O}}$ 为 1.7%, P 为 1 atm, T 为 297 K。

步骤 5: 使用拟合参数 A_1 、 A_2 与 ω_{L2} 分别计算 $X_{\text{H}_2\text{O}}$ 、 X_{CH_4} 和 T 。

步骤 6: 步骤 5 中计算的 X_{CH_4} 、 $X_{\text{H}_2\text{O}}$ 和 T 的初始反演结果用作下一次拟合的起始值。当 X_{CH_4} 在连续三次迭代中的方差小于 10^{-9} 时, 迭代停止。

步骤 7: 在不同 SNR (从 $10^2 \sim 10^4$, 间隔为 500) 和距离 (从 1~10 km, 间隔为 1 km) 下生成后向散射信号光谱。此外, 向每个光谱添加泊松噪声以生成 100 组独立数据, 重复步骤 2~6 以获得 100 组 X_{CH_4} 、 $X_{\text{H}_2\text{O}}$ 和 T 。最后, 计算这 100 组数据的标准偏差, 并分别表示为 ΔX_{CH_4} 、 $\Delta X_{\text{H}_2\text{O}}$ 和 ΔT 。为获得 ΔX_{CH_4} 、 $\Delta X_{\text{H}_2\text{O}}$ 和 ΔT 相对于 SNR 和 R 的解析表达式, 对数据进行统计分析。结果如图 8(a) 所示, 在不同探测距离下, $\log_{10}(\Delta X_{\text{CH}_4})$ 随 $\log_{10}(\text{SNR})$ 的增大而减小, 可用线性函数拟合:

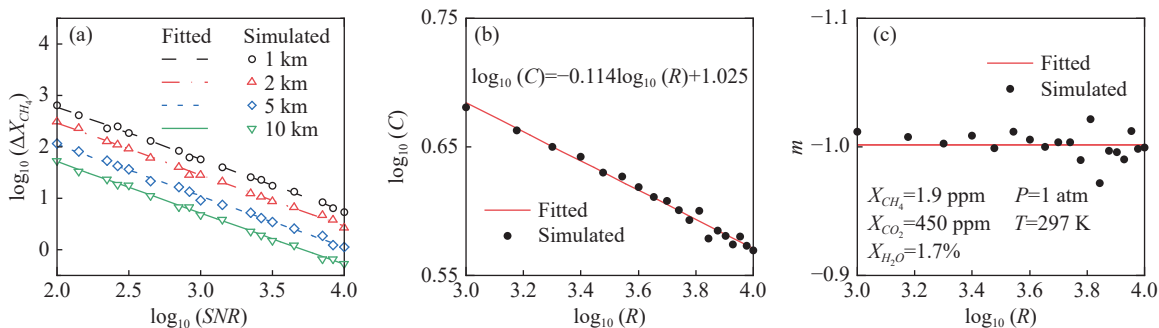


图 8 (a) 在不同距离下 $\log_{10}(\Delta X_{\text{CH}_4})$ 与 $\log_{10}(\text{SNR})$ 间的关系, 点表示模拟结果, 线表示公式 $\log_{10}(\Delta X_{\text{CH}_4}) = m \log_{10}(\text{SNR}) + C$ 拟合结果 (R^2 均大于 0.98); (b) $\log_{10}(C)$ 与 $\log_{10}(R)$ 间的关系 (R^2 为 0.986); (c) 斜率 m 与 $\log_{10}(R)$ 间的关系

Fig.8 (a) The relationship between the logarithm of X_{CH_4} , $\log_{10}(\Delta X_{\text{CH}_4})$, and the logarithm of SNR, $\log_{10}(\text{SNR})$, at different distances. Dots represent simulation results, while lines show the fitted function $\log_{10}(\Delta X_{\text{CH}_4}) = m \log_{10}(\text{SNR}) + C$ ($R^2 > 0.98$); (b) The relationship between the logarithm of the intercept, $\log_{10}(C)$, and the logarithm of R , $\log_{10}(R)$ ($R^2 = 0.986$); (c) The relationship between slope m and the logarithm of R , $\log_{10}(R)$

