

基于空间外差的拉曼信号处理方法研究

王新强^{1,3}, 胡峰^{1,3}, 熊伟², 叶松^{1,3}, 李树^{1,3}, 甘永莹^{1,3}, 银珊^{1,3}, 王方原^{1,3*}

1. 桂林电子科技大学, 广西 桂林 541004
2. 中国科学院安徽光学精密机械研究所通用光学定标与表征技术重点实验室, 安徽 合肥 230031
3. 广西光电信息处理重点实验室, 广西 桂林 541004

摘要 空间外差拉曼光谱技术是近年兴起的一种超光谱探测技术, 它既具有拉曼光谱测量的非接触、快速、简单、可重复、无需样品准备等特点, 更具有空间外差的超光谱分辨率、高通量、无运动部件优点, 能在被测物质特征波长中心范围探测, 实现微弱拉曼光信号的直接测量。由于被测信号微弱、光学元件加工精度、器件封装及仪器安装误差等原因, 会导致空间外差拉曼光谱仪(SHRS)接收到的干涉图存在光强分布不均匀、干涉条纹倾斜或扭曲等现象, 从而使普通光谱恢复方法得到光谱信号准确度下降或无法识别。根据SHRS探测到的干涉图所存在的误差特点, 将二维傅里叶变换应用于SHRS干涉图的光谱复原, 提出基于二维频域谱重采样的最强直线方向光谱提取方法, 以实现SHRS光谱的获取。提取过程为: 将采集的目标干涉图进行二维傅里叶变换, 获得二维频谱图, 通过使用相同实验系统采集的单波长或多波长光源的二维频谱信号特征峰的位置信息, 拟合获取光信息强度最大方向直线方程。然后根据该直线与目标二维频谱图各列交点坐标位置, 确定重采样贡献像元及权重。对拟合直线方程经过的所有列像元进行重采样, 得到最终的光谱信号。将该方法应用于自行搭建实验系统采集的三叶草干涉图数据, 同时与其他方法光谱复原结果进行对比。结果表明: 与一维行平均光谱法比较, 该方法获取的光谱在探测波段中心区域信号强度更加明显, 同时消除了探测器热噪声的影响; 与二维频谱中心行直接提取法比较, 该方法是该方法的改进版本, 两者结果比较接近。但是由于考虑到干涉条纹 y 分量的影响, 沿二维频谱信号最强方向重采样得到的最终光谱, 其主峰半峰宽更窄、边频噪声强度更小, 且随着 y 分量的增加, 光谱复原效果及优势将越发明显。该方法是空间外差拉曼光谱技术数据处理的一种有益补充与尝试。

关键词 光谱学; 空间外差拉曼; 干涉图; 二维频谱图

中图分类号: O433.4 **文献标识码:** A **DOI:** 10.3964/j.issn.1000-0593(2022)01-0093-06

引言

相比于传统色散型拉曼光谱仪, 空间外差拉曼光谱仪(spatial heterodyne Raman spectrometer, SHRS)没有狭缝, 采用干涉方式获取目标信号, 具有测量光通量大, 光谱分辨率高的特点, 并且凭借着集成度高、体积小、重量轻、功耗小以及无运动部件等特点, 成为目前超光谱探测领域的研究热点^[1-3]。基于这些特点, SHRS在矿物质物化分析^[4-7]、行星表面物质探测^[8-10]、液/固体目标样品分析和探测^[11-12]等领域得到有效应用。然而SHRS应用主要针对微弱目标信号

进行精细探测, 微弱的光信号导致采集干涉图存在光强分布均匀性差的问题; 此外由于干涉仪组装中光栅刻线方向偏离理想位置, 干涉条纹出现倾斜或扭曲, 以上两缺点导致用普通方法复原的光谱准确度下降, 甚至无法有效提取信号, 需要采用新的处理方法对干涉图进行光谱复原与提取。

本文针对自行搭建的SHRS探测系统采集的三叶草干涉图, 采用二维傅里叶变换获取二维光谱, 基于理想干涉图一维与二维傅里叶变换关系, 即二维傅里叶变换频谱水平最强行与一维干涉图变换光谱对应的关系, 同时考虑干涉图存在条纹倾斜的问题, 通过采用同系统采集的钾盐二维频谱信号确定倾斜重采样直线, 以该直线通过像元的位置关系进行重

