

基于波长调制光谱技术的线宽测量理论及其应用研究

张书锋 蓝丽娟 丁艳军 贾军伟 彭志敏

Theoretical and applied researches on measuring line width in wavelength modulation spectroscopy

Zhang Shu-Feng Lan Li-Juan Ding Yan-Jun Jia Jun-Wei Peng Zhi-Min

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 64, 053301 (2015) DOI: 10.7498/aps.64.053301

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.053301>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2015/V64/I5>

---

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

互注入垂直腔表面发射激光器的多次偏振转换特性研究

Multiple polarization switching in mutually coupled vertical-cavity surface emitting lasers

物理学报.2015, 64(2): 024208 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.024208>

可调谐二极管激光吸收光谱测量真空环境下气体温度的理论与实验研究

Theoretical and experimental study of measuring gas temperature in vacuum environment using tunable diode laser absorption spectroscopy

物理学报.2014, 63(8): 083301 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.083301>

基于可调谐半导体激光吸收光谱的酒精蒸汽检测方法

Ethanol vapor measurement based on tunable diode laser absorption spectroscopy

物理学报.2014, 63(4): 043301 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.043301>

低温下氘分子红外吸收特性研究

Infrared absorption of deuterium molecules at low temperature

物理学报.2014, 63(2): 023301 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.023301>

近三相点温度低温固体氘的红外吸收谱

Infrared absorption spectrum of solid deuterium at near-triple point temperature

物理学报.2013, 62(16): 163301 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.163301>

# 基于波长调制光谱技术的线宽测量理论 及其应用研究\*

张书锋<sup>1) #</sup> 蓝丽娟<sup>2) #</sup> 丁艳军<sup>2)</sup> 贾军伟<sup>1)</sup> 彭志敏<sup>2) †</sup>

1) (北京东方计量测试研究所, 北京 100086)

2) (清华大学热能工程系, 北京 100084)

(2014年9月3日收到; 2014年10月10日收到修改稿)

气体吸收谱线的线宽主要包括碰撞作用引起的洛伦兹线宽和分子热运动引起的高斯线宽, 是可调谐二极管激光吸收光谱技术 (TDLAS) 的重要参数. 本研究在弱吸收条件下, 通过对波长调制法中二次与四次谐波峰值比进行理论分析和仿真计算, 发现无论洛伦兹和高斯线宽如何变化, 二次和四次谐波峰值比具有恒过不动点的特征. 本文基于该不动点提出了一种线宽在线测量的方法, 并以  $\text{CO}_2$  分子  $6982.0678 \text{ cm}^{-1}$  吸收谱线为例进行实验验证. 实验结果表明, 该方法可以精确测量线宽, 进而根据测量得到的线宽确定气体分压和总压, 可有效地提高 TDLAS 技术在工业现场中的测量精度.

**关键词:** 可调谐二极管激光吸收光谱 (TDLAS), 波长调制光谱 (WMS), 线宽, 气体分压

**PACS:** 33.20.Ea, 42.55.Px, 42.65.-k

**DOI:** 10.7498/aps.64.053301

## 1 引言

可调谐二极管激光吸收光谱 (tunable diode laser absorption spectroscopy, TDLAS) 由于其非接触式在线测量、选择性强、灵敏度高、响应速度快等优点<sup>[1-5]</sup>, 在近年得到了迅速地发展, 尤其是上世纪80年代以来, Reid等将波长调制光谱 (wavelength modulation spectroscopy, WMS) 引入到 TDLAS 测量系统中<sup>[6]</sup>, 有效地降低了背景信号干扰, 实现了多种环境下气体参数的精确测量.

谱线在频率坐标上具有一定展宽, 根据展宽机理是否由群体效应引起可分为均匀展宽和非均匀展宽, 其中主要包括碰撞作用引起的洛伦兹 (Lorentz) 线宽和分子热运动引起的高斯 (Gauss) 线宽, 根据线宽可确定气体温度、压强、组分浓度和光谱常数等参数. TDLAS 技术中的直接吸收法可比较准确地测量线宽, 进而根据其得到待测气体参

