

基于数字频率锁定技术实时探测实际大气中甲烷浓度

王贵师 蔡廷栋 汪磊 谈图 张为俊 高晓明

(中国科学院安徽光学精密机械研究所环境光谱学研究室, 安徽 合肥 230031)

摘要 利用可调谐半导体激光吸收光谱(TDLAS)技术对气体进行长时间实时监测时,激光器波长的漂移会给测量精度造成较大的影响。为了消除这种影响,利用 Lab-VIEW 设计的数字比例积分微分(PID)算法和软件数字锁相,将激光频率锁定在待测气体的吸收峰上。采用 1.653 μm 的分布式反馈(DFB)半导体激光器作为光源,结合 100 m 离散型 Herriot 吸收池,选择空气中的甲烷作为研究对象,对系统性能进行了测试和分析。结果表明,该系统可以将激光器稳定在 $\pm 0.001 \text{ cm}^{-1}$ 范围内,对激光器的漂移起到了很好的抑制作用。系统使用二次谐波测量时 1 s 积分时间内检测限约为 1.8×10^{-8} 体积分数,可以满足环境空气中甲烷的长时间监测。该方法可以直接应用于其他痕量气体探测、燃烧诊断等领域。

关键词 激光技术;可调谐半导体激光吸收光谱;波长调制;软件数字锁相;数字比例积分微分;Lab-VIEW;实时测量

中图分类号 O433.1 文献标识码 A doi: 10.3788/CJL201138.1008002

Application of Digital Frequency Locking Techniques in Real-Time Measurement of Methane in Atmosphere

Wang Guishi Cai Tingdong Wang Lei Tan Tu Zhang Weijun Gao Xiaoming

(Laboratory of Environmental Spectroscopy, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Hefei, Anhui 230031, China)

Abstract The fluctuation of laser brings many troubles when tunable diode laser absorption spectroscopy (TDLAS) is used in the real-time measurement of gases. For eliminating this influence, a novel method, in which a digital proportion integration differentiation (PID) algorithm and a software lock-in amplifier designed by using Lab-VIEW are employed, is introduced to lock the laser to the center of the absorption line. In order to test the system, three intimate absorption lines of methane near 1.653 μm are chosen by using fiber-coupled distributed feedback (DFB) diode laser. A 24-hour continuous measurement is implemented. Relative results are presented and discussed. The detection limit is lower than 1.8×10^{-8} while the second harmonic signal measurement is utilized. This method can be applied to the detection of trace gases by using other long path length cells (CEAS) or combustion diagnosis.

Key words laser technique; tunable diode laser absorption spectroscopy; wavelength modulation; software lock-in; digital proportion integration differentiation; Lab-VIEW; real-time measurement

OCIS codes 280.3420; 300.6430; 140.3600; 300.6260

1 引言

由于可调谐半导体激光器具有可调谐、窄线宽等优点,可调谐半导体激光吸收光谱(TDLAS)^[1~5]