收稿日期: 2020-10-07, 修订日期: 2021-01-22

基金项目: 国家自然科学基金项目(41561079, 62005059), 中国科学院通用光学定标与表征技术重点实验室研究项目, 广西光电信息处理重点实验室基金项目(GD18104, GD18105)资助

作者简介: 王新强, 1977年生, 桂林电子科技大学电子工程与自动化学院正高级实验师 e-mail: xqwang2006@126.com

* 通讯作者 e-mail: wangfy@guet.edu.cn

采样, 最终获取复原光谱信号。该方法能够在抑制探测器热噪声的基础上, 有效实现 SHRS 光谱的提取。

1 基本理论

SHRS 探测原理如图 1 所示, 样品目标被激光器照射后产生拉曼散射光, 该散射光经过透镜准直后由分束器分成两束相干光, 两相干光束分别被光栅 G1, G2 以 θ 角反向衍射回分束器重新会聚, 两束光在出射面形成干涉条纹并由光学成像系统成像在 CCD 探测器上, 对干涉数据进行傅里叶变换可处理出样品目标的拉曼光谱。通过设计可使 SHRS 探测波段仅覆盖拉曼光谱的强特征光谱范围, 故可以避免瑞利散射光的影响。

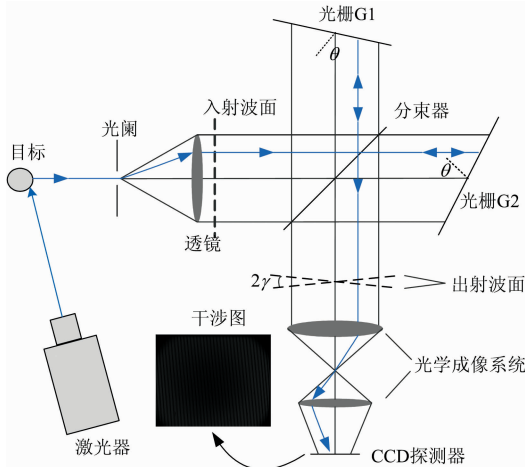


图 1 SHRS 探测原理图

Fig. 1 Schematic diagram of SHRS detection

SHRS 中 CCD 探测器获取的二维干涉图可以由表达式 (1) 来描述。理想情况下的二维干涉图信号频率 $f_x = 4(\sigma - \sigma_0)\tan\theta$ 只在 x 方向存在分量, 而 y 方向分量 f_y 为零。然而由于光栅安装误差导致刻线方向偏离理想位置, 在二维干涉图将引入 y 分量 (即 $f_y \neq 0$)。

$$I(x, y) = \int_0^{\infty} B(\sigma) \{1 + \cos[2\pi(f_x x + f_y y)]\} d\sigma \quad (1)$$

对于二维干涉图 f_x 信号是干涉条纹调制频率信号, 而 f_y 是由于系统不对称造成的噪声频率。以两光栅不对称为例, 其中一光栅沿 x 轴倾斜 α 角度, 此时的二维干涉图由表达式 (2) 所描述

$$I(x, y) = \int_0^{\infty} B(\sigma) \{1 + \cos\{2\pi[4(\sigma - \sigma_0)x \tan\theta + \sigma y \alpha]\}\} d\sigma \quad (2)$$

干涉图 $I(x, y)$ 经过二维傅里叶变换后的二维频谱图如式 (3) 所描述, 其中 f_x 和 f_y 是频域中的空间频率坐标。

$$C(f_x, f_y) = \iint I(x, y) \exp[-j2\pi(xf_x + yf_y)] dx dy \quad (3)$$

单色光理想干涉图的二维傅里叶变换频谱信号主要集中于 (f_x, f_y) 与 $(f_x + x_0, f_y)$ 两个区域, 但由于光栅的非对称性

导致频谱信号在 f_y 方向上有位移。设单色光 σ_0 的二维傅里叶变换频谱信号区域中心实际坐标为 $(f_{x_0}, f_y - f_{y_0})$ 与 $(f_{x_0} + x_0, f_y + f_{y_0})$, 其二维干涉图的调制形式可由 (4) 式来描述。

$$I_{\sigma_0}(x, y) = B(\sigma_0) \{1 + \cos[2\pi(f_{x_0} x + (f_y - f_{y_0}) y)]\} \quad (4)$$