数, 但该方法在实际测量中容易受到颗粒物浓度、激光强度波动、基线拟合精度等因素的影响, 在工业现场存在测量误差较大的缺点. 波长调制光谱是对目标信号进行高频调制, 而非目标信号由于没有经过调制在后续的谐波检测过程中被除去, 因此可以有效地抑制测量系统中背景信号的干扰, 提高测量精度和灵敏度. 但问题在于, 波长调制光谱所采用的谐波信号是线宽的函数, 如传统的二次谐波法首先标定出气体浓度与二次谐波峰值之间的关系, 然后将测量得到的二次谐波信号在标定曲线上插值得到待测气体浓度, 但标定实验不仅增加了测量系统的复杂性, 而且标定实验与实际测量条件不同使得线宽存在差异, 进而造成浓度测量误差. 近几年来, Hanson等基于剩余幅度调制提出了  $2f/1f$  免标法<sup>[7,8]</sup>, 该方法采用一次谐波信号修正二次谐波, 不仅消除了激光强度波动、光电放大系数等因素的影响, 并在弱吸收条件下推导出了计算气体分压绝对值的表达式. 但与传统的二次谐波法相似,

\* 国家自然科学基金 (批准号: 51206086, 51176085) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: [apspect@mail.tsinghua.edu.cn](mailto:apspect@mail.tsinghua.edu.cn)

# 共同第一作者.

2f/1f 免标法计算气体分压时也需要已知线宽, 但线宽又决定于气体的温度、压强、组分浓度和光谱常数等参数, 而这些参数在实际测量中往往是未知的或待测量的, 因此该方法在应用中也受到了一定的限制<sup>[9]</sup>.

考虑到线宽的重要性, 国内外科研工作者围绕波长调制光谱测量线宽进行了多方面的研究, 如 Stewart 等<sup>[10-12]</sup>通过分析一次谐波剩余幅度调制信号, 得到当调制系数  $m$  较小 (小于  $< 0.5$ ) 时, 利用一次谐波可拟合出吸收线型函数, 进而得到线宽, 但其拟合误差随着调制系数的增大而急剧增大. 在 Stewart 思想启发下, 我们利用奇数次谐波信号重构出吸收线型函数<sup>[13]</sup>, 从理论上消除了调制系数的影响. 但是在实际测量中, 尤其是弱吸收条件下, 高次谐波的信噪比较低, 测量误差较大. 另外, 与直接吸收法相似, 上述方法都需要扫描整条吸收谱线, 因此容易受激光强度波动、颗粒物浓度等因素的影响, 难以适用于恶劣工况环境.

从以上研究可以发现, 波长调制光谱中各次谐波包含着线宽的信息. 本文通过数值模拟分析二次与四次谐波的峰值比, 发现无论洛伦兹和高斯线宽如何变化, 其峰值比恒过不动点, 本文基于该特征提出了一种线宽在线测量方法, 并以 CO<sub>2</sub> 分子 6982.0678 cm<sup>-1</sup> 吸收谱线为例进行实验验证.

## 2 测量原理

### 2.1 线宽不确定性对测量结果的影响分析

当一束频率为  $\nu$  的激光穿过长为  $L$  的气体介质时, 被气体吸收后的透射光强  $I_t$  与入射光强  $I_0$  之间满足 Beer-Lambert 定律:

$$\tau(\nu) = I_t/I_0 = \exp[-K\varphi(\nu)]. \quad (1)$$

式中,  $\tau(\nu)$  为激光透过率;  $K = P_i S(T)L$ ,  $P_i$  为气体分压,  $S(T)$  为谱线强度;  $\varphi(\nu)$  为线型函数, 为洛伦兹和高斯线型函数的卷积, 采用福伊特 (Voigt) 线型函数描述, 其近似表达式如下<sup>[14]</sup>:

$$\varphi(\nu) = \frac{c_L}{\pi} \frac{\gamma}{(\nu - \nu_0)^2 + \gamma^2} + \frac{c_G}{\gamma} \left( \frac{\ln 2}{\pi} \right)^{1/2} \times \exp \left[ -\frac{\ln 2 \cdot (\nu - \nu_0)^2}{\gamma^2} \right], \quad (2)$$

式中  $\nu_0$  为谱线中心频率,  $c_L$  和  $c_G$  分别为洛伦兹和高斯线宽 (记为  $\gamma_L$  和  $\gamma_G$ ) 的权重系数, 计算公式见

