

基于多次谐波联合分析的气体浓度反演方法

刘紫怀^{1***}, 阳春华^{1**}, 罗旗舞^{1*}, 朱高峰²

¹中南大学自动化学院, 湖南 长沙 410083;

²湖南人文科技学院信息学院, 湖南 娄底 417000

摘要 鉴于 2 次谐波外的其他谐波成分中依然蕴含着浓度信息, 提出了基于 2 次+4 次谐波、2 次+4 次+6 次谐波、2 次+4 次+6 次+8 次谐波的三种浓度反演方法, 推导出各自的气体浓度反演表达式, 评估了所提反演方式对应的最佳调制度, 分析了气体浓度检测系统中噪声干扰的主要存在形式, 在理论上证明了所提出的联合多次谐波分析方法可以显著提升噪声抑制能力, 并给出了用于参考的实验方案。仿真结果表明: 与基于 2 次谐波峰值的浓度反演方法相比, 2 次+4 次谐波可以使浓度反演误差降低 31.38%, 2 次+4 次+6 次谐波可以使浓度反演误差降低 42.03%, 2 次+4 次+6 次+8 次谐波可以使浓度反演误差降低 47.45%。

关键词 光谱学; 谐波联合分析; 可调谐半导体激光吸收光谱; 洛伦兹线型展开; 气体浓度反演

中图分类号 O657.38

文献标识码 A

doi: 10.3788/AOS201939.1030001

Gas Concentration Inversion Method Based on Multiple Harmonic Joint Analysis

Liu Zihuai^{1***}, Yang Chunhua^{1**}, Luo Qiwu^{1*}, Zhu Gaofeng²

¹School of Automation, Central South University, Changsha, Hunan 410083, China;

²School of Information, Hunan University of Humanities, Science and Technology, Loudi, Hunan 417000, China

Abstract In view of the fact that other harmonic components besides the second harmonic still contain concentration information, three concentration inversion methods based on 2nd-/4th-harmonics, 2nd-/4th-/6th-harmonics, and 2nd-/4th-/6th-/8th-harmonics, as well as their corresponding expressions, are presented while the optimal value of the modulation depth for each inversion method is evaluated. The main forms of noise interference in gas concentration detection systems are also analyzed and the usefulness of multiple harmonic analysis for noise suppression is proved theoretically. Finally, an experimental verification scheme is given for reference. Our simulation's results indicate that the above methods can reduce concentration inversion errors by 31.38%, 42.03%, and 47.45%, respectively, as compared with the 2nd-harmonic-based method.

Key words spectroscopy; harmonic joint analysis; tunable diode laser absorption spectroscopy; Lorentz linear expansion; gas concentration inversion

OCIS codes 300.1030; 300.6260; 300.6380

1 引 言

可调谐半导体激光吸收光谱(TDLAS)技术在气体检测领域已有近 40 年的发展^[1-2], 在检测气体的温度、浓度、压力、流速等方面都有着广泛的应用^[3-7]。早期的 TDLAS 气体浓度检测技术采用的是直接吸收法, 选取吸收谱线的峰值或谱线面积作为浓度反演的依据^[8], 理论阐述相对简单。但随着

对气体检测极限要求的提高, 加上某些气体(如氧气)的吸收强度比较弱, 利用光谱吸收法检测存在很大困难。现如今, 基于 TDLAS 的波长调制光谱技术(TDLAS-WMS)已成为最常用的探测方法^[9-10], 其检测极限更小, 分辨率更高。该技术最早由 Arndt^[11]提出, 之后由 Reid 和 Labrie^[12]完成了实验证明。Axner 等^[13]在 Arndt 理论的基础上, 进一步给出了更高次谐波的近似表达式。为了消除调制度

收稿日期: 2019-03-25; 修回日期: 2019-04-19; 录用日期: 2019-05-23

基金项目: 国家自然科学基金面上项目(61873282)、国家自然科学基金重点项目(61533021)、国家自然科学基金创新研究群体科学基金(61621062)

* E-mail: luoqiwu_csu@163.com; ** E-mail: ychh@csu.edu.cn; *** E-mail: liuzihuai@csu.edu.cn

和光强变化对检测精度的影响, Rieker 等^[14] 和 Li 等^[15] 改进了这一理论, 引入了 1 次谐波对 2 次谐波的归一化处理, 提高了反演依据的信噪比。此外, Sun 等^[16] 对高次谐波进行研究后发现, 对于某些特殊环境(如高压), 高次谐波具有更强的抗干扰能力。Garner 等^[17] 也发现高次谐波中蕴含着更丰富的信息, 如气体的温度、压力等。