技术得到了快速的发展,已广泛应用于等离子体温度在线测量^[6]、燃烧诊断^[7,8]、工业污染监测^[9]、大气痕量气体成分检测^[10]等许多领域。

收稿日期: 2011-04-28; 收到修改稿日期: 2011-06-01

基金项目: 国家 863 计划(2009AA06Z204)资助课题。

作者简介: 王贵师(1981—),男,博士研究生,主要从事环境光谱技术及数字信号处理技术等方面的研究。

E-mail: wulixi2004@126.com

导师简介: 张为俊(1962—),男,博士,研究员,博士生导师,主要从事微量污染物检测方法 & 污染机理等方面的研究。

E-mail: wjzhang@aiofm.ac.cn

一般而言,激光器在自由运转时即可满足许多应用,然而在利用 TDLAS 技术对气体进行长时间测量过程中,环境温度的变化会引起激光频率的漂移,使得探测结果具有较大的偏差,影响测量精度。在解决激光器频率漂移问题时,一般使用模拟比例积分微分(PID)技术^[11]借助相应的反馈信号(通常使用参考池的 1f 或者 3f 信号作为反馈控制信号)将激光器稳定在已知吸收线上,并且该技术已经非常成熟,广泛应用于激光雷达、光通信等领域。近年来,随着计算机和高速芯片性能的提高,基于数字 PID 的锁定技术得到了快速发展,而数字 PID 技术则具有便于调节、长期可靠等优点,文献[12]利用数字信号处理(DSP)和微处理器设计了数字 PID 锁定技术。本课题组使用软件实现了数字 PID 锁定技术并将其应用于甲烷的实时探测。一方面,该方案可以提高探测效率(探测过程中始终保证激光器被锁定在吸收峰上,相对于扫描激光器的方法而言,可以提高系统的响应灵敏度,由于本文是通过软件来实现该方案的,所以未对灵敏度进行分析);另一方面,该方法可以抑制因激光器漂移而带来的误差,从而提高系统的探测准确度。

本文利用三次谐波稳频技术,结合 Lab-VIEW 实现的数字 PID 算法,将激光器锁定在待测气体的吸收峰上,并通过软件编写的数字锁相解调出吸收信号的二次谐波信号,进行气体浓度的测量。利用锁定的吸收测量系统,选择 1.653 μm 波段 3 条中心位置非常接近的甲烷吸收线,对实验室内外的甲烷进行了连续监测,系统最小可探测灵敏度达到 1.8×10⁻⁸ 体积分数,实验过程中始终保证归一化的 3f 控制信号在 ±0.01(等效波数为 ±0.001 cm⁻¹) 以内,很好地抑制了激光器的漂移。

2 测量及分析原理

2.1 波长调制技术

在激光器稳频过程中,通常利用奇次谐波的过零点特性^[13]将偏离的激光波长锁定在吸收线中心位置。由于一次谐波信号在吸收线中心位置有偏移并且受光强影响,实验中采用中心位置在 6046.9527 cm⁻¹ 的甲烷吸收线的 3f 信号作为鉴频信号。图 1 给出了利用 Lab-VIEW 设计的数字锁相解调出的空气中甲烷吸收信号的一、二、三次谐波,其中二次谐波为扣除背景后的信号,框内标注的区间为锁定区间。

半导体激光器的调制是通过注入电流的调制

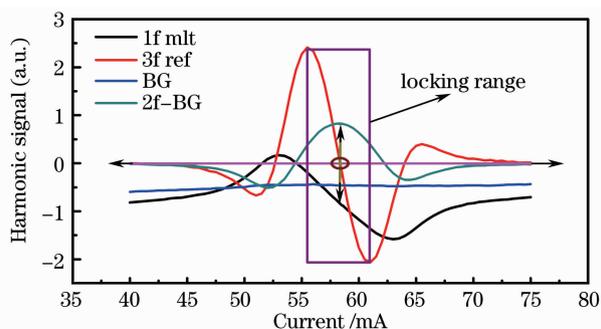


图 1 空气中甲烷的一、二、三次谐波信号

Fig. 1 First, second, third harmonic and background signals of methane in the atmosphere

实现的。当激光器被正弦波调制时,输出光的频率 $\nu(t)$ 及光强 $I_0(t)$ 可以表示为

$$\nu(t) = \bar{\nu} + a \cos \omega_m t, \quad (1)$$

$$I_0(t) = \bar{I}_0 + i_0 \cos(\omega_m t + \phi), \quad (2)$$

式中 ϕ 为频率调制与振幅调制间的相位差, a 为调制深度, i_0 为被调制后的光强幅度。

根据 Beer-Lambert 定律,当输出光经过吸收气体后,其表达式变为

$$I(t) = I_0(t) \tau[\nu(t)] = I_0(t) \exp(-PXS\phi_\nu L), \quad (3)$$

式中 $\tau[\nu(t)]$ 为传输系数, $PXS\phi_\nu L \ll 1$ 时 $\tau = \exp(-PXS\phi_\nu L) \approx 1 - PXS\phi_\nu L$, P 为总压力, X 为摩尔分数, S 为吸收线的线强, ϕ_ν 为归一化的线形函数,满足 $\int \phi_\nu(\nu) d\nu = 1$, L 为等效吸收程长。

