

Theoretical Derivation and Experimental Research of Harmonic Signals Based on TDLAS*

Lu Che, Yanjun Ding, Zhimin Peng

State Key Laboratory of Control and Simulation of Power System and Generation Equipment, Department of Thermal Engineering, Tsinghua University, Beijing
Email: chelu06@163.com, dyj@tsinghua.edu.cn, aspect@126.com

Received: May 15th, 2012; revised: May 23rd, 2012; accepted: Jun. 1st, 2012

Abstract: In this paper, we derived the expression for the instantaneous intensity based on numerical simulation and practical experiments in tunable diode laser absorption spectroscopy, and determined the new expression of the harmonic signals in wavelength modulation spectroscopy, then we analyzed the influence to the harmonic signals caused by the phase shifts between the detected and reference signals. The transition of CO₂ at 6527.64 cm⁻¹ was selected for the practical experiments, and the experimental results indicated that, the amplitude of laser intensity modulation was invariant during the scanning process, which did not change with the average scanning laser intensity. What's more, the amplitude and phase of the harmonic signals were influenced by the phase shifts between the detected and reference signals, which cannot be ignored in gas concentration and temperature measurements.

Keywords: Tunable Diode Laser Absorption Spectroscopy (TDLAS); Wavelength Modulation Spectroscopy (WMS); Harmonic Signals

TDLAS 技术中谐波信号的理论推导与实验研究*

车 璐, 丁艳军, 彭志敏

清华大学热能工程系, 电力系统与发电设备控制与仿真国家重点实验室, 北京
Email: chelu06@163.com, dyj@tsinghua.edu.cn, aspect@126.com

收稿日期: 2012年5月15日; 修回日期: 2012年5月23日; 录用日期: 2012年6月1日

摘 要: 本文对可调谐二极管激光吸收光谱技术中的激光瞬时光强进行了数值模拟和物理实验验证, 确定了波长调制法中激光瞬时光强的准确表达式, 并由此推导出全新的谐波信号通项表达式, 分析了被检信号与参考信号间的相位差对谐波信号的影响。在实验室条件下利用 CO₂ 分子位于 6527.64 cm⁻¹ 的吸收谱线进行了测量实验。测量结果表明, 激光瞬时光强的调制幅度在扫描过程中固定, 不随扫描平均光强而变化; 被检信号与参考信号间的相位差会对谐波信号的幅值和相位产生影响, 在气体浓度和温度测量中不可忽略。

关键词: 可调谐二极管激光吸收光谱技术(TDLAS); 波长调制法(WMS); 谐波信号

1. 引言

随着全球对环境保护、能源高效利用以及工业生产安全的日益重视, 可调谐二极管激光吸收光谱技术(Tunable diode laser absorption spectroscopy, TDLAS)

得到了迅速地发展^[1-6]。尤其是上世纪八十年代以来, 科研工作者将波长调制法(Wavelength modulation spectroscopy, WMS)引入到 TDLAS 测量系统中^[7], 通过谐波检测手段极大地提高了 TDLAS 的测量精度和灵敏度^[8], 实现了多种环境下气体温度和浓度的在线测量^[9-11]。

*资助信息: 本课题由国家自然科学基金(51176085)和中国博士后科学基金(51176085)资助。

WMS 法在测量中采用高频正弦信号对激光器进行调制,使得激光输出频率和强度同时受到调制。我们在研究中发现,目前科研工作者描述激光强度的公式认为强度调制幅度随着平均光强而变化^[12,13]。然而在实际测量中,强度调制幅度并不随着平均光强的变化而变化^[14]。与此同时,基于上述光强表达式推导出的一次和二次谐波表达式与真实值存在一定的差异,进而引起气体温度和浓度的测量误差。另一方面,我们在利用谐波信号重构气体吸收率函数的研究中发现,被检信号与参考信号间的相位差会对谐波信号产生很大影响^[15],而在以往研究中,科研工作者往往忽略该相位差的影响而直接将该相位差设为零。