$\log_{10}(\Delta X_{\text{CH}_4}) = m \log_{10}(\text{SNR}) + C$, 其中 m 为线性曲线的斜率, C 为 y 截距。拟合决定系数 (R^2) 均大于 0.98。 $\log_{10}(C)$ 和 $\log_{10}(R)$ 之间的关系由图 8(b) 中的黑色数据点示出。该关系可表示为 $\log_{10}(C) = -0.114 \log_{10}(R) + 1.025$, 如图 8(b) 中红线所示。 m 与 $\log_{10}(R)$ 的关系如图 8(c) 所示。由于 m 仅在 $-0.972 \sim -1.022$ 的范围内略有变化, 因此 m 取其平均值 -1.0017 。经过分析得到了 ΔX_{CH_4} 、 $\Delta X_{\text{H}_2\text{O}}$ 和 ΔT 与 SNR 和 R 的关系, 可以表示为:

$$\begin{aligned}\Delta X_{\text{CH}_4} &= \text{SNR}^{-1.0017} \cdot 10^{R^{-0.1136} \cdot 10^{1.0254}} \\ \Delta X_{\text{H}_2\text{O}} &= \text{SNR}^{-1.0064} \cdot 10^{R^{-0.4476} \cdot 10^{1.6734}} \\ \Delta T &= \text{SNR}^{-0.9958} \cdot 10^{R^{-0.1464} \cdot 10^{0.9960}}\end{aligned}\quad (19)$$

如公式 (19) 所述的 ΔX_{CH_4} 、 $\Delta X_{\text{H}_2\text{O}}$ 和 ΔT 的分布分别在图 9(a)~(c) 中示出。当 SNR 固定时, ΔX_{CH_4} 、 $\Delta X_{\text{H}_2\text{O}}$ 和 ΔT 随着距离 R 的增加而减小。类似地, 当 R 固定时, ΔX_{CH_4} 、 $\Delta X_{\text{H}_2\text{O}}$ 和 ΔT 随着 SNR 的增加而减小。当 SNR 为 10^4 时, 距离在 1~10 km 之间, ΔX_{CH_4} 小于 7 ppb, ΔT 小于 0.5 K, $\Delta X_{\text{H}_2\text{O}}$ 小于 0.01%。

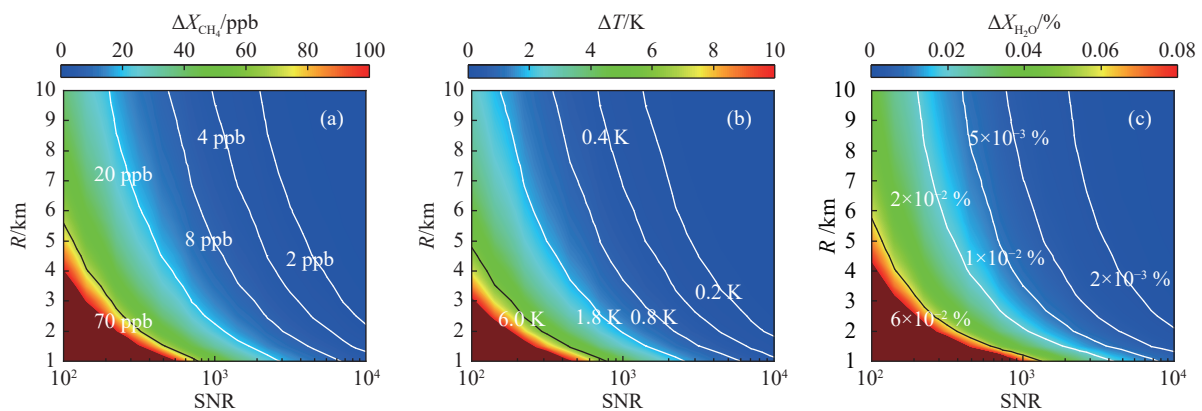


图 9 (a)~(c) ΔX_{CH_4} 、 $\Delta X_{\text{H}_2\text{O}}$ 和 ΔT 与 SNR 及 R 间的关系, 如公式 (19) 所示

Fig.9 (a)-(c) The relationship between ΔX_{CH_4} , $\Delta X_{\text{H}_2\text{O}}$, and ΔT with SNR and R , respectively, as described by Eq. (19)