参考文献<sup>[14]</sup>,  $\gamma$  为线宽, 其计算公式为<sup>[15]</sup>

$$\gamma = 0.5346\gamma_L + \sqrt{0.2166\gamma_L^2 + \gamma_G^2}. \quad (3)$$

波长调制光谱是对激光器注入一个高频正弦信号, 根据锁相原理可推导出各次谐波信号的表达式. 在弱吸收条件下, 2f/1f 免标法计算气体分压的表达式如下<sup>[16]</sup>:

$$P_i = -\frac{S_{2f}}{S_{1f}} \frac{i_1}{S(T)LH_2}, \quad (4)$$

式中,  $S_{1f}$  和  $S_{2f}$  为测量得到的谱线中心频率处一次和二次谐波信号,  $i_1$  是激光光强的线性调制幅度与平均光强之比, 可通过实验测量得到,  $H_2$  为线型函数的傅里叶系数, 其表达式如下:

$$H_2 = \frac{1}{\pi} \int_{-\pi}^{\pi} \varphi(\nu_0 + a \cos \theta) \cdot \cos 2\theta \cdot d\theta, \quad (5)$$

式中,  $\theta \in [-\pi, \pi]$ , 是积分变量;  $a$  为调制幅度, 在实验中为已知量, 定义调制系数  $m = a/\gamma$ . 由 (2) 和 (5) 式可知, 线宽  $\gamma$  是计算  $H_2$  的重要参数, 图 1 给出了  $\gamma$  存在误差时  $H_2$  与真实值之间的偏差. 从图 1 可以看出,  $H_2$  的计算误差随着线宽不确定性的增大而增大, 如线宽不确定度为  $\pm 10\%$  时,  $H_2$  的误差均超过  $10\%$ , 这也说明精确确定线宽对测量气体参数具有重要意义.

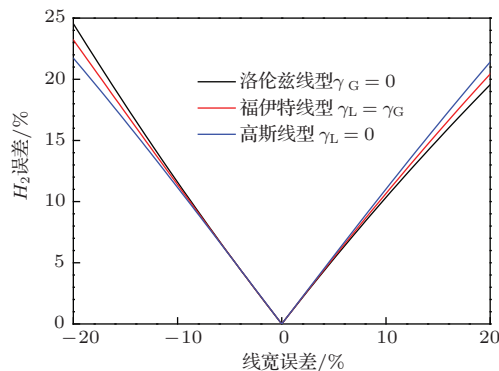


图 1 (网刊彩色) 线宽不确定性对 H<sub>2</sub> 计算结果的影响

本文在 2f/1f 免标法测量气体参数思想的启发下, 分析了谱线中心频率处二次与四次谐波比值与调制系数的关系, 提出了一种基于波长调制光谱的线宽在线测量方法, 并将其应用于气体分压的测量.

### 2.2 R<sub>24</sub> 法测量线宽的理论研究

在弱吸收条件下 ( $\alpha(\nu_0) \leq 10\%$ ), 谱线中心频率处二次与四次谐波峰值比  $R_{24}$  如下式<sup>[17]</sup>:

$$R_{24} = -\frac{H_2(v_0, a)}{H_4(v_0, a)} = -\frac{\int_{-\pi}^{\pi} \varphi(v_0 + a \cos \theta) \cdot \cos 2\theta \cdot d\theta}{\int_{-\pi}^{\pi} \varphi(v_0 + a \cos \theta) \cdot \cos 4\theta \cdot d\theta}. \quad (6)$$

对上式进行数值仿真分析可得到图2中的曲线簇, 其中横坐标为调制系数  $m$ . 由图2可知, 随着调制系数增大, 无论洛伦兹和高斯线宽所占比例如何变化, 二次和四次谐波峰值比  $R_{24}$  均单调减小, 且相交于  $O$  点, 其横纵坐标分别为

$$\begin{aligned} m^* &= 2.4926, \\ R_{24}^* &= 2.1865. \end{aligned} \quad (7)$$

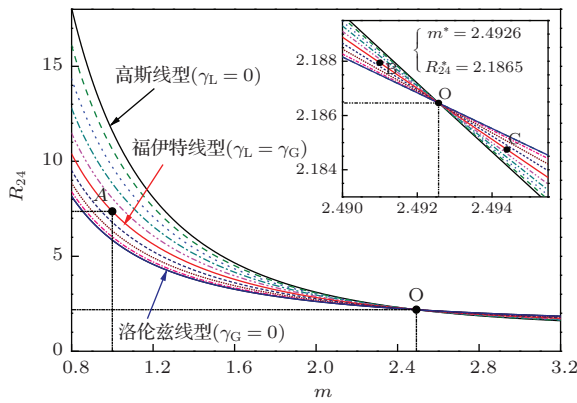


图2 (网刊彩色) 二次和四次谐波峰值比与调制系数  $m$  的关系

利用该不动点, 可以通过下述方法测量线宽: 首先改变调制幅度  $a$  (调制系数  $m$  随之改变), 使得二次和四次谐波峰值比  $R_{24} = R_{24}^* = 2.1865$  (对应的调制幅度记为  $a^*$ ), 则此时调制系数  $m = m^* =$