为了充分利用各次谐波成分中蕴含的气体浓度信息, 进一步提高浓度反演判据的信噪比, 本文提出了一种多次谐波联合的高精度浓度反演方法, 依据 Axner 等^[13] 和 Martin 等^[18] 的相关研究, 将运算相对复杂的 Voigt 线型简化为 Lorentz 线型, 再采用 Fourier 展开得到了各次谐波分量的展开式, 进而推导出了多种联合方式下的浓度反演公式, 评估了不同方式下的最优调制制度取值, 同时在理论上证明了联合多次谐波峰值特征比二次谐波峰值特征对系统噪声的抑制作用更为显著。

本文的研究成果包括以下几个方面: 1) 在现行基于 2 次谐波峰值特征的浓度反演的基础上, 引入了 4 次、6 次和 8 次谐波的峰值特征, 形成了多次谐波联合的高精度气体浓度反演方法; 2) 给出了 3 种典型的谐波联合方式, 包括 2 次+4 次谐波、2 次+4 次+6 次谐波、2 次+4 次+6 次+8 次谐波, 并推导了它们各自的气体浓度反演表达式以及它们对应的最优调制制度取值; 3) 通过仿真证明了本文所提联合多次谐波气体浓度反演方法比传统的二次谐波分量气体浓度反演方法具有更好的过程噪声抑制效果; 4) 公开了一种基于多通道并行锁相解调谐波分析的 FPGA (Field Programmable Gate Array) 实验方案以及具体的实施步骤, 供读者验证参考。

2 基本原理

2.1 TDLAS 技术概述

TDLAS 技术^[1-2, 11-13, 19-22] 的基本原理概述如下: TDLAS 技术利用了激光二极管的波长扫描和电流调谐特性, 通过改变驱动电流来控制输出激光的波长, 从而实现对气体吸收谱线的扫描, 再使用吸收谱线解调后的谐波峰值来反演气体浓度。其中调制后的驱动电流为

$$i_0(t) = i_c + i_a \cos(\omega t), \quad (1)$$

式中: ω 为调制频率; i_c 为激光器的中心注入电流; i_a 为高频调制电流信号的幅值; t 为时间。一般正弦调制信号的频率远大于中心注入电流的扫描频

率。此时输出激光的瞬时频率和光强的调制振幅均与注入电流的调制振幅呈线性关系, 即 $k_1 v_m = k_2 I_a = k i_a$, 其中 k, k_1, k_2 均为常数, I_a 和 v_m 分别为转换后的激光强度和激光瞬时频率的调制幅度, 所以激光器输出的瞬时频率和光强分别为

$$v = v_c + v_m \cos(\omega t), \quad (2)$$

$$I_0(t) = I_c + I_a \cos(\omega t) = I_c [1 + \alpha \cos(\omega t)], \quad (3)$$

式中: v_c 为激光的中心频率; I_c 为激光的中心光强, 也称平均光强; α 为归一化的幅值, 其值等于 I_a/I_c 。

根据 Lambert-Beer 吸收定律, 强度为 I_0 、频率为 v 的单色激光通过长度为 L 的吸收介质后, 在接收端的光强 I 为

$$I(v, t) = I_0(t) \exp[-S(T)NLPg(v)], \quad (4)$$

式中: $S(T)$ 和 P 分别为温度和压强对吸收强度的影响; $g(v)$ 为归一化的洛伦兹线型函数; T 为气体温度; N 为气体的体积分数。

由于 $-S(T)NLPg(v) \ll 1$, 因此(4)式往往被简化为

$$I(v, t) = I_0(t) [1 - S(T)NLPg(v)], \quad (5)$$

$g(v)$ 的具体表达式为

$$g(v) = \frac{1}{2\pi} \frac{\gamma}{(v - v_0)^2 + \left(\frac{\gamma}{2}\right)^2}, \quad (6)$$

$$\gamma = 2\gamma_{\text{air}} \left[\frac{296}{S(T)} \right]^q P, \quad (7)$$

式中: v_0 为气体吸收中心频率; γ 为吸收谱线半峰全宽(FWHM), 由所处的温度和压强决定; γ_{air} 为大气展宽系数; q 为温度系数。

结合(2)式至(7)式可以推导出被气体吸收后的光强为

$$I(v, t) =$$

$$I_c \left[1 + \alpha \cos(\omega t) - S(T)NLP \frac{2}{\pi\gamma} S(x, m) \right], \quad (8)$$

$$S(x, m) = \frac{1}{1 + [x + m \cos(\omega t)]^2}, \quad (9)$$

式中: m 为调制制度, 其表达式为

$$\begin{cases} m = \frac{2v_m}{\gamma}, & m > 0 \\ x = \frac{2(v_c - v_0)}{\gamma}, & x \in \mathbf{R} \end{cases}. \quad (10)$$