探测器接收到的光强可以通过 $\tau[\nu(t)]$ 的傅里叶展开式表示为

$$\tau[\nu(t)] = \sum_{n=0}^{n=+\infty} H_n(\bar{\nu}, a) \cos n\omega_m t, \quad (4)$$

式中 $H_n(\bar{\nu}, a)$ 为传输函数的 n 阶傅里叶系数,即吸收信号的 n 次谐波

$$H_0(\bar{\nu}, a) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\pi}^{+\pi} \tau(\bar{\nu} + a \cos \theta) d\theta, \quad (5)$$

$$H_n(\bar{\nu}, a) = \frac{1}{\pi} \int_{-\pi}^{+\pi} \tau(\bar{\nu} + a \cos \theta) \cos n\theta d\theta. \quad (6)$$

2.2 数字 PID 算法

数字 PID 控制器是由模拟 PID 控制器发展而来的,适合用计算机来实现,具有调整灵活、长期可靠等优点。在连续控制系统中,用输出量 $y(t)$ 和给定量 $r(t)$ 之间的误差时间函数的比例(P)、积分(I)、微分(D)线性组合构成控制量 $u(t)$,其工作原理如图 2 所示,其控制规律为

$$u(t) = K_C \left[e(t) + \frac{1}{T_I} \int_0^t e(t) dt + T_D \frac{de(t)}{dt} \right]. \quad (7)$$

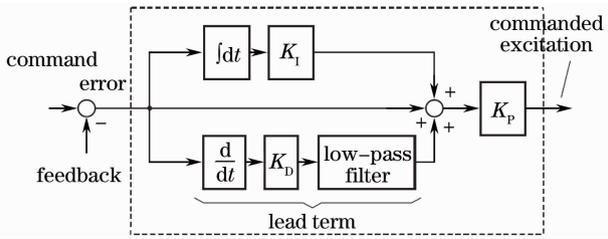


图 2 PID 控制原理示意图

Fig. 2 Schematic diagram of PID control law

由于计算机控制是一种采样控制,它只能根据采样时刻的偏差值计算控制量。因此,(7)式中的积分项和微分项不能准确计算,只能用数值计算的方法逼近为

$$u(k) = K_C \left\{ e(k) + \frac{\theta}{T_I} \sum_{i=0}^k e(i) + \frac{T_D}{\theta} [e(k) - e(k-1)] \right\}, \quad (8)$$

式中 θ 为采样周期, K_C 为比例控制系数, $e(k)$ 为误差信号, T_I 为积分时间常数, T_D 为微分时间常数。

当采样周期足够小时,其控制过程可与模拟控制十分接近。实验中采用 Lab-VIEW 设计的 PI 控制算法,使用三次谐波值与设定值之差作为误差信号,由该误差信号的比例、积分线性组合计算出激光器的工作电流,利用通用接口总线(GPIB)控制温度电流控制器(LDC-3724)实现反馈控制。

3 实验装置及设计

实验装置如图 3 所示,光源采用 1.653 μm 激光二极管(NTT Electronics Corporation),激光器线宽为 2 MHz,由 LDC-3724 温度电流控制器(ILXLightwave Inc.)控制,函数发生器产生频率为 10 kHz、振幅为 2.8 V 的正弦波对激光器进行调制。输出激光由光纤分束器分成 99:1 的二束光,1% 的光通过程长为 10 cm 的参考池,99% 的光经光纤隔离器后通过 100 m 的 Herriot 吸收池,两光束均由相同型号的探测器(New Focus Inc. 2011FC-M)探测,其输出电信号由采集卡(ADLINK DAQ2010)采集,并送到计算机做后续处理。

