# 燃烧流场波长调制光谱吸收模型的研究

张步强<sup>1,2</sup>, 许振宅<sup>1</sup>, 刘建国<sup>1</sup>, 夏晖晖<sup>1</sup>, 聂伟<sup>1,2</sup>, 袁峰<sup>1,2</sup>, 阚瑞峰<sup>1\*</sup>

<sup>1</sup>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环境光学与技术重点实验室,安徽 合肥 230031; <sup>2</sup>中国科学技术大学,安徽 合肥 230026

摘要 基于可调谐半导体吸收光谱的波长调制技术,建立了精确的吸收模型。通过两条已知吸收中心的吸收谱线,对标准具自由光谱范围进行标定,并利用更贴近激光器出光特性的描述模型,得到激光器频率-时间响应,结合实验室标定和 HITEMP 数据库的杂合吸收谱线参数,建立了可与实际吸收直接比较的精确模型,以诊断燃烧流场。本研究以 H<sub>2</sub>O 为目标分子,选取吸收中心为 7185.60 cm<sup>-1</sup>和 6807.83 cm<sup>-1</sup>两条吸收线,利用扣除背景的归一 化二次谐波信号峰值反演流场温度,并在管式高温炉上进行实验验证,最高测量温度为 1500 K,相对误差小于 3.1%。吸收模型的准确性决定了所测流场参数的准确性,该模型可应用到更为复杂的燃烧流场环境,实现流场参数的精确测量。

关键词 光谱学;吸收模型;波长调制;燃烧流场;谐波信号
 中图分类号 O433.1
 文献标识码 A

doi: 10.3788/CJL201946.0711001

# Absorption Model of Wavelength Modulation Spectroscopy in Combustion Flow Field

Zhang Buqiang<sup>1,2</sup>, Xu Zhenyu<sup>1</sup>, Liu Jianguo<sup>1</sup>, Xia Huihui<sup>1</sup>, Nie Wei<sup>1,2</sup>, Yuan Feng<sup>1,2</sup>, Kan Ruifeng<sup>1\*</sup>

<sup>1</sup>Key Laboratory of Environmental Optics and Technology, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Hefei, Anhui 230031, China;
<sup>2</sup>University of Science and Technology of China, Hefei, Anhui 230026, China

**Abstract** In this study, an accurate absorption model is established by using the wavelength modulation technology based on tunable diode laser absorption spectroscopy. The free spectral range of an etalon is calibrated by the two absorption lines whose transition line centers are known, and the frequency-time response of the laser is obtained using a description model close to the output characteristics of the laser. Along with the hybrid absorption line parameters calibrated in the laboratory and the HITEMP database, an accurate model that can be directly compared with the actual absorption is established for diagnosing the combustion flow field. Herein, H<sub>2</sub>O is the target molecule, and the transition line centers of the two selected lines are 7185.60 and 6807.83 cm<sup>-1</sup>. The flow field temperature can be obtained via the peak of the normalized second harmonic signal with background subtracted and verified in a high-temperature flow field generated by a tubular high-temperature furnace. The maximum temperature is 1500 K, and the relative measurement error is less than 3.1%. Further, the accuracy of the absorption model determines the accuracy of the measured flow field parameters. The method used to establish the model can be applied to the complex combustion flow fields for accurately measuring the flow field parameters. **Key words** spectroscopy; absorption model; wavelength modulation; combustion flow field; harmonic signal **OCIS codes** 300.1030; 300.6340; 300.6380; 300.6390

收稿日期: 2019-01-24; 修回日期: 2019-03-20; 录用日期: 2019-03-29

基金项目:国家重点研发计划 (2016YFC0201104)

<sup>\*</sup> E-mail: kanruifeng@aiofm.ac.cn

# 1 引 言

可调谐半导体吸收光谱(TDLAS)技术是一种 非入侵式光学测量技术,主要分为直接吸收(DA)和 波长调制(WMS)两种。该技术可以实现原位测量, 具有高灵敏度、高分辨、高选择、信号高保真的特 点<sup>[1-3]</sup>,能够对温度、组分浓度、流速等多流场参数进 行同时测量<sup>[4-5]</sup>。波长调制技术的本质是将吸收信 息转移到高频部分,有效抑制低频噪声,不需要基 线,并且对非吸收损耗不敏感,即解调得到的谐波信 号对原始强度信号变弱不敏感。该技术已成为流场 诊断的理想方法之一<sup>[6-7]</sup>。