2 实验部分

测试数据来源于自行搭建的实验系统, 图 2 为搭建的快速、直接探测物质拉曼光谱的检测系统, 该系统由拉曼信号探测单元与光谱数据提取单元两部分组成, 其中拉曼信号探测单元包括激光器、样品目标、SHRS。光谱数据提取单元由计算机存取干涉图和光谱数据提取组成。具体的空间外差拉曼光谱实测系统如图 3 所示, 采用了三叶草作为被测物, 中心波长为 680 nm 的激光器作为激发光源, 最大功率为 130 mW。SHRS 是中国科学院安徽光学精密机械研究所研制的 HEP-765-S, 设计基频波长为 756.5 nm, 使用 $600 \text{ gr} \cdot \text{mm}^{-1}$ 、闪耀波长为 750 nm 的光栅进行衍射, 光栅倾角为 13.1176° , 成像镜头根据干涉仪的需求所订制, 物面为 22.02×22.02 , 通光孔径 $< 30 \text{ nm}$, CCD 探测器为 CCD47-20AIMO(1024×1024)。仪器实测光谱波段范围为 759 ~ 769 nm, 光谱分辨率优于 0.1 nm。

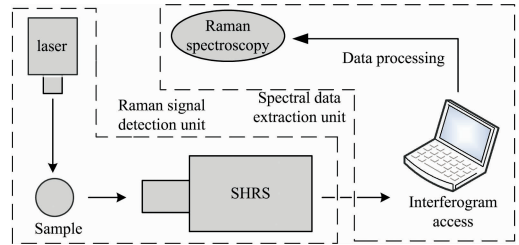


图 2 快速、直接探测物质拉曼光谱的检测系统结构图

Fig. 2 Structure diagram of the detection system for rapid and direct detection of material Raman spectra

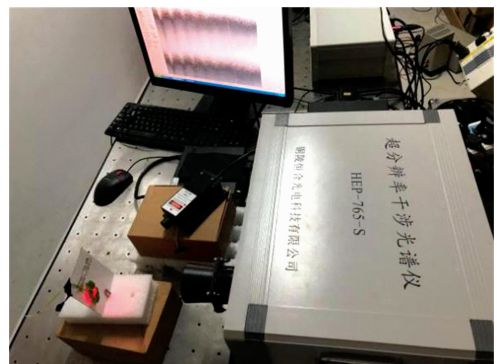


图 3 实验探测系统图

Fig. 3 Experimental detection system diagram

实验之前先设置采集的积分时间为 832 ms, 触发时间为 2 s。测量时首先将清洗、晾干后的三叶草固定在白板上, 然

后让激光器照射三叶草叶面位置，并确保激光器照射位置位于通光孔径的中心。最后在计算机中存储探测到的三叶草干涉图。激光器的电流强度为 0.75 A，室内温度为 24 °C，此次实验在黑暗条件下进行。

3 结果与讨论

图 4(a) 显示了 SHRS 系统探测到的三叶草干涉图，该干涉图存在干涉光强分布不均匀现象，只在干涉图的底部区域存在干涉光信号。实验系统采集到的干涉图与理想系统存在差异。为便于比较，后面将采用不同方法对干涉图进行处理，通过不同方法提取结果进行比较，说明本文方法的有效性。

采用了三种处理方法，第一种方法是将所有行干涉图进

行切趾、差分去基线、求和平均，然后将平均后的一维干涉图进行傅里叶变换，获取目标光谱。结果如图 4(b)和(c)所示，可见复原光谱中部区域信号低平，强度不明显，且伴随大量毛刺，光谱复原效果差。第二种方法是将所有行干涉图进行切趾、差分去基线、傅里叶变换获得行光谱，然后将行光谱进行求和平均，得到最终的平均光谱。结果如图 4(d)和(e)所示，可见光谱复原效果明显优于第一种方法，但是波段中部信号区域峰值仍小于左边的边频信号，且光谱中伴随有一些尖峰信号，这些尖峰来源于探测器热噪声。第三种方法是将干涉图进行二维傅里叶变换，得到二维频域光谱，提取中心最强行信号作为目标光谱。结果图 4(f)和(g)所示，可见复原光谱效果明显优于以上两种方法，波段中部信号明显，消除了探测器热噪声的影响。