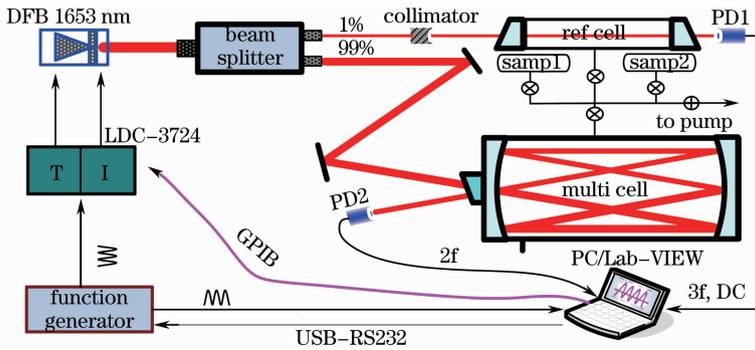


图 3 实验装置示意图

Fig. 3 Schematic diagram of experimental setup

系统的软件设计流程如图 4 所示,主要包括电流、频率及幅值扫描模块、数字 PID 控制模块、软件数字锁相模块以及 Kalman 实时滤波模块。扫描模块主要通过 PC 控制各仪器实现,从而得到系统最佳工作参数,并给出锁定区间;数字锁相模块主要负责同步解调待测样品二次及四次谐波以及参考池的三次谐波信号,并给出参考池的 DC 信号,用于消除测量过程中激光器中心光强的变化^[14],该模块的设计原理如图 5 所示,由采集卡采集 PD 的输出信号及函数发生器的参考输出信号,利用锁相环(PLL)模块追踪参考信号的频率及相位信息并生成 n 倍频信号,与 PD 输出的已调制信号进行乘法运算,然后

通过等波纹低通远红外(FIR)滤波器,对滤波后结果取平均作为当前 n 次谐波值;数字 PID 控制模块负责将实时三次谐波信号转为电流控制信号,利用 GPIB 控制 LDC-3724 实现对激光器的反馈。实验中使用凑试法得到 P 及 I 参数,分别为 1(下降沿为正、上升沿为负)和 0.02。Kalman 滤波模块主要负责对数据进行实时滤波,并且该模块设有开关^[15]。