波长调制技术的研究以 Wilson 等<sup>[8]</sup>采用数值 仿真方法获得谐波信号开始,Philippe 等<sup>[9]</sup>在二极 管激光器中注入正弦调制电流,发展了典型的波长 调制技术,当时的测量需要在固定环境中事先标定。 Sun<sup>[10]</sup>和 Goldstein 等<sup>[11]</sup>利用被一次谐波归一化的 二次谐波信号来消除激光器本身的影响,实现了流 场参数的测量。水汽是燃烧的主要产物之一,水分 子在红外波段具有丰富的振-转光谱,从而成为燃烧 流场诊断的理想目标分子之一。本文以 H<sub>2</sub>O 为目 标分子,重点研究吸收模型的建立、频率的准确标 定、线型函数的选取、谱线参数的选取等对所建吸收 模型的影响,利用建立的吸收模型反演得到了管式 高温炉温度,并从实验上验证了该模型的准确性。

### 2 基本原理

当一束频率为 v 的激光通过待测气体时,其出 射光强和入射光强满足朗伯-比尔定律,即

$$T[v(t)] = \left(\frac{I_{t}}{I_{o}}\right)_{v} = \exp(-\alpha_{v}), \qquad (1)$$

式中:*t* 为时间;*T*[*v*(*t*)]为透过率;*I*<sub>t</sub> 为透射光强; *I*<sub>o</sub> 为入射光强;*α*<sub>s</sub> 为吸光度。

吸收的本质是光子的能量与跃迁的能级差相等,气体分子的吸收并不只针对单一频率。展宽机制使光谱加宽,加宽分为非均匀加宽和均匀加宽,两种加宽机制的半峰全宽可表示为

$$\Delta v_{\rm D} = 7.1632 \times 10^{-7} v_0 \sqrt{\frac{T}{M}} , \qquad (2)$$

$$\Delta v_{\rm C} = 2p \cdot \sum \chi_Q 2\gamma_{P-Q}, \qquad (3)$$

式中: $v_0$  为跃迁中心频率, cm<sup>-1</sup>; T 为温度, K; M 为 分子质量, g • mol<sup>-1</sup>; p 为压强, atm, 1 atm = 101.325 kPa;  $\chi_q$  为组分Q 的体积分数;  $\gamma_{P-Q}$  为组分  $P \setminus Q$  间的展宽系数。 实现波长调制技术常用的方法是在可调谐半导体激光器中注入低频锯齿扫描信号和高频正弦调制 信号,实现对激光器出光频率和强度的调制。加入 调制后的激光频率v(t)和激光器的出光强度 I<sub>0</sub>(t) 可分别表示为

$$v(t) = v(t) + a\cos(\omega t), \qquad (4)$$

$$I_0(t) =$$

$$\overline{I}_0(t) [1 + i_0 \cos(\omega t + \varphi_1) + i_2 \cos(2\omega t + \varphi_2)], \qquad (5)$$

式中: $\overline{v}(t)$ 为激光器的中心频率; $\omega$ 为角频率( $\omega = 2\pi f$ , f 为频率);a 为调制深度, cm<sup>-1</sup>;  $\overline{I}_0(t)$ 为激光 器的中心光强; $i_0$ 、 $i_2$ 分别为归一化一次和二次调制 幅度; $\varphi_1$ 、 $\varphi_2$ 分别为一次和二次调制的初相位;频率 表达式中初相位取 0。这些参数均依赖于激光器本 身的调制特性。由于v(t)为时间t的偶函数,因而 透过率T[v(t)]也为t的偶函数,透过率的傅里叶 展开形式可以表示为

$$T[v(t)] = \sum_{k=0}^{+\infty} H_k[\bar{v}(t), a] \cos(k\omega t), \quad (6)$$

式中:*H<sub>k</sub>* 为*k* 阶傅里叶展开系数。透射强度的表达式为

$$I(t) = I_0(t) \cdot T[v(t)] =$$

$$\sum_{k=0}^{+\infty} [X_k \cos(k\omega t) + Y_k \sin(k\omega t)], \qquad (7)$$

式中: $X_k$ 、 $Y_k$ 分别为X、Y通道的k阶分量。

经过解调,得到扣除背景的 1*f* 归一化的 2*f* 信 号,表达式为<sup>[10]</sup>

$$C_{2f/1f\_bgsub} = \sqrt{\left[\frac{X_{2f}(t)}{R_{1f}} - \frac{X_{2f}^{0}(t)}{R_{1f}^{0}}\right]^{2} + \left[\frac{Y_{2f}(t)}{R_{1f}} - \frac{Y_{2f}^{0}(t)}{R_{1f}^{0}}\right]^{2}},$$
(8)