为此,本文首先通过数值模拟和物理实验分析给出了激光器输出光强的准确表达式,并在此基础上通过谐波理论和锁相放大器工作原理重新推导出更具有通用性的各次谐波信号表达式,分析了被检信号与参考信号之间相位差对谐波信号的影响。然后选取 CO₂ 分子位于 6527.64 cm⁻¹ 的吸收谱线,在实验室条件下利用锁相放大器采集了目前科研工作者常用的二次谐波信号,并对其进行了详细地分析和讨论。

2. 谐波通项表达式推导

在 TDLAS 技术中,WMS 法首先将激光器通过低频电流调制,使其以低频扫描特征吸收谱线,然后再注入一个高频正弦调制信号(角频率为 ω),激光器在频率调制的同时受到强度调制,而在目前研究中,科研工作者采用下式描述激光器的瞬时光强:

$$I_0(t) = I_0 [1 + i_1 \cos(\omega t + \psi_1) + i_2 \cos(2\omega t + \psi_2)] \quad (1)$$

式中, I_0 为激光平均光强, i_1 为光强线性调制幅度系数; i_2 为光强第一项非线性调制幅度系数, ψ_1 和 ψ_2 分别为线性和非线性强度调制与频率调制之间的相位差。

根据公式(1)可以通过数值模拟给出激光瞬时光强随时间的变化关系如图 1(a)所示。数值模拟过程中扫描频率为 40 Hz,调制频率为 5.0 kHz,平均光强由 125 mV 线性变化到 250 mV,调制幅度系数 i_1 和 i_2 分别为 0.1 和 0.01,且假设 $\psi_1 = \psi_2 = \pi$ 。在图 1(a)中,激光强度调制幅度随着扫描时平均光强的增大而增大,瞬时光强呈发散状。但是在实际测量中,可调谐激光器的频率调制幅度与光强调制幅度一般呈线性关系,

在同一次测量实验中频率调制幅度不变,强度调制幅度亦为定值,图 1(b)为实验测量得到的激光强度随时间的变化关系,其调制幅度在扫描过程中不随平均光强变化。因此用公式(1)描述激光器瞬时光强并不准确,在实际测量中应采用下式进行描述:

$$I_0(t) = I_0 + \Delta I_1 \cos(\omega t + \psi_1) + \Delta I_2 \cos(2\omega t + \psi_2) \quad (2)$$

式中, ΔI_1 和 ΔI_2 分别为激光光强的线性调制幅度和第一项非线性调制幅度,在同一次实验中取值固定,不随扫描激光平均光强变化而变化。

基于公式(2)给出的激光瞬时光强表达式,下文根据吸收光谱理论、谐波理论和锁相放大器工作原理重新推导出各次谐波尤其是一次和二次谐波的表达式。在 TDLAS 技术中,当一束频率为 ν 的激光穿过长度为 L 的气体介质时,其透射激光和入射激光之间满足 Beer-Lambert 定律:

$$\tau(\nu) = \frac{I_t(t)}{I_0(t)} = \exp[-PS(T)\phi(\nu)XL] = \sum_{k=0}^{\infty} A_k \cos(k\omega t) \quad (3)$$

式中, $\tau(\nu)$ 为激光透过率; $I_0(t)$ 和 $I_t(t)$ 分别表示有气体和无气体吸收时的激光光强; $P[\text{atm}]$ 为气体总压;