2.4926, 然后根据线宽  $\gamma$  与调制系数  $m$  的关系即可得到线宽  $\gamma = a^*/m^*$ . 在此需要说明的是, 实际测量中, 为了提高线宽测量精度, 一般在不动点附近进行多点测量, 然后通过多项式拟合的方法确定不动点处的调制幅度, 进而确定线宽.

### 3 实验验证

本节以  $\text{CO}_2/\text{N}_2$  混合气体为例, 选取  $\text{CO}_2$  分子  $6982.0678 \text{ cm}^{-1}$  吸收谱线对上述理论进行实验验证, 实验中利用锁相放大器采集谱线中心频率处一次、二次和四次谐波信号. 实验装置如图3所示, DFB激光器 (NEL NLK1 S5EAAA) 由型号为 ITC4001 的激光控制器进行控制, 通过调节控制器的温度和电流, 使得激光器输出激光频率位于吸收谱线中心频率 ( $6982.0678 \text{ cm}^{-1}$ ). 经光纤准直器 (Thorlabs F240 APC-1550) 准直后的激光通过气室, 透射光由光电探测器 (PDA50 B-EC) 接收后分为两路, 一路输入示波器记录激光光强信号, 一路输入锁相放大器进行谐波检测, 锁相放大器产生的高频正弦调制信号频率为  $5.0 \text{ kHz}$ .  $\text{CO}_2$  和  $\text{N}_2$  流量由两个流量计控制, 气室温度和压强分别由热电偶和压力传感器测量.

$\text{CO}_2$  分子  $6982.0678 \text{ cm}^{-1}$  谱线光谱常数如表1所示 [18]. 气体温度  $T = 295 \text{ K}$ , 吸收光程  $L = 120 \text{ cm}$ ,  $\text{CO}_2$  分压  $P_{\text{CO}_2} = 0.024 \text{ atm}$  ( $1 \text{ atm} = 1.01325 \times 10^5 \text{ Pa}$ ), 总压为  $P = 0.19 \text{ atm}$ , 根据上述参数可计算出谱线的峰值吸收率和线宽分别为  $8.1\%$  和  $1.773 \times 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$ .

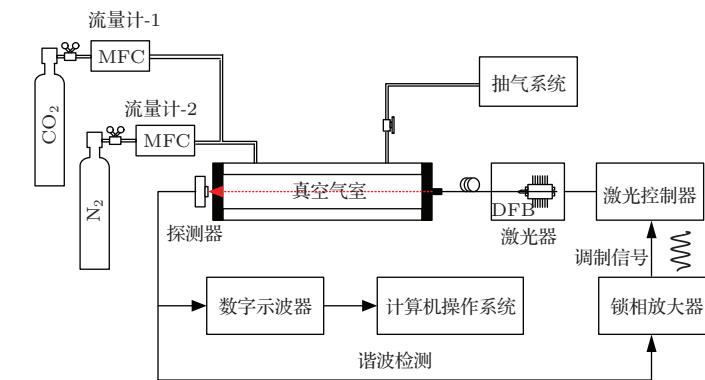


图3 实验系统示意图

表1  $\text{CO}_2$  分子  $6982.0678 \text{ cm}^{-1}$  谱线的光谱参数 (295 K)

$\nu_0/\text{cm}^{-1}$	$S(296 \text{ K})/(\text{cm}^{-2}/\text{atm})$	$\chi_{\text{self}}/(\text{cm}^{-1}/\text{atm})$	$\chi_{\text{air}}/(\text{cm}^{-1}/\text{atm})$	$E/\text{cm}^{-1}$
6982.0678	$1.471 \times 10^{-3}$	0.103	0.0765	81.94