对(8)式进行整理后可得被测气体吸收谱线的归一化洛伦兹线型为

$$I_c [1 + \alpha \cos(\omega t)] - I(v, t) =$$

$$S(T)NLP \frac{2}{\pi\gamma} S(x, m), \quad (11)$$

再对(11)式右侧进行 Fourier 展开,同时记 H_{nf} 为展开后第 n 次谐波分量的幅值,则可得

$$H_{nf} = \frac{2}{\pi\gamma} S_n(x, m) LPS(T) N, \quad n \geq 1. \quad (12)$$

根据文献[11]对经正弦调制后洛伦兹线型展宽的研究结论可以推知,当 m 一定时, $x=0$ 可以取到偶次谐波分量的最值,也就是用于浓度反演的谐波峰值,此时正好有 $v_c = v_0$,即激光器当前的中心频率等于气体吸收光谱的中心频率,吸收最为明显。而此时的奇次谐波分量均为 0,故不考虑奇次谐波的影响。谐波峰值用变量 $H_{nf|x=0}$ 表示,为了便于计算和比较,将谐波峰值均取正值,所以吸收谱线的偶次谐波峰值可以表示为

$$|H_{nf|x=0}| = \frac{2}{\pi\gamma} |S_n(0, m)| LPS(T) N, \quad n = 2, 4, 6 \dots \quad (13)$$

由(13)式可知,浓度与各偶次谐波峰值均呈线性关系,所以多次谐波联合的气体浓度反演的公式可描述为

表 1 偶次谐波函数关于调制度的表达式

Table 1 Expressions of even harmonic functions with different modulation depths

$S_i(0, m)$	Expression
$S_2(0, m)$	$\frac{2}{m^2} \left(2 - \frac{2+m^2}{\sqrt{1+m^2}} \right)$
$S_4(0, m)$	$-\frac{2}{m^4} \left[4(2+m^2) - \frac{8+8m^2+m^4}{\sqrt{1+m^2}} \right]$
$S_6(0, m)$	$\frac{2}{m^6} \left[2(16+16m^2+3m^4) - \frac{32+48m^2+18m^4+m^6}{\sqrt{1+m^2}} \right]$
$S_8(0, m)$	$-\frac{2}{m^8} \left[8(16+24m^2+10m^4+m^6) - \frac{128+256m^2+160m^4+32m^6+m^8}{\sqrt{1+m^2}} \right]$

依据多次谐波联合的气体浓度反演理论,再结合表 1 和(14)式,可以推导出基于 2 次+4 次谐波、2 次+4 次+6 次谐波、2 次+4 次+6 次+8 次谐波这 3 种浓度反演方法的具体计算公式,传统的基于 2 次谐波的浓度反演公式也被一同列出。

基于 2 次谐波的气体浓度反演公式为

$$N_2 = \frac{|H_{2f|x=0}|}{\frac{2}{\pi\gamma} |S_2(0, m)| LPS(T)} =$$

$$N = \frac{\sum_{i=2}^n |H_{nf|x=0}|}{\frac{2}{\pi\gamma} \sum_{i=2}^n |S_i(0, m)| LPS(T)}, \quad n = 2, 4, 6 \dots, \quad (14)$$

式中: $H_{nf|x=0}$ 表示第 i 次谐波的峰值; $S_i(0, m)$ 表示在 $x=0$ 时,对正弦调制后的标准洛伦兹线型进行傅里叶展开后得到的第 i 次谐波分量的幅值。 m 是一个动态值,又被称作调制度,在激光器当前中心频率等于气体吸收光谱中心频率的条件下,使得 $\sum_{i=2}^n |S_i(0, m)|$ 取值最大的调制度被称为最佳调制度。此时 $\sum_{i=2}^n |H_{nf|x=0}|$ 也将取到最大值。

2.2 多次谐波联合的气体浓度反演

本文所提出的基于多次谐波联合分析的气体浓度反演方法,主要是针对 2 次、4 次、6 次和 8 次谐波进行研究,对应更高次谐波的研究本文暂不涉及。依据 Axner 等^[13]的研究结论可得标准洛伦兹线型展开后的偶次谐波峰值与调制度的关系,如表 1 所示。

$$\frac{|H_{2f|x=0}|}{\frac{2}{\pi\gamma} \frac{2}{m^2} \left(\frac{2+m^2}{\sqrt{1+m^2}} - 2 \right) LPS(T)} = \frac{|H_{2f|x=0}|}{\frac{4}{\pi\gamma m^2} \left(\frac{2+m^2}{\sqrt{1+m^2}} - 2 \right) LPS(T)}. \quad (15)$$