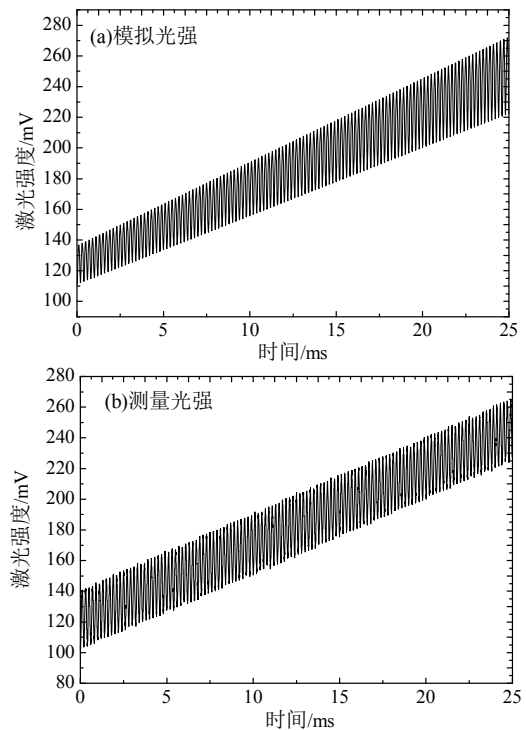


Figure 1. The instantaneous intensity of the diode laser
图 1. 激光器瞬时光强

$S(T)[\text{cm}^{-2}\cdot\text{atm}^{-1}]$ 为吸收谱线的线强度, 只与气体温度 T 有关; X 为待测气体浓度; $L[\text{cm}]$ 为激光传输距离; $\varphi(v)[\text{cm}]$ 为吸收线型函数; A_k 为激光透过率的 k 次傅里叶系数, 其表达式如式(4)所示, 式中令 $\xi = PS(T)L$ 。

$$\begin{cases} A_0 = \frac{1}{2\pi} \int_{-\pi}^{\pi} \exp[-\xi X \varphi(v)] \cdot d\theta \\ A_k = \frac{1}{\pi} \int_{-\pi}^{\pi} \exp[-\xi X \varphi(v)] \cdot \cos k\theta \cdot d\theta \end{cases} \quad (4)$$

将公式(2)中的激光瞬时强度代入式(3)中并对其进行运算, 可得到透射激光的瞬时强度如下:

$$I_t = F_{00} + \sum_{k=1}^{\infty} [F_{k1} \cdot \cos(k\omega t) + F_{k2} \cdot \sin(k\omega t)] \quad (5)$$

式中, 系数 F_{00} 、 F_{11} 、 F_{12} 、 F_{21} 、 F_{22} 、 F_{k1} 、 F_{k2} 表述如下:

$$\begin{cases} F_{00} = I_0 A_0 + \frac{\Delta I_1}{2} A_1 \cos \psi_1 + \frac{\Delta I_2}{2} A_2 \cos \psi_2 \\ F_{11} = I_0 A_1 + \Delta I_1 \left(A_0 + \frac{A_2}{2} \right) \cos \psi_1 \\ \quad + \frac{\Delta I_2}{2} (A_1 + A_3) \cos \psi_2 \\ F_{12} = \Delta I_1 \left(-A_0 + \frac{A_2}{2} \right) \sin \psi_1 \\ \quad + \frac{\Delta I_2}{2} (-A_1 + A_3) \sin \psi_2 \\ F_{21} = I_0 A_2 + \frac{\Delta I_1}{2} (A_1 + A_3) \cos \psi_1 \\ \quad + \Delta I_2 \left(A_0 + \frac{A_4}{2} \right) \cos \psi_2 \\ F_{22} = \frac{\Delta I_1}{2} (-A_1 + A_3) \sin \psi_1 \\ \quad + \Delta I_2 \left(-A_0 + \frac{A_4}{2} \right) \sin \psi_2 \\ F_{k1} = I_0 A_k + \frac{\Delta I_1}{2} (A_{k-1} + A_{k+1}) \cos \psi_1 \\ \quad + \frac{\Delta I_2}{2} (A_{k-2} + A_{k+2}) \cos \psi_2 \\ F_{k2} = \frac{\Delta I_1}{2} (-A_{k-1} + A_{k+1}) \sin \psi_1 \\ \quad + \frac{\Delta I_2}{2} (-A_{k-2} + A_{k+2}) \sin \psi_2, \quad k = 3, 4, \dots \end{cases} \quad (6)$$

在实际测量过程中, 一般采用锁相放大器计算和采集各次谐波信号。锁相放大器将自身输出的参考信号与被测信号相乘后再通过低通滤波器即可得到谐

波信号。锁相放大器的 k 次参考信号如下:

$$\begin{cases} X \text{轴}: V_{ref-k} = R_k \cos(k\omega t + \theta_k) \\ Y \text{轴}: V_{ref-k} = R_k \sin(k\omega t + \theta_k) \end{cases} \quad (7)$$

式中: R_k 、 θ_k 分别为 k 次参考信号的幅值和相位。

根据锁相放大器的工作原理, 即可推导得出各次谐波信号的表达式, 下面以一次谐波信号为例。

在 X 轴上, 信号如下:

$$\begin{aligned} V_{X-1} = V_{ref-1} \cdot V_{sig-1} &= \frac{R_1 F_{11}}{2} \cos \theta_1 - \frac{R_1 F_{12}}{2} \sin \theta_1 \\ &+ \frac{R_1 F_{11}}{2} \cos(2\omega t + \theta_1) + \frac{R_1 F_{12}}{2} \sin(2\omega t + \theta_1) \end{aligned} \quad (8)$$