式中: $X_{2f}$ 、 $Y_{2f}$ 为经锁相放大器解调得到的 2f 的 X 分量和 Y 分量信号; $X_{2f}^{0}$ 、 $Y_{2f}^{0}$ 为 2f 的 X 分量和 Y 分量的背景信号; $R_{1f}$ 、 $R_{1f}^{0}$ 分别为双通道解调得到 的 1f 信号和背景。

## 3 模型建立

建立吸收模型,即根据光谱参数及初始流场条件模拟得到谐波信号,并根据流场参数对谐波信号 的依赖反演得到流场参数。模型建立流程如图1所 示。波长调制技术反演流场参数主要有全线型拟合 方法以及谐波信号峰值或峰值比方法。这两种方法 均要求模拟的流场条件尽可能与实际条件对应,谐 波信号与实测信号尽可能一致,故要求吸收模型所





首先测量激光器的调制参数,得到激光器的频 率-时间响应,根据数据库并结合实验室标定结果得 到杂合谱线参数,给定初始流场参数,得到谱线展 宽、吸光度,进而得到透过率函数,根据朗伯-比尔定 律,乘以测量的无吸收光强信号,得到吸收后的强度 信号;乘以参考信号经滤波得到 n 阶谐波信号  $C_{nf}$ , 进一步得到被 1f 归一化的 2f 信号  $C_{2f/1f}$ 。波长调 制技术对流场参数反演的本质是:将吸收模型得到 的谐波信号与吸收后的实测强度信号解调得到的谐 波信号进行比较,即模型中流场初始参数随实际测 量环境而变化,并保证模拟过程与实测过程尽可能 一致。选择表1所示的谱线参数,得到如图2所示 的吸光度和扣除背景的归一化谐波信号 C2f/1f bgsub (压强 p = 1 atm,水汽体积分数  $X_{H_0} = 1\%$ ,温度 T = 1500 K, 光程 L = 10 cm, 调制频率  $f_{Mod} =$ 200 kHz)。谱线参数包括谱线的中心频率  $v_0$ 、谱线 强度  $S(T_0)$ 、空气展宽系数  $\gamma_{air}$ 、空气展宽系数 对温 度的依赖系数  $n_{air}$ 、自展宽系数  $\gamma_{self}$ 、压力频移 系数δ。。









#### 3.1 激光器调制参数

激光器频率被调制的同时,其强度也被调制。开始研究调制光谱技术时,认为二者的相位差为常数,之 后被证实其值会随调制频率、注入电流、工作温度发生 变化。为了更好地描述频率-时间响应,将表达式写为

$$v(t) = \bar{v}(t) + \sum_{k=1}^{2} (a_k + b_k t + c_k t^2) \cos(k\omega t + \theta_k),$$
(9)

式中: $a_k$ 、 $b_k$ 、 $c_k$ 分别为k次信号成分的多项式系数; $\theta_k$ 为初始相位。

利用标准具对频率进行标定时,自由光谱范围 (FSR)针对不同工作波长的激光器进行标定,其方 法是同时扫描所选择的两条已知中心波数的吸收 线,得到适用于特定波长的自由光谱范围。图 3 是 中心波长为 1392 nm 的激光器同时采集的吸收信 号和标定信号。

经数学运算求得吸光度,本次扫描吸收中心分 别为7185.3943 cm<sup>-1</sup>和7185.5970 cm<sup>-1</sup>的两条水 汽吸收线。图4是吸光度曲线,根据吸收中心绝对 波数差值,推导出所用标准具 FSR 为 0.6916 cm<sup>-1</sup>。









Fig. 4 Absorbance and absorption center

根据以上方法得到精确的 FSR,对激光器的频 率-时间响应进行标定,标定的依据是激光器出光强 度和频率同时被调制,频率变化落后于强度变化,强 度变大时频率降低,并且在标定时,确保寻峰准确, 不遗漏。利用(8)式得到精确的激光器频率-时间响 应如图 5 所示。

该激光器的频率-时间响应数学表达式为





Fig. 5 Frequency-time response of laser

#### 3.2 谱线参数选取

谱线参数包括中心频率  $v_0$ 、 $T_0$ (参考温度 296 K)及该温度下的线强  $S(T_0)$ 、空气展宽系数  $\gamma_{air0}$ 、自展宽系数  $\gamma_{self0}$ 、压力频移系数 $\delta_0$  以及温度依 赖系数 n。某温度下的线强、展宽系数均影响该温 度下的谐波信号,常用的分子吸收光谱有 HITRAN 和 HITEMP,根据 HITRAN2012 和 HITEMP 两 个数据库谱线参数模拟吸光度(压强 p = 0.2 atm,  $X_{H_20} = 100\%$ ,温度 T = 1500 K,光程 L = 31.8 cm), 如图 6 所示。