基于 2 次+4 次谐波的气体浓度反演公式为

$$N_{2+4} = \frac{|H_{2f|x=0}| + |H_{4f|x=0}|}{\frac{2}{\pi\gamma} [|S_2(0,m)| + |S_4(0,m)|] LPS(T)} = \frac{|H_{2f|x=0}| + |H_{4f|x=0}|}{\frac{2}{\pi\gamma} \left[\frac{2}{m^2} \left(\frac{2+m^2}{\sqrt{1+m^2}} - 2 \right) + \frac{2}{m^4} \left(\frac{8+8m^2+m^4}{\sqrt{1+m^2}} - 4(2+m^2) \right) \right] LPS(T)} = \frac{|H_{2f|x=0}| + |H_{4f|x=0}|}{\frac{4}{\pi\gamma m^2} \left(\frac{8+10m^2+2m^4}{m^2 \sqrt{1+m^2}} - \frac{8+6m^2}{m^2} \right) LPS(T)} \quad (16)$$

令 $B = \frac{2}{m^2} \left(\frac{2+m^2}{\sqrt{1+m^2}} - 2 \right)$, $C = \frac{2}{m^4} \left[\frac{8+8m^2+m^4}{\sqrt{1+m^2}} - 4(2+m^2) \right]$, $D = \frac{2}{m^6} \left[\frac{32+48m^2+18m^4+m^6}{\sqrt{1+m^2}} - 2(16+16m^2+3m^4) \right]$, 则基于 2 次+4 次+6 次谐波的气体浓度反演公式为

$$N_{2+4+6} = \frac{|H_{2f|x=0}| + |H_{4f|x=0}| + |H_{6f|x=0}|}{\frac{2}{\pi\gamma} (|S_2(0,m)| + |S_4(0,m)| + |S_6(0,m)|) LPS(T)} = \frac{|H_{2f|x=0}| + |H_{4f|x=0}| + |H_{6f|x=0}|}{\frac{2}{\pi\gamma} (B + C + D) LPS(T)} = \frac{|H_{2f|x=0}| + |H_{4f|x=0}| + |H_{6f|x=0}|}{\frac{4}{\pi\gamma m^2} \left(\frac{32+56m^2+28m^4+3m^6}{m^4 \sqrt{1+m^2}} - \frac{32+40m^2+12m^4}{m^4} \right) LPS(T)} \quad (17)$$

令 $E = \frac{2}{m^8} \left[\frac{128+256m^2+160m^4+32m^6+m^8}{\sqrt{1+m^2}} - 8(16+24m^2+10m^4+m^6) \right]$, 则基于 2 次+4 次+6 次+8 次谐波的气体浓度反演公式为

$$N_{2+4+6+8} = \frac{|H_{2f|x=0}| + |H_{4f|x=0}| + |H_{6f|x=0}| + |H_{8f|x=0}|}{\frac{2}{\pi\gamma} (|S_2(0,m)| + |S_4(0,m)| + |S_6(0,m)| + |S_8(0,m)|) LPS(T)} = \frac{|H_{2f|x=0}| + |H_{4f|x=0}| + |H_{6f|x=0}| + |H_{8f|x=0}|}{\frac{2}{\pi\gamma} (B + C + D + E) LPS(T)} = \frac{|H_{2f|x=0}| + |H_{4f|x=0}| + |H_{6f|x=0}| + |H_{8f|x=0}|}{\frac{4}{\pi\gamma m^2} \left(\frac{128+288m^2+216m^4+60m^6+4m^8}{m^6 \sqrt{1+m^2}} - \frac{128+224m^2+120m^4+20m^6}{m^6} \right) LPS(T)} \quad (18)$$

3 分析验证

3.1 最优调制度评估

实际上,多次谐波联合的气体浓度反演方法联合的是各个谐波分量幅值的最大值,也就是谐波峰值。采用不同的气体浓度反演方式,则对应的谐波联合峰值所处的最佳调制度也会有所差异。图 1~4 分别表示在上述 4 种气体浓度反演方式下谐波峰值 $\sum_{i=2}^n |S_i(0,m)|$ ($n=2,4,6,8$) 随调制度 m 的变化情况,同时图中还表明了 4 种方式下评估的最佳调制度的取值,以及此时对应的幅值高度。为了进一步进行比较与分析,将上述 4 种反演方式下所评估的最优调制度与其对应的幅值进行归纳,得到表 2。

其中 S_i 为 $\sum_{i=2}^n |S_i(0,m)|$ ($n=2,4,6,8$) 的缩写形式;