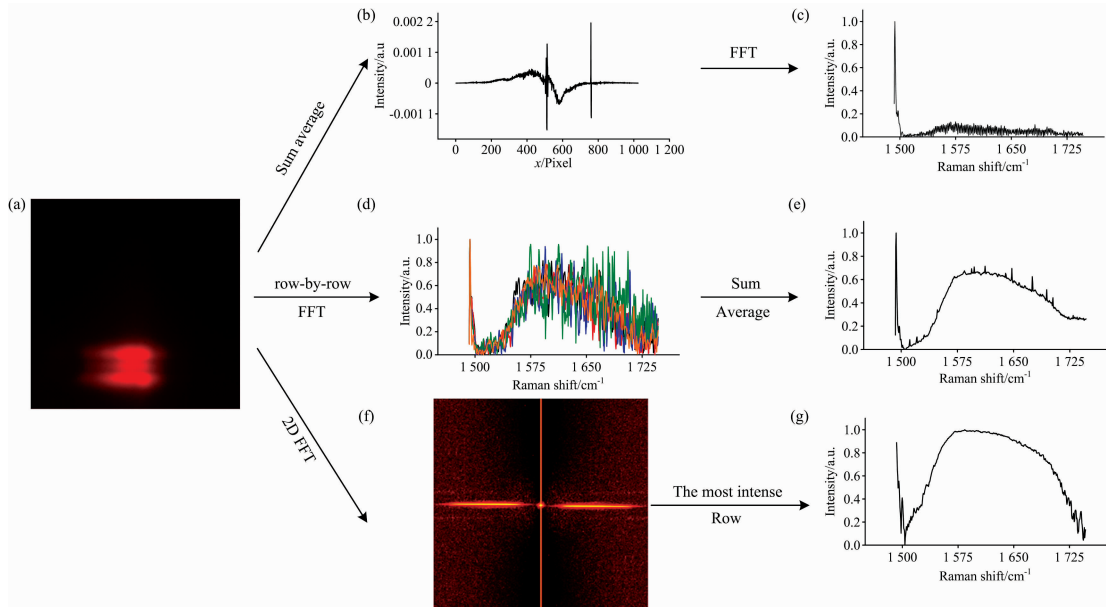


图 4 SHRS 干涉图处理与复原光谱

- (a): 三叶草二维干涉图; (b): 行平均干涉图; (c): 平均干涉图的傅里叶变换光谱;
(d): 各行傅里叶变换光谱; (e): 行光谱平均值; (f): 二维频谱图; (g): 中心行对应光谱

Fig. 4 SHRS interferogram processing and restoration spectra

- (a): Clover 2D interferogram; (b): Row average interferogram;
(c): Fourier transform spectrum of the mean interferogram; (d): Fourier transform spectrum of each row;
(e): Row spectral mean; (f): 2D spectrogram; (g): The center row corresponds to the spectrum

采用前文第三种方法进行 SHRS 光谱提取，虽然步骤简单、效果较好。但是当实验系统组装精度较差，光栅位置存在较大误差时，采集的干涉图条纹将出现明显倾斜，其二维傅里叶变换频谱信号如式(3)所示将出现 y 分量。此时如仍然以二维变换频谱的中心行作为目标光谱将会导致误差。

本文方法是在前文方法三的基础上进行改进，考虑干涉图条纹倾斜的影响，通过确定二维频谱图信号倾斜直线方程，以该直线方程为基准对原二维频谱图相应像元进行重采样，从而获得最终目标光谱信号。具体过程为：首先，设二维频谱图左顶点为坐标原点(0, 0)，过原点水平向右的方向为 X 轴正方向，过原点竖直向下的方向为 Y 轴正方向建立

直角坐标系。然后用同一实验系统采集的燃烧钾盐信号干涉图经二维傅里叶变换得到的频谱各峰值点拟合直线方程。图 5 显示了钾盐二维频谱图，其中有四个信号峰，对应坐标分别为：(61, 507)，(179, 508)，(847, 518)和(965, 519)，可见 4 个点的坐标并没有处在同一条水平直线上，说明该实验系统采集的干涉图条纹存在倾斜。利用以上四个峰值点拟合出一条直线方程如式(5)所示，