在 Y 轴上, 信号如下:

$$\begin{aligned} V_{Y-1} = V_{ref-1} \cdot V_{sig-1} &= \frac{R_1 F_{11}}{2} \sin \theta_1 + \frac{R_1 F_{12}}{2} \cos \theta_1 \\ &+ \frac{R_1 F_{11}}{2} \sin(2\omega t + \theta_1) - \frac{R_1 F_{12}}{2} \cos(2\omega t + \theta_1) \end{aligned} \quad (9)$$

将 X 轴和 Y 轴的信号分别通过低通滤波器后, 高频信号被过滤掉, 最终采集到的一次谐波信号如下, 其中 G 为系统的光电放大系数:

$$\begin{cases} X_1 = \frac{GR_1 F_{11}}{2} \cos \theta_1 - \frac{GR_1 F_{12}}{2} \sin \theta_1 \\ Y_1 = \frac{GR_1 F_{11}}{2} \sin \theta_1 + \frac{GR_1 F_{12}}{2} \cos \theta_1 \end{cases} \quad (10)$$

同理, 可推导出经过锁相放大器后采集到的二次谐波信号如下:

$$\begin{cases} X_2 = \frac{GR_2 F_{21}}{2} \cos \theta_2 - \frac{GR_2 F_{22}}{2} \sin \theta_2 \\ Y_2 = \frac{GR_2 F_{21}}{2} \sin \theta_2 + \frac{GR_2 F_{22}}{2} \cos \theta_2 \end{cases} \quad (11)$$

经过锁相放大器采集到的 $k(k \geq 3)$ 次谐波信号如下:

$$\begin{cases} X_k = \frac{GR_k F_{k1}}{2} \cos \theta_k - \frac{GR_k F_{k2}}{2} \sin \theta_k \\ Y_k = \frac{GR_k F_{k1}}{2} \sin \theta_k + \frac{GR_k F_{k2}}{2} \cos \theta_k \end{cases} \quad (12)$$

由公式(10)~(12)可知, 谐波信号的 X 轴和 Y 轴信号随着输入信号与参考信号之间的相位差 θ_k 而变化。 θ_k 的大小由测量系统的响应时间决定, 且与参考信号的频率有关, 可在 $[0, 2\pi]$ 内取任意值。图 2 以二次谐波为例, 给出了其 X 轴和 Y 轴信号随相位差 θ_2 的变化。