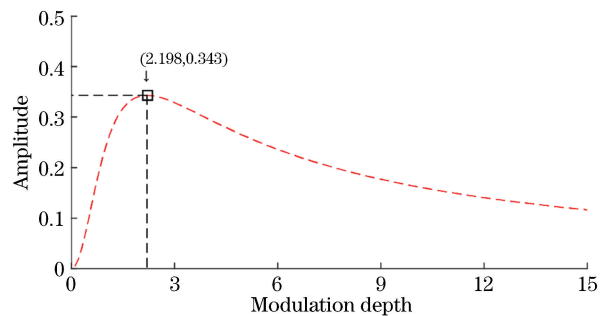


图 1 2 次谐波峰值与调制度的关系

Fig. 1 Relationship between second harmonic peak value and modulation depth

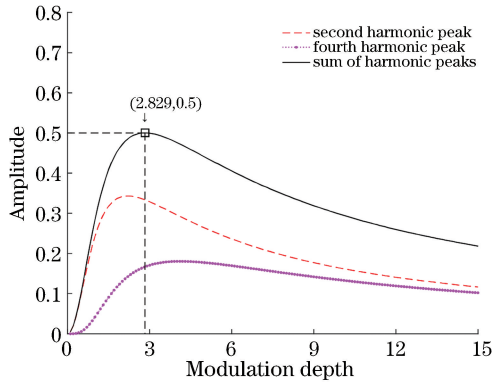


图 2 2 次+4 次谐波联合峰值与调制度的关系
Fig. 2 Relationship between joint peak value of 2nd-/4th-harmonics and modulation depth

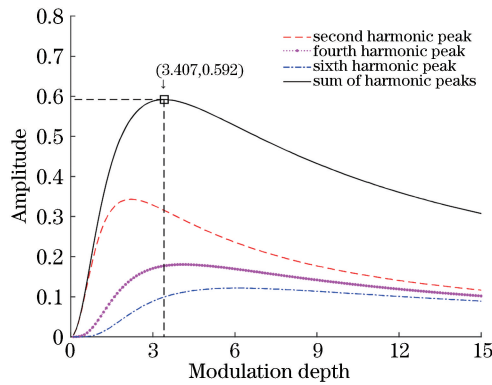


图 3 2 次+4 次+6 次谐波联合峰值与调制度的关系
Fig. 3 Relationship between joint peak value of 2nd-/4th-/6th-harmonics and modulation depth

表 2 不同反演方式下的最佳调制度、对应幅值及幅值比

Table 2 Optimal modulation depth, harmonic peak value, and peak value ratio under different inversion modes

Mode	$m_{optimal}$	$S_i (i=2,4,6,8)$	$S_i/S_2 (i=2,4,6,8)$
2nd-harmonics	2.198	0.343	1.000
2nd-/4th-harmonics	2.829	0.500	1.458
2nd-/4th-/6th-harmonics	3.407	0.592	1.726
2nd-/4th-/6th-/8th-harmonics	3.950	0.653	1.904

$$H = KAN, \quad (20)$$

式中: K 为拟合系数。结合(14)式和表 2 可知, 拟合系数 K 对应于不同浓度反演方式下的谐波联合峰值, 即

$$K = S_i, i = 2, 4, 6, 8, \quad (21)$$

所以, 每当检测系统获得一个谐波峰值, 即可推出对应气体的浓度为

$$N = \frac{H}{AK}. \quad (22)$$

在(20)式和(22)式的基础上, 分析气体浓度反演过程中可能存在的噪声, 通常可以将其归纳为内

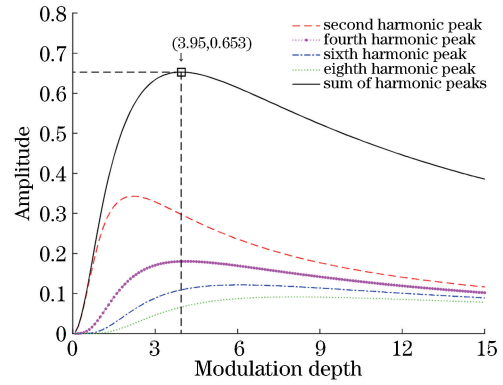


图 4 2 次+4 次+6 次+8 次谐波联合峰值与调制度的关系
Fig. 4 Relationship between joint peak value of 2nd-/4th-/6th-/8th-harmonics and modulation depth