$$y = 0.01x + 510 \quad (5)$$

可以看出直线斜率是 0.01，用该系统采集的干涉图存在 y 分量，接下来将以该直线为采样基准对三叶草二维频谱图进行重新采样以获取最强信号光谱。

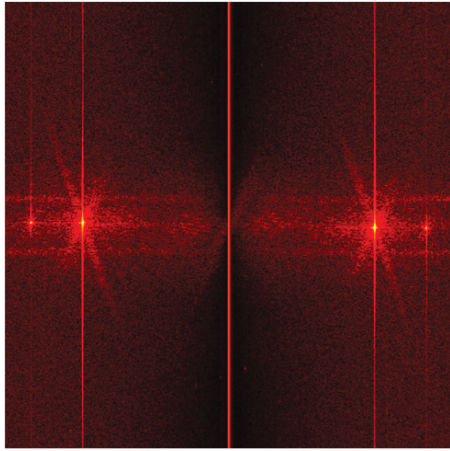


图 5 钾盐二维频谱图
Fig. 5 2D spectrogram of Sylvite

为计算方便,重采样沿原二维频谱图的列向开展,以式(5)方程通过各列的纵坐标确定采样贡献像元及权重,具体方法如图 6 所示。式(5)经过二维频谱中的某个像元②时(红色方块),与该像元的交点为 (x_0, y_0) ,因为像元的横纵坐标都为正整数,所以像元②的坐标为 $(x_0, \tilde{y}_0 + 1)$ (其中 \tilde{y}_0 为 y_0 向下取整),则像元①(黄色方块)的坐标为 (x_0, \tilde{y}_0) 。已知一个像元是一个单位面积为 1 的正方形,所以图中阴影部分就是拟合直线在 y 位置对频谱中像元②与像元①的重新采样。据图所知阴影部分占像元①面积的 $1 - \hat{y}_0$ 倍(其中 \hat{y}_0 为 y_0 的小数部分)、占像元②面积的 \hat{y}_0 倍,则拟合直线在 y 位置对三叶草的二维频谱图重新采样的结果为

$$I_{(x_0, y_0)} = I_{(x_0, \tilde{y}_0)}(1 - \hat{y}_0) + I_{(x_0, \tilde{y}_0 + 1)}\hat{y}_0 \quad (6)$$

因此 (x_0, \tilde{y}_0) , $(x_0, \tilde{y}_0 + 1)$ 为确定的重采样贡献像元, $1 - \hat{y}_0$, \hat{y}_0 为相应权重, I 为重采样像元光谱强度。按以上方法对三叶草二维频谱图所有列进行重采样即可得到最终目标光谱。

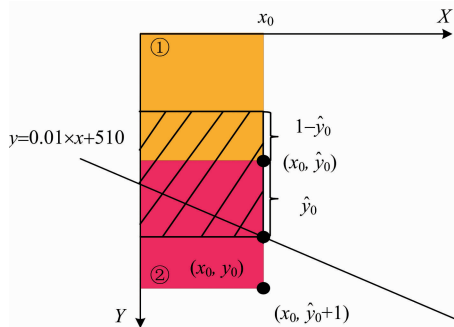


图 6 拟合直线与二维频谱图重采样
Fig. 6 Resampling the fitted line with 2D spectrogram

对比方法二、方法三和本文方法对三叶草干涉图的光谱提取结果(图 7 所示),可以看出本文方法得到的三叶草拉曼信号相对于方法二强度更大,图 7(c)在主要频率 $1525 \sim 1725 \text{ cm}^{-1}$ 区间相对于图 7(a)信号强度更加明显,能有效消除探测器热噪声影响;与方法三结果比较,本文方法结果与

之相对接近,主要原因是本实验系统组装精度较好,采集干涉图畸变较小的结果。但还是可以看出效果略有提升,体现在主峰信号半峰宽更窄,两边频噪声强度更低。可以预测,当实验系统误差较大时,本文方法的提取效果将更加明显。