图 6 两个数据库模拟得到的吸光度

Fig. 6 Absorption simulated on two databases

少了低态能级较高的吸收线,这些吸收在常温下很弱,对于燃烧流场,HITEMP数据库中的吸收更贴近实际吸收;HITEMP数据库中的谱线参数大多基于半经验模型和理论计算得到,所以模型中的谱线参数应尽可能选择实验室标定结果。吸收线型选择

Viogt 线型,该线型描述了多普勒展宽和压力展宽 两种展宽机制的作用。利用表1中的谱线参数,分 别模拟不同压强下考虑临近吸收和不考虑临近吸收 的吸光度,结果如图7所示。



Wavenumber /cm<sup>-1</sup>

图 7 不同压强下考虑临近吸收和不考虑临近吸收时模拟的吸光度

Fig. 7 Simulated absorbance at different pressures with and without considering near absorption

图 7 中给出了 X<sub>H<sub>2</sub>0</sub>=5%、光程 L=10 cm、温度 T=1500 K条件下,压强分别为1 atm 和10 atm 下模 拟得到的吸光度,可见,临近吸收对所选吸收线存在 影响。同样条件下加上高频正弦调制信号(调制频率 为 200 kHz),对模拟的吸收信号通过数字解调方法 得到各自扣除背景的 2*f*/1*f* 信号,如图 8 所示。



图 8 不同压强下考虑临近吸收和不考虑临近吸收时模拟的谐波信号。(a) 1 atm;(b) 10 atm

Fig. 8 Harmonic signals simulatedat different pressures with and without considering near absorption.

(a) 1 atm; (b) 10 atm

由图 8 可知,无论是常压还是高压,临近吸收同 样影响所选吸收线的谐波信号,并且压强越大,影响 越大。波长调制技术即利用谐波信号对流场参数进 行反演。实际测量得到的谐波信号必定受所选吸收 线以外的吸收的影响,将吸收模型与测量信号得到 的谐波信号进行直接比较时,要求模型中的谱线参 数应尽可能完备。

# 4 实 验

为验证建立的吸收模型的实用性,利用近红外 水汽吸收,结合波长调制技术进行高温流场温度的 反演实验。实验选取吸收中心为 7185.60 cm<sup>-1</sup>和 (PID)温度模块控制,可根据需要设定温度。炉膛 6807.83 cm<sup>-1</sup>的两条吸收线,两条吸收线的归一化 二次谐波信号的峰值比随温度而单调变化<sup>[12]</sup>,利用 该关系反演流场温度。实验装置如图 9 所示。

当设定温度 T = 1000 K、压强为 1.34 atm 时, 解调得到的 7185.60 cm<sup>-1</sup>和 6807.83 cm<sup>-1</sup>两条吸 收线的谐波信号及峰值如图 10 所示。

两只激光器均为日本 NEL 公司生产的分布反 馈式半导体激光器,中心波长分别为 1392 nm 和 1469 nm,其锯齿扫描频率和正弦调制频率均为 1.1 kHz和 322 kHz。恒温池为科晶公司生产的型 号为 1800X 的管式高温炉,炉膛中间有长度为 31.8 cm的恒温流场,高温炉温度由比例积分微分 内的压强由德国浦发公司生产的型号为 CCR-361



图 9 实验装置简图

Fig. 9 Diagram of experimental setup



图 10 扣除背景的 2f/1f 信号。(a)吸收中心为 7185.60 cm<sup>-1</sup>; (b)吸收中心为 6807.83 cm<sup>-1</sup> Fig. 10 Signals of 2f/1f with background subtracted. (a) Central frequency is 7185.60 cm<sup>-1</sup>; (b) central frequency is 6807.83 cm<sup>-1</sup>

的真空计测量。

实验过程设定 7 个温度段,如图 11 所知,每隔 100 K 设定一个温度阶梯,从 900 K 升到 1500 K,每 个温度阶梯连续采集 100 组数据,对其结果分段计 算测量得到的平均温度、绝对误差、相对误差以及标 准差,如表 2 所示。

测量温度与设定温度的最大绝对误差为 27.7 K,最大相对误差为 3.1%,最大标准差为 12.7 K,吻合得较好,验证了模型的准确性。误差来 源主要有4个方面:1)模型中光谱参数带来的误差; 2)激光器调制参数测量带来的误差;3)压强、光程直 接测量带来的误差;4)恒温区流场不稳定带来的误