$m_{optimal}$ 为最佳调制度。可以发现, 随着 4 次、6 次和 8 次谐波的逐步引入, 多次谐波联合峰值特征也更加明显。

3.2 噪声分析

在常规的浓度反演过程中, 通常将环境的温度和压强、气体的吸收光程、硬件相关参数看作不变, 并将 m 设定为最佳调制度。为了便于分析, 对(13)式中的部分参数简化为

$$A = \frac{2}{\pi\gamma} LPS(T). \quad (19)$$

根据(13)式, 浓度与各偶次谐波峰值均呈线性关系, 所以可以将从锁相器解调出的谐波峰值 H 和体积分数 N 进行线性拟合, 即

部系统噪声和外部环境噪声两类。

3.2.1 内部系统噪声

由于测量工具精度的限制, 以及硬件设备的不稳定工作, 锁相器在解调吸收谱线时往往会引入一定量的噪声, 从而使获取的谐波分量存在一定误差, 将其记为 Δ_1 。根据(22)式可以推导得到误差 Δ_1 对反演浓度的影响, 即

$$N' = \frac{H + \Delta_1}{AK} = \frac{H}{AK} + \frac{\Delta_1}{KA}, \quad (23)$$

进而可以得到

$$N' = N + \frac{\Delta_1}{KA}, \quad (24)$$

所以,在浓度上产生的绝对误差 Δ_{NA} 为

$$\Delta_{NA} = |N' - N| = \left| \frac{\Delta_1}{KA} \right|. \quad (25)$$

分析(25)式可以发现,当误差 Δ_1 一定时, K 越大,浓度的绝对误差 Δ_{NA} 越小,即对来自系统内部的噪声的抑制效果越明显。

3.2.2 外部环境噪声

在检测过程中,外部环境(如温度、压强与气体的吸收光程)不是绝对稳定的,均会发生微弱的变化。在这里,将这类噪声对参数 A 产生的误差记为 Δ_2 。但实际上,误差 Δ_2 的影响会直接反映到锁相放大器解调出的谐波分量上,此时再将谐波分量上对应产生的误差记为 Δ_3 。 Δ_2 与 Δ_3 的关系可以通过(20)式得到,即

$$\begin{cases} H + \Delta_3 = K(A + \Delta_2)N = KAN + K\Delta_2 N \\ \Delta_3 = K\Delta_2 N \end{cases} \quad (26)$$

同理可推出对浓度反演产生的绝对误差 Δ_{NB} ,即

$$\begin{cases} N' = \frac{H + \Delta_3}{AK} = \frac{H}{AK} + \frac{\Delta_3}{KA} \\ N' = N + \frac{\Delta_3}{KA} \\ \Delta_{NB} = |N' - N| = \left| \frac{\Delta_3}{KA} \right| = \left| \frac{\Delta_2 N}{A} \right| \end{cases} \quad (27)$$

分析(27)式可以发现,不论 Δ_2 的值或大或小, K 的大小对抑制由误差 Δ_2 所产生的浓度绝对误差 Δ_{NB} 无效。

综上所述,提高拟合系数 K 对抑制谐波测量误差和硬件设备不稳定输出有很好的理论效果,但对环境温度、压强以及吸收光程不稳定所带来的误差没有抑制作用。需要指出的是,在实际检测过程中,内部系统噪声对谐波信号的影响远远大于外部环境噪声的影响。

3.3 噪声抑制能力的比较

为了更充分地比较多次谐波联合的气体浓度反演方法与传统浓度反演方法在噪声抑制上的差异,在(25)式的基础上拓展得到

$$\Delta_{NA_i} = |N' - N| = \left| \frac{\Delta_1}{S_i A} \right|, \quad i = 2, 4, 6, 8, \quad (28)$$

同时引入参数 η 来表示噪声的抑制程度,即

$$\eta_i = \frac{\Delta_{NA_2} - \Delta_{NA_i}}{\Delta_{NA_2}} \times 100\%, \quad i = 2, 4, 6, 8. \quad (29)$$

结合表3与(14)式、(22)式可以得出以下结论,在不同的浓度反演方式下,多次谐波的联合程度越高,所选取的谐波峰值越明显,反演公式的拟合系数 K 值就越大,最终反演得到的气体浓度越精确。具体而言,当系统受到同等程度的过程噪声干扰时,2次+4次谐波可以使低浓度反演误差降低31.38%,2次+4次+6次谐波可以使浓度反演误差降低42.03%,2次+4次+6次+8次谐波可以使低浓度反演误差降低47.45%。

表3 不同反演方式下的噪声抑制程度

Table 3 Degree of noise suppression under different inversion modes

Mode	$\eta_i / \%$
2nd-harmonics	0
2nd-/4th-harmonics	31.38
2nd-/4th-/6th-harmonics	42.03
2nd-/4th-/6th-/8th-harmonics	47.45