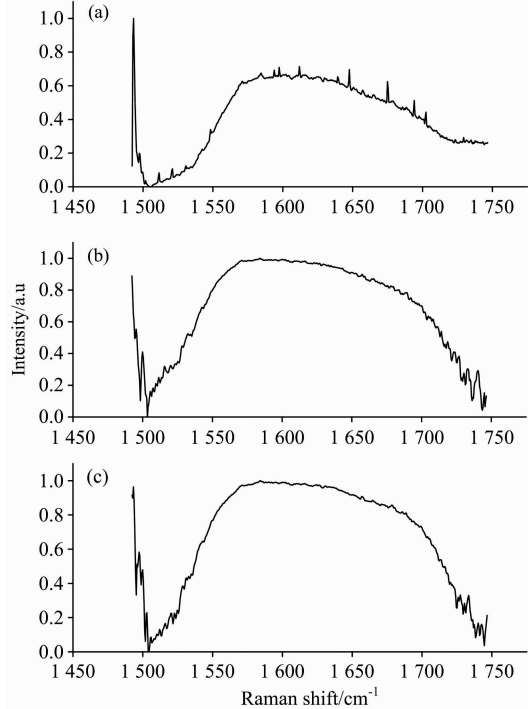


图 7 三种方法得到的三叶草拉曼光谱对比

- (a): 逐行傅里叶变换后相加取平均;
- (b): 二维频谱图中心行响应光谱;
- (c): 二维频谱图重采样直线对应光谱

Fig. 7 Comparison of Raman spectra of clover obtained by three methods

(a): Row by row Fourier transforms add and average; (b): The center row of 2D spectrogram corresponds to the spectrum; (c): The corresponding spectrum of the line is resampled in 2D spectrogram

4 结论

SHRS 在实验过程中,由于被测信号微弱、光学器件加工和仪器封装误差等原因会导致 CCD 采集到的干涉图存在干涉光强分布不均匀、条纹旋转或扭曲的现象,从而导致恢复信号精度下降或无法识别。本文提出了一种处理 SHRS 干涉图的方法,可以更有效地恢复目标光谱。该方法在对 SHRS 干涉图进行处理前,先将采集的二维干涉图进行二维傅里叶变换,获得二维频谱图,再通过用单波长或多波长光源的二维频谱特征峰位置进行最强方向直线拟合,然后以该直线为基准对被测物二维频谱图进行信号重采样,得到最强干涉方向的光谱信号。结果表明该方法处理过程简单,光谱复原效果好,可以有效消除探测器热噪声,提升光谱强度,自动实现光照不均匀及存在条纹倾斜或扭曲现象干涉图的光谱提取,是 SHRS 技术数据处理的一种有效尝试。

References

- [1] Qiu J, Li X T, Qi X D. *IEEE Photonics Journal*, 2019, 11(5): 6802612.
- [2] Ottaway J M, Allen A, Waldron A, et al. *Applied Spectroscopy*, 2019, 73(10): 1160.
- [3] Barnett P D, Angel S M. *Applied Spectroscopy*, 2017, 71(5): 988.
- [4] Egan M J, Angel S M, Sharma S K. *Journal of Raman Spectroscopy*, 2017, 48(11): 1613.
- [5] Egan M J, Acosta-Maeda T E, Angel S M, et al. *Journal of Raman Spectroscopy*, 2020, 51(9): 1794.
- [6] Gomer N R, Gordon C M, Lucey P, et al. *Applied Spectroscopy*, 2011, 65(8): 849.
- [7] Lamsal N, Angel S M. *Applied Spectroscopy*, 2015, 69(5): 525.
- [8] HU Guang-xiao, XIONG Wei, LUO Hai-yan, et al(胡广骁, 熊伟, 罗海燕, 等). *Spectroscopy and Spectral Analysis(光谱学与光谱分析)*, 2016, 36(12): 3951.
- [9] Egan M J, Angel S M, Sharma S K. *Applied Spectroscopy*, 2018, 72(6): 933.
- [10] Lamsal N, Sharma S K, Acosta T E, et al. *Applied Spectroscopy*, 2016, 70(4): 666.
- [11] Hu G X, Xiong W, Shi H L, et al. *Journal of Raman Spectroscopy*, 2016, 47(3): 289.
- [12] Gojani A B, Palasti D J, Paul A, et al. *Applied Spectroscopy*, 2019, 73(12): 1409.