4 测量结果及分析

实验中,选择了波数为 6046.9527 cm^{-1} 的甲烷吸收线进行锁定,用其附近分布在波数为

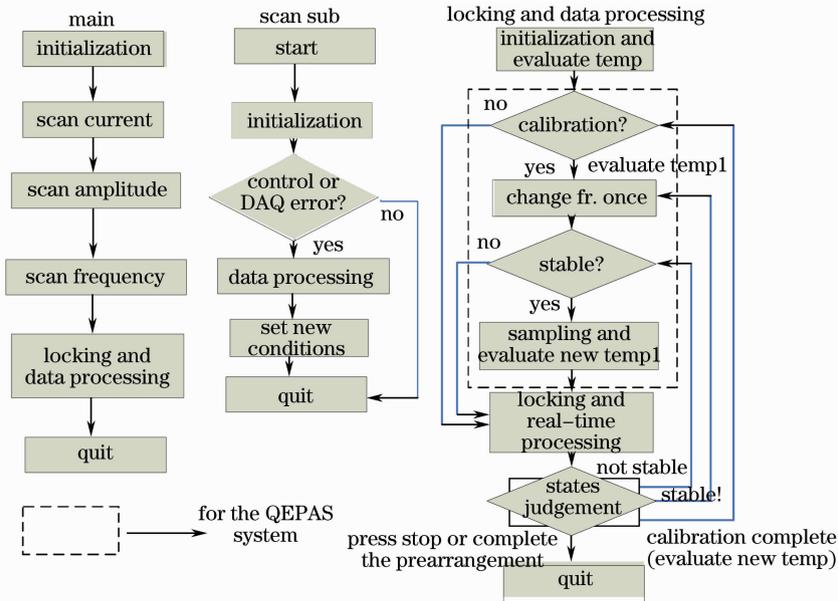


图 4 软件设计流程图

Fig. 4 Flow chart of the control program for the whole system

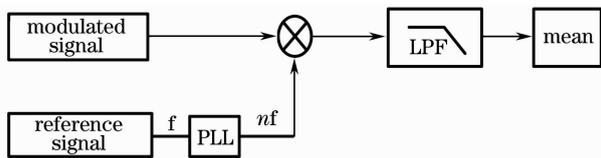


图 5 软件数字锁相原理示意图

Fig. 5 Schematic diagram of the software lock-in amplifier

0.01 cm^{-1} 范围内的 3 条吸收线进行浓度反演,其线强和为每分子 $5.27 \times 10^{-21} \text{ cm}$,并且周围没有其他分子(N_2 、 O_2 、 H_2O 等)的强吸收线。在参考池内充入体积分数为 5%、压强为 101.325 kPa 的甲烷气体,使用其 3f 信号作为鉴频信号对激光器进行锁定。图 6 给出了数字 PID 的锁定过程,在大于 30 h 的时间内,归一化的 3f 信号值始终被控制在 ± 0.01 内,使用定标公式对其波数值进行反推,可以确定数字 PID 将激光器锁定在 $\pm 0.001 \text{ cm}^{-1}$ 的范围内,能很好地满足对于实时探测的要求。

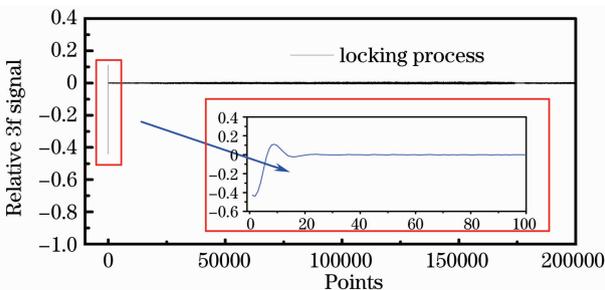


图 6 PID 控制过程

Fig. 6 Process of the PID control

图 7 给出的是激光器自由运转及使用数字 PID 控制的比较,从图中可以明显看出,自由运转时激光器的频率波动约为 0.03 cm^{-1} ,加入 PID 后可以保证激光器长时间稳定工作在 $\pm 0.001 \text{ cm}^{-1}$ 以内,因此该方法很好地抑制了激光器波长的漂移。为了评估系统的稳定性及探测极限,使用 Allan 方差对结果进行分析^[16]。Allan 方差分析结果可以给出不同积分时间对应的系统噪声水平,以信噪比为 1 时的结果为探测极限,用浓度值除以当前的信噪比(吸收 2f 信号值与系统噪声的比值)可以计算出对应积分时间的探测极限。图 8 给出了加入和未加入锁定时的结果,未加入锁定时的系统稳定时间(系统主要受高斯白噪声影响的时间长度)约为 18 s,加入锁定后的系统稳定时间约为 105 s,对应的检测限分别约为 8.1×10^{-9} 和 6.6×10^{-9} 体积分数,积分时间为 1 s 时的检测限约为 2.4×10^{-8} 及 1.8×10^{-8} 体积分数。

在实时测量过程中,为了兼顾探测灵敏度和系

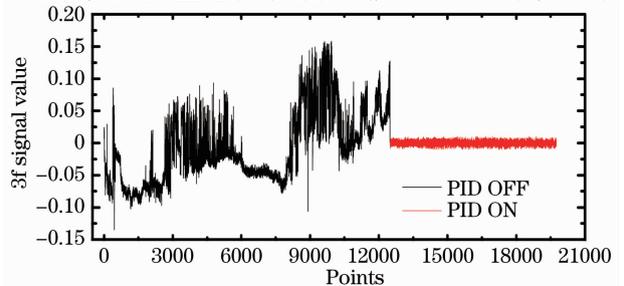


图 7 激光器自由运转及开启 PID 的 3f 信号值对比
Fig. 7 Feedback errors (3f) when the servo loop is OFF and ON