3.4 验证方案

依据前文所提出的基于多次谐波联合分析的气体浓度反演方法,给出了用于实验验证的方案原理图,如图5所示。具体实施步骤如下:

1) 设置初始参数,获取实验数据。首先依据所测气体吸收波段的中心波长,完成对激光控制器、光电探测器等设备的初始化设置;再依据(10)式与表2将正弦调制信号设定为当前浓度反演方式下的最佳调制度 $m_{optimal}$;最后选取不同体积分数(0、10%、20%、30%、40%、50%、60%、70%、80%、90%、100%)的气体进行测量。

2) 解调谐波分量,联合多次谐波。首先将光电探测器采集到的信号与正弦调制信号的倍频信号进行正交相乘,其中 f 表示正弦调制信号的基频;再经过低通滤波获得各偶次谐波分量;接着对各个分量进行数据预处理,以保证谐波峰值为正,随后根据当前所选择的反演方式来组合各谐波分量;最后在对对应通道输出谐波联合信号。

3) 比较反演误差,分析联合效果。先从谐波联合信号中求取相应的谐波联合峰值,再将谐波联合峰值与所对应的气体的体积分数进行线性拟合,最后求取拟合函数的残差平方和,并将其作为误差分析标准。通过比较残差平方和的大小即可判断噪声抑制的效果。残差平方和越小表示抑制效果越明显。

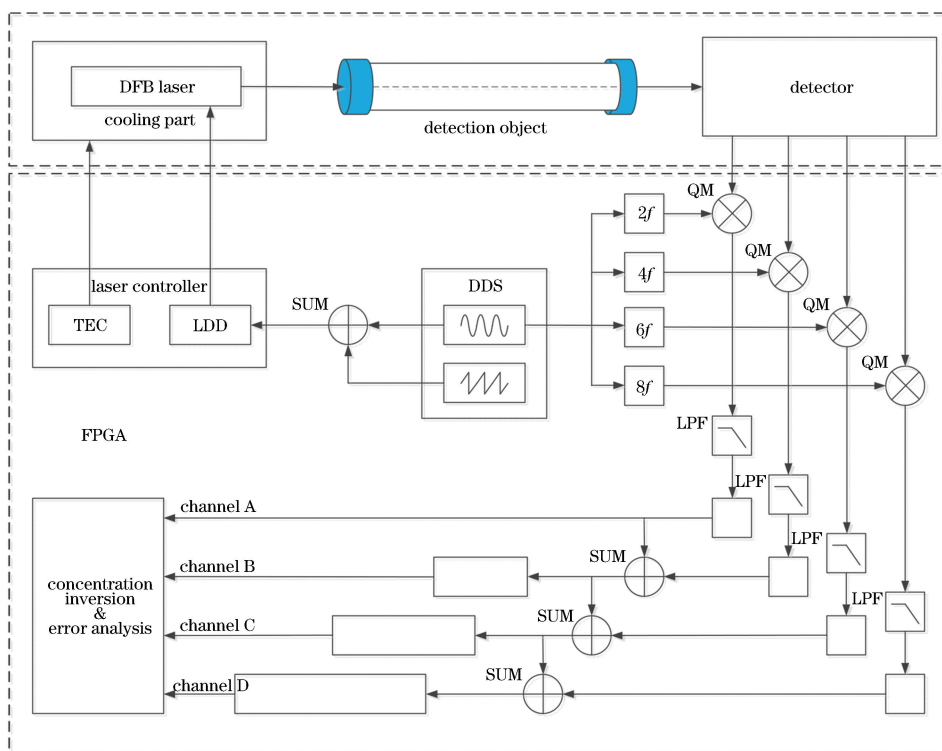


图 5 多次谐波联合分析方法原理图

Fig. 5 Diagram of multiple harmonic joint analysis method

4 结 论

通过利用其他偶次谐波成分中蕴含的浓度信息,提出了基于多次谐波联合分析的气体浓度反演理论,推导了3种典型谐波联合方式下的气体浓度反演表达式,评估了所提方式对应的最佳调制度。相比于传统的2次谐波峰值特征,联合多次谐波的峰值特征更为明显,信噪比更高,有利于抑制谐波测量误差和改善硬件的不稳定输出,对提升气体浓度反演精度有显著效果。结果表明:在相同强度噪声的干扰下,采用2次+4次谐波联合的气体浓度反演方法可以使误差降低31.38%,采用2次+4次+6次谐波联合的气体浓度反演方法可以使误差降低42.03%,采用2次+4次+6次+8次谐波联合的气体浓度反演方法可以使误差降低47.45%。为便于验证所提出理论,本文还给出了一种多通道并行锁相解调的谐波分析方法和FPGA实验方案,后续将进一步优化所提出的多次谐波联合分析理论。

参 考 文 献

[1] Reid J, Shewchun J, Garside B K, *et al.* High sensitivity pollution detection employing tunable diode lasers[J]. *Applied Optics*, 1978, 17(2): 300-307.
 [2] Hanson R K, Falcone P K. Temperature

measurement technique for high-temperature gases using a tunable diode laser [J]. *Applied Optics*, 1978, 17(16): 2477-2480.