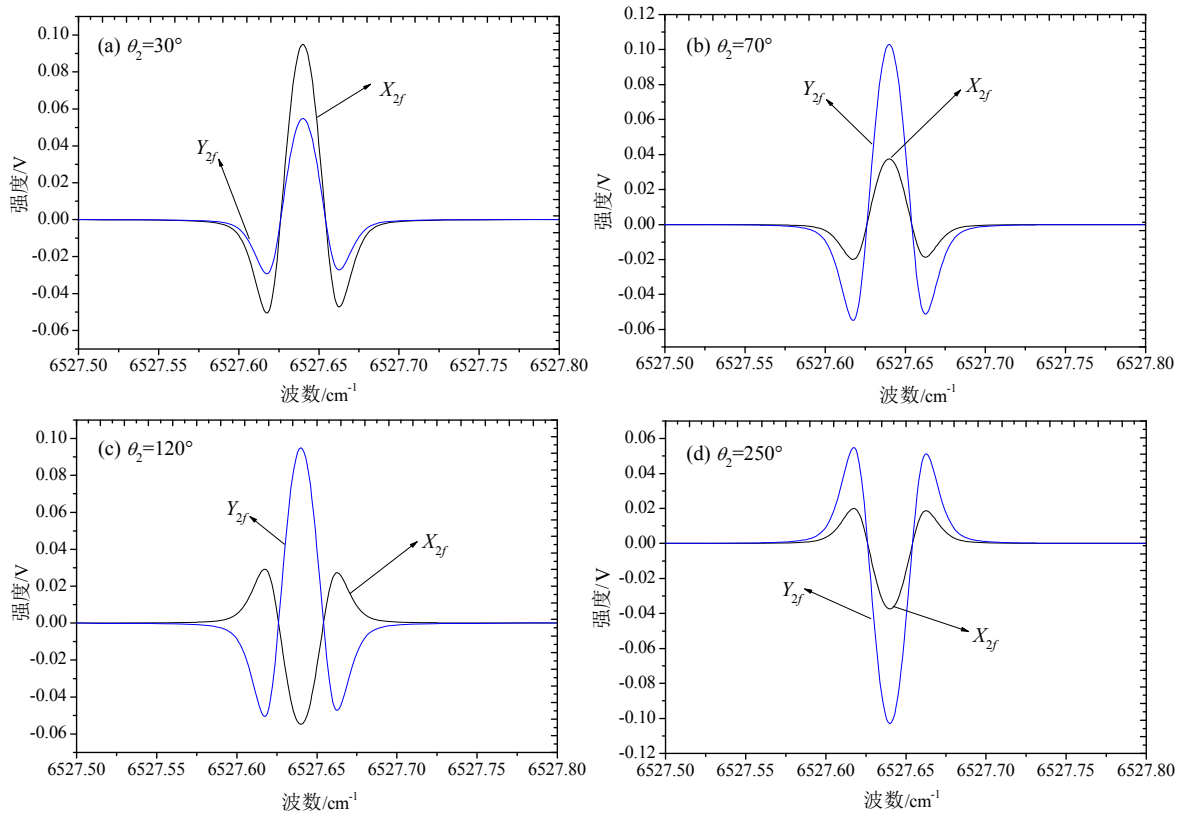


Figure 2. The X and Y components of the second harmonic signal in simulation
图 2. 仿真二次谐波的 X 轴和 Y 轴信号

在图 2 中，随着 θ_2 在 $[0, 2\pi]$ 内变化，二次谐波的 X 轴及 Y 轴信号的幅值及相位均发生了很大变化。而在以往研究中，科研工作者忽略了该相位差对谐波信号的影响，而直接将该相位差设为零，推导出的谐波信号只是实际测量中的特例情况，不具有通用性。

3. 实验验证

为了验证上述谐波表达式在实际测量中具有通用性，并分析被检信号与参考信号之间的相位差对谐波信号的影响；本节以 CO_2/N_2 混合气体为例，选取 CO_2 位于 6527.64 cm^{-1} 的吸收谱线进行测量实验，实验中利用锁相放大器采集目前被科研工作者广泛采用的二次谐波信号。

图 3 给出了 TDLAS 测量系统的装置示意图。实验中采用的 DFB 激光器的中心波长为 1531 nm ，其电流和温度由型号为 ITC4001 的激光控制器调节与控制，并由干涉仪监测其输出波长。经光纤准直器准直后的激光输入长度为 120 cm 的气室，透过气室的激光由光电探测器(PDA 50B-EC)接收后分为两路，一路

输入示波器(DPO 7014B)采集原始激光信号，一路输入锁相放大器(SR830)采集谐波信号。气室内的温度和压力分别由温度传感器和压力传感器测量，待测气体的浓度由质量流量计控制。实验中选取 CO_2 位于 6527.64 cm^{-1} 处的吸收谱线，对 CO_2/N_2 混合气中的 CO_2 吸收信号进行了测量，其光谱参数如表 1 所示。

图 4 给出了有 CO_2 吸收时，由锁相放大器分析计算得到的二次谐波信号，其中红色实线为 X 轴信号，黑色实线为 Y 轴信号。实验中 CO_2 配比浓度为 70.0% ，气体总压 $P = 1.013 \times 10^4 \text{ Pa}$ (0.1 atm)，峰值吸收率约为 4.26% 。由图 4(a)~(d)可知，在测量过程中，当被检信号与参考信号间的相位差 θ_2 发生变化时，二次谐波 X 轴及 Y 轴信号发生明显的变化，这也证明了公式(11)的正确性。由于锁相放大器不具备自动测量被检信号与参考信号间相位差的功能，目前在强吸收条件下，科研工作者一般通过调节参考信号的相位，并通过观测相关实验现象(如二次谐波 Y 轴信号为零)使得被检信号与参考信号间的相位差约等于零。但一次谐波无法通过同样的实验现象将相位差 θ_1 调节到零。更为