统响应速度,可引入 Kalman 滤波算法对信号值进行实时滤波。如果要进一步提高激光器稳定度,可以选择 Doppler 加宽的吸收信号作为鉴频信号,稳定度可在此基础上提高近 1 个量级,但是对于长时间监测而言,锁定区间过小会导致系统失锁,并且其吸收线位置也存在压力偏移问题,所以实验中采用常压下的吸收信号进行锁定。

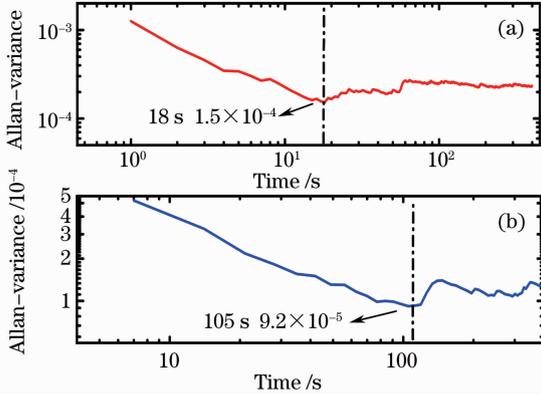


图 8 数字 PID 关闭(a)和开启(b)时的 Allan 方差分析结果

Fig. 8 Allan variance analysis for the OFF (a) and ON (b) states

对于频率稳定后的系统,除了激光器和探测器本身的噪声限制外,影响其探测灵敏度的主要因素为激光器输出光强的抖动,以及叠加在测量谱上的干涉条纹(标准具效应)。实验中使用带 Brewster 窗片的 Herriot 池,仔细地调整光路以尽量减小标准具效应,在池中充入高纯氮得到背景信号并保存。在实时测量过程中,利用一个真空泵使吸收池中的气体产生 4 L/min 的流动,同时利用软件数字锁相解调出的 2f 信号减去背景信号得到实时值,用 2f 信号的实时值除以参考信号的 DC 值以消除激光器输出光功率的抖动。实验过程中为了准确反演甲烷的浓度值,对不同浓度的甲烷进行了测量。首先将激光器调节到待测吸收峰附近,使用电流扫描确定

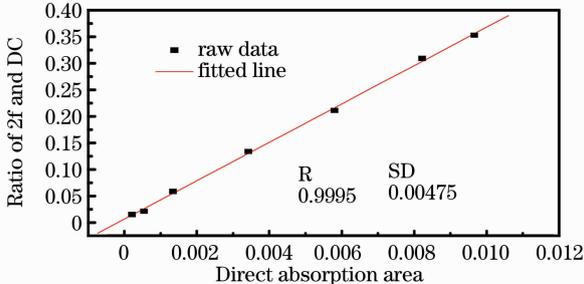


图 9 谐波信号-直接吸收结果

Fig. 9 Linearity of the harmonic signals and direct absorption signals

吸收区间,利用数字 PID 将其锁定在吸收峰上,并给出当前已消除光强的 2f 信号值,然后将正弦调制信号替换为频率为 50 Hz、幅值为 2 V 且无中心偏置的三角波,对其直接吸收信号进行测量。图 9 给出了不同浓度时的谐波信号与对应直接吸收之间的线性关系图。