Fig. 11 Set and measured temperatures

差。各温度阶梯测量结果的最大偏差出现在 900 K,其原因主要是所选的中心波长为 温度分析

Table 2	Analysis	of	temperature

表 2

_					
	Set temperature /K	Average temperature /K	Absolute error /K	Relative error / ½	Standard deviation /K
	900	927.7	27.2	3.1	12.7
	1000	1002.0	2.0	0.2	12.0
	1100	1112.6	12.6	1.1	12.7
	1200	1222.5	22.5	1.9	5.7
	1300	1323.3	23.3	1.8	4.6
	1400	1379.1	-20.9	-1.5	4.6
	1500	1478.2	-21.8	-1.5	9.8

6807.83 cm<sup>-1</sup>的吸收线低态能级为 3319.4 cm<sup>-1</sup>,相 对较大,在900 K时线强较弱,对应的谐波信号相对 较弱,导致误差较大。随着温度上升,误差降低。通 过对高温炉温度的精确测量,验证了波长调制吸收 光谱模型的准确性。

# 5 结 论

研究了基于波长调制技术的吸收模型精确建立 方法,吸收模型建立的准确性直接影响流场参数反 演的准确性。以H<sub>2</sub>O为目标分子,重点讨论激光器 频率-时间响应精确标定,提出了一种简单实用的 FSR标定方法。另外,在燃烧流场应用领域,谱线 参数相对复杂,谱线参数参考具有更多"热线"吸收 的HITEMP数据库并对其标定。利用建立的吸收 模型测量了稳定高温流场温度,测量的最大相对误 差为 3.1%,验证了模型的准确性,有利于波长调制 技术在燃烧流场诊断方面的应用。

### 参考文献

- [1] Sun K, Chao X, Sur R, et al. Analysis of calibration-free wavelength-scanned wavelength modulation spectroscopy for practical gas sensing using tunable diode lasers [J]. Measurement Science and Technology, 2013, 24(12): 125203.
- [2] Kan R F, Xia H H, Xu Z Y, et al. Research and progress of flow field diagnosis based on laser absorption spectroscopy [J]. Chinese Journal of Lasers, 2018, 45(9): 0911005.
  阚瑞峰,夏晖晖,许振宇,等.激光吸收光谱流场诊断技术应用研究与进展[J].中国激光, 2018, 45(9): 0911005.
- [3] Goldenstein C S. Wavelength-modulation spectroscopy for determination of gas properties in hostile environments [D]. Stanford: Stanford University, 2014.
- [4] Sur R, Sun K, Jeffries J B, et al. Scannedwavelength-modulation-spectroscopy sensor for CO, CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub> and H<sub>2</sub>O in a high-pressure engineeringscale transport-reactor coal gasifier[J]. Fuel, 2015,

150: 102-111.

- [5] Goldenstein C S, Spearrin R M, Jeffries J B, et al. Infrared laser-absorption sensing for combustion gases [J]. Progress in Energy and Combustion Science, 2017, 60: 132-176.
- [6] Goldenstein C S, Schultz I A, Spearrin R M, et al. Scanned-wavelength-modulation spectroscopy near 2.5 μm for H<sub>2</sub>O and temperature in a hydrocarbonfueled scramjet combustor [J]. Applied Physics B, 2014, 116(3): 717-727.
- Sun K, Sur R, Chao X, et al. TDL absorption sensors for gas temperature and concentrations in a high-pressure entrained-flow coal gasifier [J].
   Proceedings of the Combustion Institute, 2013, 34 (2): 3593-3601.
- [8] Wilson G V H. Signal amplitudes of modulationbroadened Lorentz and Gaussian magnetic resonances
   [J]. Journal of Applied Physics, 1965, 36 (11): 3505-3506.
- [9] Philippe L C, Hanson R K. Laser diode wavelengthmodulation spectroscopy for simultaneous measurement of temperature, pressure, and velocity in shock-heated oxygen flows [J]. Applied Optics, 1993, 32(30): 6090-6103.
- [10] Sun K. Utilization of multiple harmonics of wavelength modulation absorption spectroscopy for practical gas sensing [D]. Stanford: Stanford University, 2013.
- [11] Goldenstein C S, Schultz I A, Jeffries J B, et al. Two-color absorption spectroscopy strategy for measuring the column density and path average temperature of the absorbing species in nonuniform gases [J]. Applied Optics, 2013, 52 (33): 7950-7962.
- [12] Sun P S, Zhang Z R, Xia H, et al. Study on realtime temperature measurement based on wavelength modulation technology[J]. Acta Optica Sinica, 2015, 35(2): 0230001.
  孙鹏帅,张志荣,夏滑,等.基于波长调制技术的温 度实时测量方法研究[J].光学学报, 2015, 35(2): 0230001.