- [3] Allen M G. Diode laser absorption sensors for gas-dynamic and combustion flows [J]. *Measurement Science and Technology*, 1998, 9(4): 545-562.
 [4] Eckbreth A C. Recent advances in laser diagnostics for temperature and species concentration in combustion [J]. *Symposium (International) on Combustion*, 1981, 18(1): 1471-1488.
 [5] Hanson R K. Combustion diagnostics: planar imaging techniques [J]. *Symposium (International) on Combustion*, 1988, 21(1): 1677-1691.
 [6] Kohse-Höinghaus K. Laser techniques for the quantitative detection of reactive intermediates in combustion systems [J]. *Progress in Energy and Combustion Science*, 1994, 20(3): 203-279.
 [7] 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.
 [8] Gao Y W, Zhang Y J, Chen D, *et al.* Measurement of oxygen concentration using tunable diode laser absorption spectroscopy [J]. *Acta Optica Sinica*,

- 2016, 36(3): 0330001.
高彦伟, 张玉钧, 陈东, 等. 基于可调谐半导体激光吸收光谱的氧气浓度测量研究[J]. 光学学报, 2016, 36(3): 0330001.
- [9] He Q X, Dang P P, Liu Z W, *et al.* TDLAS-WMS based near-infrared methane sensor system using hollow-core photonic crystal fiber as gas-chamber[J]. *Optical and Quantum Electronics*, 2017, 49 (3): 115.
- [10] Mantz A W. A review of the applications of tunable diode laser spectroscopy at high sensitivity [J]. *Microchemical Journal*, 1994, 50(3): 351-364.
- [11] Arndt R. Analytical line shapes for Lorentzian signals broadened by modulation [J]. *Journal of Applied Physics*, 1965, 36(8): 2522-2524.
- [12] Reid J, Labrie D. Second-harmonic detection with tunable diode lasers-comparison of experiment and theory[J]. *Applied Physics B*, 1981, 26 (3): 203-210.
- [13] Axner O, Kluczynski P, Lindberg Å M. A general non-complex analytical expression for the nth Fourier component of a wavelength-modulated Lorentzian lineshape function [J]. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 2001, 68(3): 299-317.
- [14] Rieker G B, Jeffries J B, Hanson R K. Calibration-free wavelength-modulation spectroscopy for measurements of gas temperature and concentration in harsh environments[J]. *Applied Optics*, 2009, 48 (29): 5546-5560.
- [15] Li H J, Rieker G B, Liu X, *et al.* Extension of wavelength-modulation spectroscopy to large modulation depth for diode laser absorption measurements in high-pressure gases [J]. *Applied Optics*, 2006, 45(5): 1052-1061.
- [16] Sun K, Chao X, Sur R, *et al.* Wavelength modulation diode laser absorption spectroscopy for high-pressure gas sensing [J]. *Applied Physics B*, 2013, 110(4): 497-508.
- [17] Garner R M, Dharamsi A N, Khan M A. Ultra-sensitive probe of spectral line structure and detection of isotopic oxygen [J]. *Applied Physics B*, 2018, 124: 15.
- [18] Martin P, Puerta J. Generalized Lorentzian approximations for the Voigt line shape[J]. *Applied Optics*, 1981, 20(2): 259-263.
- [19] Lackner M. Tunable diode laser absorption spectroscopy (TDLAS) in the process industries-a review[J]. *Reviews in Chemical Engineering*, 2007, 23(2): 65-147.
- [20] Werle P, Mücke R, Slemr F. The limits of signal averaging in atmospheric trace-gas monitoring by tunable diode-laser absorption spectroscopy (TDLAS) [J]. *Applied Physics B*, 1993, 57 (2): 131-139.
- [21] Linnerud I, Kaspersen P, Jaeger T. Gas monitoring in the process industry using diode laser spectroscopy [J]. *Applied Physics B*, 1998, 67(3): 297-305.
- [22] Silver J A. Frequency-modulation spectroscopy for trace species detection: theory and comparison among experimental methods[J]. *Applied Optics*, 1992, 31 (6): 707-717.