为了测试系统性能,对实验室内外的甲烷进行了 24 h 连续监测,图 10(a)给出的为 3f 鉴频信号的实时结果,图 10(b)给出的是消除光强后 2f 信号的变化趋势,其中从 14:50 到 22:00 测量的是实验室内甲烷的浓度,约为 2.2×10^{-6} 体积分数。22:00 时由于气瓶中少量气体漏到实验室空气内,其浓度值有所增加。5:40 为次日早晨测量的实验室大楼外部的甲烷浓度,约为 1.78×10^{-6} 体积分数,这与实际大气中的浓度值相一致。计算此时测量信号的信噪比约为 98,由此可以算出 1 s 积分时间内系统的最小可探测灵敏度约为 1.8×10^{-8} 体积分数。在连续监测过程中,激光器中心频率始终被控制在 $6046.9527 \pm 0.001 \text{ cm}^{-1}$ 范围内。

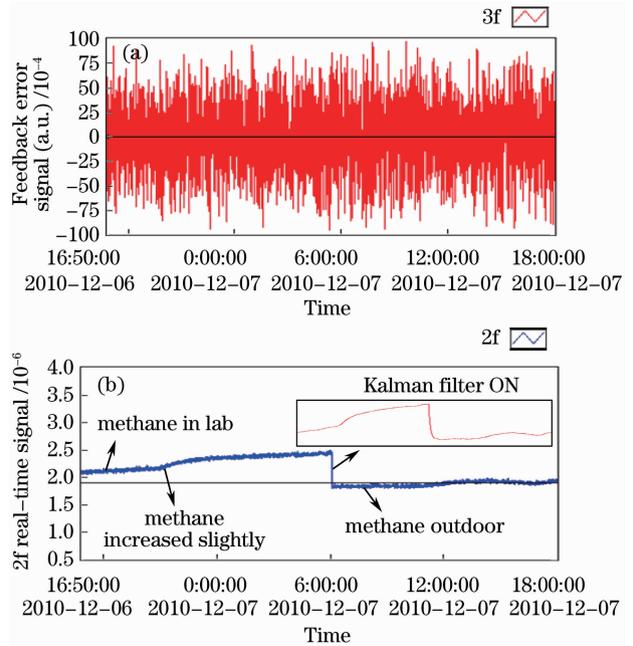


图 10 (a) 3f 实时结果;(b)甲烷实时测量结果

Fig. 10 (a) Real-time feedback error signals over 24 hours; (b) real-time measurement in room, outdoors and the results when the Kalman filter is used

5 结 论

报道了利用 Lab-VIEW 设计的数字频率锁定技术在气体实时探测中的应用,该方法具有便于实

现、易调节等优点。通过使用参考池样品的三次谐波信号及数字 PID 技术将激光频率锁定在分子吸收峰位置上,频率稳定度达到 $\pm 0.001 \text{ cm}^{-1}$,抑制了激光器的频率漂移。使用软件编写的数字锁相解调出待测气体的二次谐波进行浓度反演,系统达到了较高的探测灵敏度(积分时间为 1 s 时的检测限约为 1.8×10^{-8} 体积分数)。该项技术可以直接与其他长程吸收技术、光声技术^[17~19]等结合,应用于痕量气体实时监测、燃烧诊断、气体成分在线分析等领域,具有广阔的应用前景。