在实验过程中, 首先改变调制幅度  $a$  使二次和四次谐波峰值比  $R_{24}$  在 2.1865 附近, 同时记录在不动点附近多个点对应的  $a$  和  $R_{24}$ , 并对其进行多项式拟合, 拟合结果如图 4 所示. 然后在拟合曲线上找到  $R_{24} = 2.1865$  对应的调制幅度为  $a^* = 4.461 \times 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$ , 即可计算出该条件下线宽  $\gamma = a^*/m^* = 1.790 \times 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$ , 与理论计算值 ( $1.773 \times 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$ ) 的相对误差为 0.98%. 另外, 高斯线宽可根据气体温度  $T$  计算得到  $\gamma_G = 6.474 \times 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$ , 将  $\gamma$  和  $\gamma_G$  代入 (3) 式中可计算出洛伦兹线宽  $\gamma_L = 1.541 \times 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$ , 根据上述测量线宽即可得到该条件下谱线线型函数.

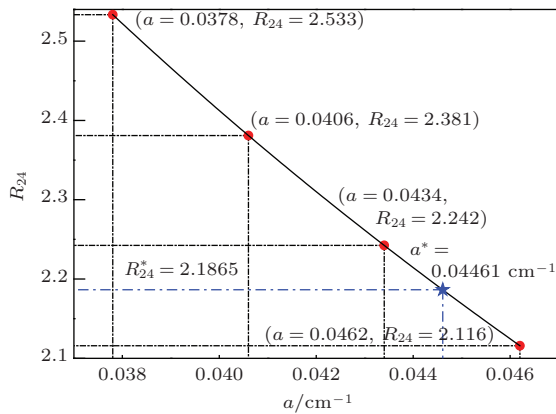


图 4 二次和四次谐波峰值比测量线宽

在测量二次和四次谐波峰值比时, 也同步记录了谱线中心频率处一次谐波幅值和光强信号, 如调制幅度  $a = 3.780 \times 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$  时,  $S_{2f}/S_{1f} = 0.1776$ ,  $i_1 = 0.1561$ , 同时计算出傅里叶系数  $H_2 = -6.7068$ . 将  $S(T)$ ,  $H_2$ ,  $S_{2f}/S_{1f}$  和  $i_1$  等参数代入 (4) 式中, 可得到  $\text{CO}_2$  气体分压为 0.0232 atm, 与设定值之间的相对误差为 -3.3%. 另外, 还可以根据洛伦兹线宽公式计算出气体总压为 0.193 atm (设定值为 0.19 atm).

与传统的  $2f/1f$  免标法通过实验条件 (压强、组分浓度和光谱常数) 计算线宽进而得到气体分压不同, 本文是利用测量得到的线宽计算气体分压, 因此不需要已知气体压强、组分浓度和光谱常数等参数, 可以有效避免气体参数波动带来的影响, 尤其适用于恶劣工况环境下气体参数的测量.

## 4 结 论

本文在弱吸收条件下推导出了谱线中心频率处二次与四次谐波峰值比的表达式, 并对其进行数值模拟计算, 在此基础上提出了一种线宽的在线测

量方法. 以  $\text{CO}_2$  分子  $6982.0678 \text{ cm}^{-1}$  吸收谱线为例, 在实验室条件下通过二次与四次谐波峰值比测量线宽, 并根据测量的线宽测量  $\text{CO}_2$  气体分压和总压. 与传统的直接吸收法相比, 该方法由于只采用谱线中心频率处谐波信号比值, 因此可消除激光强度波动、颗粒物浓度等因素的影响, 具有更高的信噪比和灵敏度; 与传统的  $2f/1f$  免标法相比, 该方法利用测量得到的线宽计算气体分压, 因此可以消除气体总压、组分浓度和光谱常数不确定性的影响, 具有更高的测量精度.