Research on Raman Signal Processing Method Based on Spatial Heterodyne

WANG Xin-qiang^{1,3}, HU Feng^{1,3}, XIONG Wei², YE Song^{1,3}, LI Shu^{1,3}, GAN Yong-ying^{1,3}, YIN Shan^{1,3},
WANG Fang-yuan^{1,3*}

1. Guilin University of Electronic Technology, Guilin 541004, China
2. Key Laboratory of Optical Calibration and Characterization, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China
3. Guangxi Key Laboratory of Optoelectronic Information Processing, Guilin 541004, China

Abstract Spatial heterodyne Raman spectroscopy is a hyperspectral detection technology that has emerged in recent years. It has the characteristics of non-contact, fast, simple, repeatable and no sample preparation required for Raman spectroscopy, but also the advantages of high resolution, high throughput and no moving can detect signals in the characteristic wavelength center range of the measured realize the direct measurement of weak Raman optical signals. Due to the weak signal to be measured, the machining accuracy of optical components, and the errors caused by device packaging and instrument installation, the interferogram received by the spatial heterodyne Raman spectrometer (SHRS) will have uneven light intensity distribution, interference fringe tilt or distortion. Therefore, the accuracy of the spectrum signal obtained by the ordinary spectrum recovery method is reduced or even hard to be identified. According to the error characteristics of the interferogram detected by SHRS, the two-dimensional Fourier transform is applied to the spectral restoration of the SHRS interferogram and a method of extracting the strongest line direction spectrum based on two-dimensional frequency domain spectrum resampling is proposed. The extraction process is to perform a two-dimensional Fourier transform on the collected interferogram of the target to obtain a two-dimensional spectrogram. By using the position information of the characteristic peaks of the two-dimensional spectrum signal of the single-wavelength or multi-wavelength light source collected by the same experimental system, the linear equation of the maximum direction of the light information intensity is obtained by fitting. According to the coordinate position of the intersection point of the straight line and each column of the target two-dimensional spectrogram, the pixels and the weight contributed by the resampling are determined. All columns of pixels is resampled along the fitted linear equation to obtain the final spectral signal. The method is applied to the clover interferogram data, and the recovered spectrum is compared with those obtained by other methods. The results show: compared with the one-dimensional row average spectroscopy method, the spectrum obtained by this method has a more obvious signal intensity in the center area of the detection eliminates the influence of the noise at the same time; compared with the direct extraction method of the two-dimensional spectrum center row, it slightly improves the recovered spectrum. However, due to the influence of the y component of the interference fringe, the final spectrum obtained by resampling along the strongest direction has a narrower half-width of the main peak and a smaller side

frequency noise intensity. If the influence of the y component increases, the spectrum restoration effect of this method will become more obvious. This method is a useful supplement and an attempt for data processing of spatial heterodyne Raman spectroscopy.

Keywords Spectroscopy; Spatial Heterodyne Raman; Interferogram; 2D Spectrogram

(Received Oct. 7, 2020; accepted Jan. 22, 2021)

* Corresponding author

《光谱学与光谱分析》期刊社决定采用 ScholarOne Manuscripts 在线投稿审稿系统

《光谱学与光谱分析》期刊社与汤森路透集团签约,自 2010 年 12 月 1 日起《光谱学与光谱分析》决定采用 Thomson Reuters 旗下的 ScholarOne Manuscripts 在线投稿审稿系统。

- ScholarOne Manuscripts, 该系统不仅能轻松处理稿件,而且能提速科技交流。
- 全球已有 360 多家学会和出版社的 3 800 多种期刊选用了 ScholarOne Manuscripts 系统作为在线投稿、审稿平台,全球拥有超过 1 350 万的注册用户,代表着全球学术期刊在线投审稿的一流水平。
- ScholarOne Manuscripts 与 EndNote, Web of Science 无缝链接和整合;使科研探索、论文评阅和信息传播效率大为提高。
- ScholarOne Manuscripts 是汤森路透科技集团的一个业务部门,拥有丰富的学术期刊业务经验,为学术期刊提供综合管理工作流程系统,使期刊更有效管理投稿、同行评审、加工和发表过程,提高作者心中的专业形象,缩短论文发表时间,削减管理成本,帮助期刊提高科研绩效和实现学术创新。

《光谱学与光谱分析》采用“全球学术期刊首选的在线投稿审稿系统—ScholarOne Manuscripts”,势必对 2010 年 11 月 30 日以前向本刊投稿的作者在查阅稿件信息时,会带来某些不便,在此深表歉意!为了推进本刊的网络化、数字化、国际化进程,以实现与国际先进出版系统对接;为了不断提高期刊质量,加快网络化、数字化建设,加快与国际接轨的进程,希望能得到广大作者、读者们的支持与理解,对您的理解和配合深表感激。这是一件新事物,肯定有不周全、不完善的地方,让我们共同努力,不断改进和完善起来。

《光谱学与光谱分析》期刊社

2010 年 12 月 1 日