参 考 文 献

- 1 E. D. Hinkley. Laser Monitoring of the Atmosphere [M]. Berlin; Springer, 1976. 396
- 2 J. Reid, D. Labrie. Second-harmonic detection with tunable diode lasers—comparison of experiment and theory[J]. *Appl. Phys. B*, 1981, **26**(3): 203~210
- 3 X. Zhou, J. B. Jeffries, R. K. Hanson. Development of a fast temperature sensor for combustion gases using a single tunable diode laser[J]. *Appl. Phys. B*, 2005, **81**(5): 711~722
- 4 Gao Xiaoming, Huang Wei, Li Ziyao *et al.*. Sensitive detection of CO₂ molecule using near infrared diode laser absorption spectroscopy[J]. *Acta Optica Sinica*, 2003, **23**(5): 609~611
高晓明, 黄伟, 李子尧等. CO₂ 分子的近红外二极管激光吸收光谱灵敏探测[J]. *光学学报*, 2003, **23**(5): 609~611
- 5 Kan Ruifeng, Liu Wenqing, Zhang Yujun *et al.*. Infrared absorption spectrometer of monitoring ambient methane[J]. *Acta Optica Sinica*, 2006, **26**(1): 67~70
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
- 6 Wang Lei, Tan Tu, Wang Guishi *et al.*. Natural gas pipeline leak detection system for laser remote sensing and calibration[J]. *Chinese J. Lasers*, 2010, **37**(11): 2912~2917
汪磊, 谈图, 王贵师等. 天然气管道泄漏激光遥感探测系统的研制及标定方法[J]. *中国激光*, 2010, **37**(11): 2912~2917
- 7 J. T. C. Liu, J. B. Jeffries, R. K. Hanson. Wavelength modulation absorption spectroscopy with 2f detection using multiplexed diode lasers for rapid temperature measurements in gaseous flows[J]. *Appl. Phys. B*, 2004, **78**(3-4): 503~511
- 8 G. B. Rieker, H. Li, X. Liu *et al.*. A diode laser sensor for rapid, sensitive measurements of gas temperature and water vapor concentration at high temperatures and pressures[J]. *Meas. Sci. Technol.*, 2007, **18**(5): 1195~1204
- 9 M. Gabrysch, C. Corsi, F. S. Pavone *et al.*. Simultaneous detection of CO and CO₂ using a semiconductor DFB diode laser at 1.578 μm [J]. *Appl. Phys. B*, 1997, **65**(1): 75~79
- 10 T. Aizawa. Diode-laser wavelength-modulation absorption spectroscopy for quantitative in situ measurements of temperature and OH radical concentration in combustion gases[J]. *Appl. Opt.*, 2001, **40**(27): 4894~4903
- 11 R. Muller, A. Weis. Laser frequency stabilization using selective reflection spectroscopy[J]. *Appl. Phys. B*, 1998, **66**(3): 323~326
- 12 Tom Ahola, Jianpei Hu, Eriki Ikonen. A digital control system for the iodine stabilized He-Ne laser[J]. *Meas. Sci. Technol.*, 1998, **69**(5): 1934~1937
- 13 A. A. Kosterev, F. K. Tittel, Dmitry V. Serebryakov *et al.*. Applications of quartz tuning forks in spectroscopic gas sensing[J]. *Rev. Sci. Instrum.*, 2005, **76**(4): 043105
- 14 K. Liu, J. Li, L. Wang *et al.*. Trace gas sensor based on quartz tuning fork enhanced laser photoacoustic spectroscopy[J]. *Appl. Phys. B*, 2009, **94**(3): 527~534
- 15 Haris Riris, Clinton B. Carlisle, Russell E. Warren. Kalman filtering of tunable diode laser spectrometer absorbance measurements[J]. *Appl. Opt.*, 1994, **33**(24): 5506~5508
- 16 P. Werle, R. Mucke, F. Slemr. The limits of signal averaging in atmospheric trace-gas monitoring by tunable diode-laser absorption spectroscopy (TDLAS)[J]. *Appl. Phys. B*, 1993, **57**(2): 131~139
- 17 G. Wysocki, Y. Bakhirkin, S. So *et al.*. Dual interband cascade laser based trace-gas sensor for environmental monitoring[J]. *Appl. Opt.*, 2007, **46**(33): 8202~8210
- 18 A. A. Kosterev, Y. A. Bakhirkin, R. F. Curl *et al.*. Quartz-enhanced photoacoustic spectroscopy[J]. *Opt. Lett.*, 2002, **27**(21): 1902~1904
- 19 Yury A. Bakhirkin, Anatoliy A. Kosierov, Chad Roller *et al.*. Mid-infrared quantum cascade laser based off-axis integrated cavity output spectroscopy for biogenic nitric oxide detection[J]. *Appl. Opt.*, 2004, **43**(11): 2257~2266