5 结 论

该研究提出了一种基于吸收光谱激光雷达技术同步测量大气柱甲烷浓度、温度及水汽浓度的算法, 并通过仿真验证了其有效性。为提升系统精度, 将甲烷吸收光谱特征分解重构, 建立包含九峰洛伦兹线型与二项式背景的混合模型, 通过理论分析将拟合参数从 30 项减少至 6 项, 显著降低模型复杂度与反演误差。随后对选点策略进行优化, 使得光谱拟合精度提升显著。基于单光子探测特性, 建立了不同信噪比与吸收深度的甲烷浓度统计模型, 仿真结果表明, 在 10 km 探测距离、SNR 为 10^4 的条件下, 甲烷浓度反演误差小于 7 ppb, 温度反演误差小于 0.5 K, 水汽浓度反演误差小于 0.01%。未来将开展单光子甲烷吸收光谱激光雷达实验, 验证该方法的工程实用性, 并将测量维度从当前柱浓度拓展至距离分辨浓度剖面。最终, 该技术将为“双碳”目标下的甲烷精准监管提供新型技术手段。

参考文献:

- [1] LAN X, THONING K W, DLUGOKENCKY E J. Trends in globally-averaged CH_4 , N_2O , and SF_6 determined from NOAA Global Monitoring Laboratory measurements [R]. NOAA Global Monitoring Laboratory, 2025.
- [2] GHOSH A, PATRA P K, ISHIJIMA K, et al. Variations in global methane sources and sinks during 1910–2010 [J]. *Atmos Chem Phys*, 2015, 15(5): 2595–612.
- [3] ZHAO M, TIAN X, WANG Y, et al. Slowdown in China's methane emission growth [J]. *National Science Review*, 2024, 11(8).
- [4] JONES M W, PETERS G P, GASSER T, et al. National contributions to climate change due to historical emissions of carbon dioxide, methane, and nitrous oxide since 1850 [J]. *Scientific Data*, 2023, 10(1): 155.
- [5] KAMIENIAK J, RANDVIIR E P, BANKS C E. The latest developments in the analytical sensing of methane [J]. *TrAC Trends in Analytical Chemistry*, 2015, 73: 146–57.
- [6] STROUD J R, WAGNER G A, PLUSQUELLIC D F. Multi-

- Frequency Differential Absorption LIDAR (DIAL) system for aerosol and cloud retrievals of $\text{CO}_2/\text{H}_2\text{O}$ and $\text{CH}_4/\text{H}_2\text{O}$ [J]. *Remote Sensing*, 2023, 15(23): 5595.
- [7] RIRIS H, NUMATA K, WU S, et al. Methane optical density measurements with an integrated path differential absorption lidar from an airborne platform [J]. *J Appl Remote Sens*, 2017, 11(3).
- [8] CÉZARD N, LE MÉHAUTÉ S, LE GOUËT J, et al. Performance assessment of a coherent DIAL-Doppler fiber lidar at 1645 nm for remote sensing of methane and wind [J]. *Optics Express*, 2020, 28: 22345-22357.
- [9] AMEDIEK A, EHRET G, FIX A, et al. 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]. *Appl Opt*, 2017, 56(18): 5182-5197.
- [10] EHRET G, BOUSQUET P, PIERANGELO C, et al. MERLIN: A french-german space lidar mission dedicated to atmospheric methane [J]. *Remote Sensing*, 2017, 9(10): 1052.
- [11] MA X, SHI T, XU H, et al. On-line wavenumber optimization for a ground-based CH_4 -DIAL [J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 2019, 229: 106-119.
- [12] SHANGGUAN M, GUO X, LIN S, et al. Simultaneous column-averaged CO_2 , temperature, and H_2O measurement by absorption spectroscopy lidar: Algorithm [J]. *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, 2025, 63: 1-12.
- [13] COLLIS R T H, RUSSELL P B. Lidar Measurement of Particles and Gases by Elastic Backscattering and Differential Absorption [M]. HINKLEY E D. Berlin: Springer Berlin Heidelberg, 1976: 71-151.
- [14] INNOCENTI F, ROBINSON R, GARDINER T, et al. Differential Absorption Lidar (DIAL) measurements of landfill methane emissions [J]. *Remote Sensing*, 2017, 9(9): 953.
- [15] GORDON I E, ROTHMAN L S, HARGREAVES R J, et al. The HITRAN2020 molecular spectroscopic database [J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 2022, 277: 107949.
- [16] BÖSENBERG J. Differential-Absorption Lidar for Water Vapor and Temperature Profiling [M]. WEITKAMP C. New York: Springer, 2005: 213-239.
- [17] ZHANG B, LI J, LIU L, et al. Improving atmospheric pressure vertical correction model using Gaussian function [J]. *Geodesy and Geodynamics*, 2025, 16(1): 67-74.
- [18] SHANGGUAN M, XIA H, WANG C, et al. All-fiber upconversion high spectral resolution wind lidar using a Fabry-Perot interferometer [J]. *Opt Express*, 2016, 24(17): 19322-36.
- [19] YU S, ZHANG Z, XIA H, et al. Photon-counting distributed free-space spectroscopy [J]. *Light: Science & Applications*, 2021, 10(1): 212.
- [20] SHANGGUAN M, XIA H, WANG C, et al. Dual-frequency Doppler lidar for wind detection with a superconducting nanowire single-photon detector [J]. *Opt Lett*, 2017, 42(18): 3541-4.