## 参考文献

- [1] Sun K, Sur R, Chao X, Jeffries J B, Hanson R K, Pummil R J, Whitty K J 2013 *Pro. Comb. Inst.* **34** 3593
- [2] Geng H Liu J G Zhang Y J Kan R F, Xu Z Y Yao L Ruan J 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 043301 (in Chinese) [耿辉, 刘建国, 张玉钧, 阚瑞峰, 许振宇, 姚路, 阮俊 2014 物理学报 **63** 043301]
- [3] Jia J W, Zhang S F, Jin G Y, Yang L, Song R H, Wang H 2013 *Chin. J. Vacuum Sci. Technol.* **33** 153 (in Chinese) [贾军伟, 张书锋, 金光远, 杨力, 宋瑞海, 王欢 2013 真空科学与技术学报 **33** 153]
- [4] Kan R F, Liu W Q, Zhang Y J, Liu J G, Dong F Z, Gao S H, Wang M, Chen J 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 1927 (in Chinese) [阚瑞峰, 刘文清, 张玉钧, 刘建国, 董凤忠, 高山虎, 王敏, 陈军 2005 物理学报 **54** 1927]
- [5] Lan L J, Ding Y J, Jia J W, Du Y J, Peng Z M 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 083301 (in Chinese) [蓝丽娟, 丁艳军, 贾军伟, 杜艳君, 彭志敏 2014 物理学报 **63** 083301]
- [6] Reid J, Labrie D 1981 *Appl. Phys. B* **26** 203
- [7] Rieker G B, Jeffries J B, Hanson R K 2009 *Appl. Opt.* **48** 5546
- [8] Farooq A, Jeffries J B, Hanson R K 2009 *Appl. Phys. B* **96** 161
- [9] Li N, Yan J H, Wang F, Chi Y, Cen K F 2008 *Chin. J. Lasers* **35** 1567 (in Chinese) [李宁, 严建华, 王飞, 池涌, 岑可法 2008 中国激光 **35** 1567]
- [10] Stewart G, Johnstone W, Bain J R P, Ruxton K, Duffin K 2011 *J. Lightw. Technol.* **29** 811
- [11] Bain J R P, Johnstone W, Ruxton K, Stewart G, Lengden M, Duffin K 2011 *J. Lightw. Technol.* **29** 987
- [12] Duffin K, McGettrick A J, Johnstone W, Stewart G, Moodie D G 2007 *J. Lightw. Technol.* **25** 3114
- [13] Peng Z M, Ding Y J, Che L, Yang Q S 2012 *Opt. Express* **20** 11976
- [14] Liu Y Y, Lin J L, Huang G M, Guo Y Q, Duan C X 2001 *J. Opt. Soc. Am. B* **18** 666
- [15] Olivero J J, Longbothum R L, Quant J 1977 *Spectrosc. Radiat. Transf.* **17** 233
- [16] Che L, Ding Y J, Peng Z M, Li X H 2012 *Chin. Phys. B* **21** 127803
- [17] Lan L J, Ding Y J, Peng Z M, Du Y J, Liu Y F, Li Z 2014 *Appl. Phys. B* **117** 543
- [18] <http://cfa-www.harvard.edu/hitran/>

# Theoretical and applied researches on measuring line width in wavelength modulation spectroscopy<sup>\*</sup>

Zhang Shu-Feng<sup>1) #</sup> Lan Li-Juan<sup>2) #</sup> Ding Yan-Jun<sup>2)</sup> Jia Jun-Wei<sup>1)</sup> Peng Zhi-Min<sup>2) †</sup>

1) (*Beijing Orient Institute for Measurement & Test (BOIMT), Beijing 100086, China*)

2) (*Department of Thermal Engineering, Tsinghua University, Beijing 100084, China*)

( Received 3 September 2014; revised manuscript received 10 October 2014 )

## Abstract

Line width is the key parameter in tunable diode laser absorption spectroscopy (TDLAS); the dominant line widths are Doppler and collisional broadenings. Under low absorbance, the ratios of 2<sup>nd</sup> to 4<sup>th</sup> harmonics at the line center monotonously decrease and intersect at a fixed point, regardless of the changes in Doppler and collisional line widths. Based on this characteristic, a method is proposed which employs the ratios to measure the line width. To validate the reliability and accuracy of the proposed method, the transition of CO<sub>2</sub> at 6982.0678 cm<sup>-1</sup> is selected to measure the line width, the gas partial and total pressure. Experimental results show that the proposed method can achieve high precision in actual measurements.

**Keywords:** tunable diode laser absorption spectroscopy (TDLAS), wavelength modulation spectroscopy (WMS), line width, partial pressure

**PACS:** 33.20.Ea, 42.55.Px, 42.65.-k

**DOI:** [10.7498/aps.64.053301](https://doi.org/10.7498/aps.64.053301)

---

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 51206086, 51176085).

† Corresponding author. E-mail: [apspect@mail.tsinghua.edu.cn](mailto:apspect@mail.tsinghua.edu.cn)

# Joint first authors.