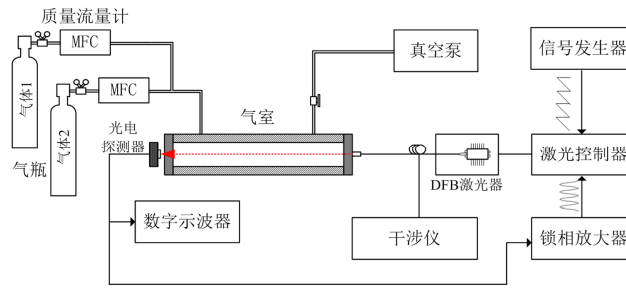


Figure 3. The experimental setup of the TDLAS measurements
图 3. 实验装置图

Table 1. Spectroscopic parameters of the selected CO₂ transition
表 1. CO₂ 位于 6527.64 cm⁻¹ 处吸收谱线光谱参数 (296 K)

中心波长 nm	中心频率 cm ⁻¹	线强度 cm ⁻² /atm	自身加宽系数 cm ⁻¹ /atm	空气加宽系数 cm ⁻¹ /atm
1531.95	6527.64	1.65 × 10 ⁻⁵	0.0880	0.0687

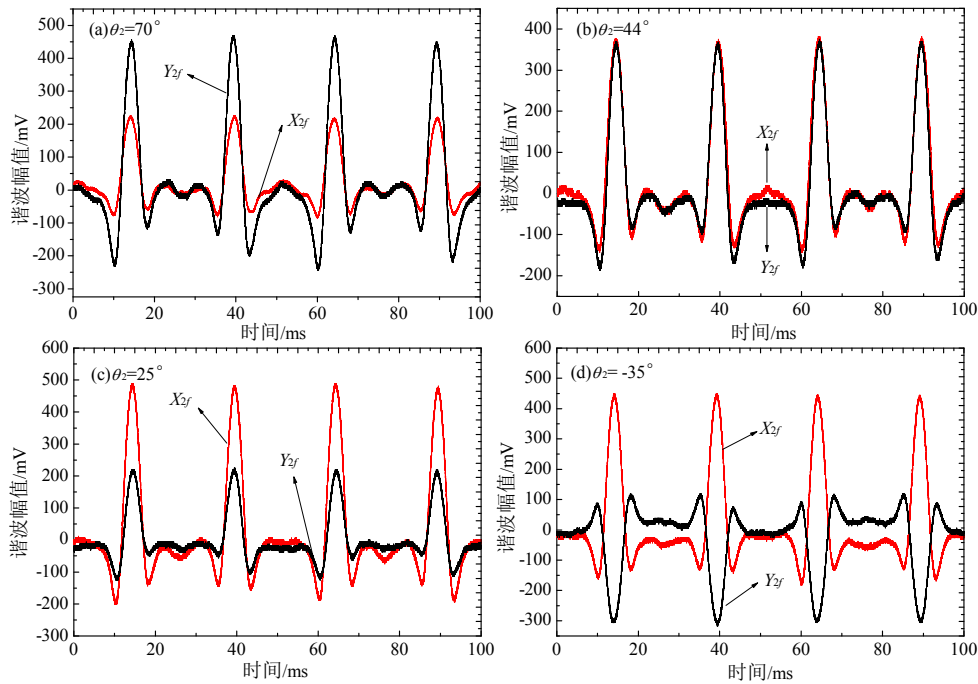


Figure 4. The measured X and Y components of the second harmonic signal
图 4. 实测二次谐波的 X 轴和 Y 轴信号

困难的是，在弱吸收条件下，由于激光器非线性调制幅度 ΔI_2 对二次谐波产生了附加项，实验中无法通过上述实验现象确定 θ_2 是否为零。因此，在实验中测量被检信号和参考信号之间的相位差有着重要的应用价值，例如在利用谐波信号重构气体吸收率函数时，必须精确测量该相位差^[15]。