Algorithm for simultaneous retrieval of methane and temperature using absorption spectroscopy lidar

LIN Simin^{1†}, YUE Bin^{2†}, GUO Xiaoya¹, FANG Jinxian¹, SHANGGUAN Mingjia^{1*}

(1. State Key Laboratory of Marine Environmental Science, College of Ocean and Earth Sciences, Xiamen University, Xiamen 361102, China;

2. Suzhou Key Laboratory of Biophotonics, School of Optical and Electronic Information, Suzhou City University, Suzhou 215104, China)

Abstract:

Objective As the second most significant greenhouse gas after carbon dioxide (CO_2), methane (CH_4) exhibits a 100-year global warming potential (GWP) 27.9 times greater than that of CO_2 . However, current methane monitoring technologies face limitations in spatiotemporal resolution and multi-parameter synchronization, hindering precise emission source identification. This study aims to advance the application of absorption spectroscopy-based spectral fitting inversion techniques for atmospheric CH_4 detection, enabling simultaneous high-precision retrieval of methane column-averaged concentration (X_{CH_4}), temperature (T), and water vapor concentration ($X_{\text{H}_2\text{O}}$). The proposed system provides critical technical support for global methane emission

monitoring and dynamic assessment of carbon neutrality progress.

Methods The retrieval of methane concentration is critically dependent on precise temperature parameters. In differential absorption lidar (DIAL), a temperature deviation of 1 K results in approximately 14 ppb of methane concentration retrieval error (Fig.3). Leveraging the absorption spectral characteristics of CH₄ at the 1645 nm band, we validated the feasibility of simultaneous temperature inversion using CH₄ absorption spectra. By optimizing the methane absorption spectral model—combining a nine-peak Lorentzian profile with a binomial background (parameters of the nine absorption peaks detailed in Tab.1)—the fitting efficiency and accuracy were significantly enhanced. The number of fitting parameters was reduced from 30 to 6 key variables. The scanning strategy was further optimized, with the refined strategy illustrated in Fig.7(a),(b). Systematic errors of the nine-peak model were analyzed under diverse environmental conditions. Subsequently, numerical simulations established analytical relationships between retrieval error standard deviations, signal-to-noise ratio (SNR), and detection distance, offering theoretical guidance for experimental design and advancing high-precision atmospheric methane detection.

Results and Discussions After optimization of the scanning strategy, the noise-free fitting results and residuals are shown in Fig.7(c),(d). Under diverse environmental conditions, the nine-peak model demonstrated robust performance, with retrieval deviations of X_{CH_4} , T , and $X_{\text{H}_2\text{O}}$ below 1 ppb, 0.6 K, and 0.05%, respectively. Backscattered signal spectra were generated under varying SNR and detection distances, with Poisson noise added to 100 independent datasets. The standard deviations of retrieved parameters were analyzed to derive analytical expressions for error distributions across optical path lengths and SNR (Fig.8). At an SNR of 10^4 , retrieval errors within 1-10 km ranged below 7 ppb for ΔX_{CH_4} , 0.5 K for ΔT , and 0.01% for $\Delta X_{\text{H}_2\text{O}}$ (Fig.9).

Conclusions This study proposes a novel absorption spectroscopy-based lidar algorithm for simultaneous retrieval of atmospheric X_{CH_4} , T , and $X_{\text{H}_2\text{O}}$, demonstrating exceptional precision and stability across diverse environmental conditions and detection distances. The breakthrough enables revolutionary advancements in high-precision atmospheric methane detection and global carbon cycle research, with significant potential for long-term climate monitoring missions. This technology serves as a pivotal tool for supporting global methane mitigation commitments and optimizing carbon neutrality strategies.

Key words: atmospheric detection; methane (CH₄) measurement; absorption spectroscopy lidar; temperature detection

Funding projects: Innovation Program for Quantum Science and Technology (2021ZD0303102)