4. 结论

本文通过仿真模拟和物理实验，给出了可调谐激

光器瞬时光强的准确描述公式，并基于此推导出了各次谐波 X 轴和 Y 轴信号的通项表达式，分析了被检信号与参考信号之间的相位差对谐波信号的影响。然后，选取 CO₂ 分子 6527.64 cm⁻¹ 处的吸收谱线，在实验室条件下通过锁相放大器采集了二次谐波信号并对其进行分析。上述仿真和实验结果表明，在 WMS 测量中，激光强度调制幅度并不随着平均光强的变化而变化，而本文推导出的谐波表达式更具有通用性，为后续气体浓度和温度的测量奠定了基础。

5. 致谢

本课题由国家自然科学基金(51176085)和中国博士后科学基金(51176085)资助完成, 特此致谢。

参考文献 (References)

- [1] S. Wagner, B. T. Fisher, J. W. Fleming, et al. TDLAS-based *in situ* measurement of absolute acetylene concentrations in laminar 2D diffusion flames. *Proceedings of the Combustion Institute*, 2009, 32(1): 839-846.
- [2] A. Farooq, J. B. Jeffries and R. K. Hanson. CO₂ concentration and temperature sensor for combustion gases using diode-laser absorption near 2.7 μm . *Applied Physics B*, 2008, 90(3-4): 619-628.
- [3] J. T. C. Liu, J. B. Jeffries and R. K. Hanson. Wavelength modulation absorption spectroscopy with 2f detection using multiplexed diode lasers for rapid temperature measurements in gaseous flows. *Applied Physics B*, 2004, 78: 503-511.
- [4] H. Li, G. B. Rieker, X. Liu, et al. Extension of wavelength-modulation spectroscopy to large modulation depth for diode laser absorption measurements in high-pressure gases. *Applied Optics*, 2006, 45(5): 1052-1061.
- [5] 陈东, 刘文清, 阚瑞峰等. 基于可调谐半导体激光吸收光谱的瓦斯监测方法研究[J]. *光学技术*, 2006, 32(4): 598-603.
- [6] 阚瑞峰, 刘文清, 张玉钧等. 基于可调谐激光吸收光谱的大气甲烷监测仪[J]. *光学学报*, 2006, 26(1): 67-70.
- [7] J. Reid, D. Labrie. Second harmonic detection with tunable diode lasers-comparison of experiment and theory. *Applied Physics B*, 1981, 26: 203-210.
- [8] T. D. Cai, H. Jia, G. S. Wang, et al. A sensor for measurements of temperature and water concentration using a single tunable diode laser near 1.4 μm . *Sensors and Actuators A*, 2009, 152(1): 5-12.
- [9] 王健, 黄伟, 顾海涛等. 可调谐二极管激光吸收光谱法测量气体温度[J]. *光学学报*, 2007, 27(9): 1639-1646.
- [10] A. Farooq, J. B. Jeffries and R. K. Hanson. Sensitive detection of temperature behind reflected shock waves using wavelength modulation spectroscopy of CO₂ near 2.7 μm . *Applied Physics B*, 2009, 96: 161-173.
- [11] G. B. Rieker, J. B. Jeffries, R. K. Hanson, et al. Diode laser-based detection of combustor instabilities with application to a scramjet engine. *Proceedings of the Combustion Institute*, 2009, 32(2): 831-838.
- [12] G. B. Rieker, J. B. Jeffries and R. K. Hanson. Calibration-free wavelength modulation spectroscopy for measurements of gas temperature and concentration in harsh environments. *Applied Optics*, 2009, 48(29): 5546-5560.
- [13] F. Wang, K. F. Cen, N. Li, et al. Simultaneous measurement on gas concentration and particle mass concentration by tunable diode laser. *Flow Measurement and Instrumentation*, 2010, 21(3): 382-387.
- [14] L. Che, Y. J. Ding and Z. M. Peng. Research on the influences of temperature, concentration and pressure uncertainties on measurement results of wavelength modulation spectroscopy. *Chinese Physics Letters*, 2012, 29(6): Article ID: 067801.
- [15] Z. M. Peng, Y. J. Ding, L. Che, et al. Odd harmonics with wavelength modulation spectroscopy for recovering gas absorbance shape. *Optics Express*, 2012, 20(11): 11976-11985.