



DOI: 10.12086/oe.2019.180575

点测量激光吸收光谱技术理论分析

陈卫*, 伍越, 罗杰, 刘进博,
王磊, 朱新新, 朱涛

中国空气动力研究与发展中心超高速空气动力研究所, 四川 绵阳 621000

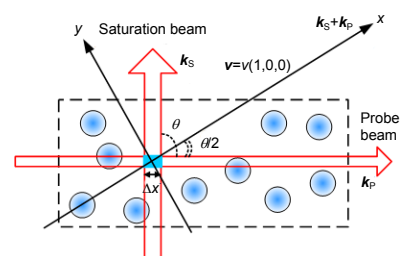
摘要: 点测量吸收光谱技术以饱和吸收为基本原理, 可有效克服可调谐二极管激光吸收光谱技术(TDLAS)的线测量缺陷, 通过探测光束与一同频的饱和光束交叉来提取交叉位置点处的信息, 实现具有毫米级空间分辨能力的点测量。本文对点测量吸收光谱技术进行了详细的理论分析, 推导了饱和光束和探测光束在任意交叉角度下的饱和吸收系数, 分析了饱和参数对吸收信号的影响。同时提出了一种针对微弱吸收信号的调制方法, 推导了饱和光束在高频正弦调制下的探测光一次谐波表达式, 并通过数值计算得到了验证。研究还表明, 不同阶次谐波信号具有相同的半高宽, 并且与无调制时的吸收信号半高宽一致, 因此利用多次谐波叠加可进一步提高谱线宽度测量的信噪比。

关键词: 吸收光谱技术; 点测量; 高空间分辨率; 微弱信号检测; 谐波

中图分类号: O433.1

文献标志码: A

引用格式: 陈卫, 伍越, 罗杰, 等. 点测量激光吸收光谱技术理论分析[J]. 光电工程, 2019, 46(10): 180575



Theoretical research of point-measurement laser absorption spectroscopy

Chen Wei*, Wu Yue, Luo Jie, Liu Jinbo, Wang Lei, Zhu Xinxin, Zhu Tao

Hypervelocity Aerodynamics Institute, China Aerodynamics Research and Development Center, Mianyang, Sichuan 621000, China

Abstract: The point measurement laser absorption spectroscopy (PMLAS) based on saturated absorption theory could surpass the defect of 'line-of-sight' measurement in traditional tunable diode laser absorption spectroscopy (TDLAS) and achieve the 'point' measurement with millimeter spatial resolution. It is realized by crossing with two frequency synchronized laser beams: one named probe beam as in traditional TDLAS and the other named saturated beam with higher power. In this paper, the theory of PMLAS was firstly analyzed by the theoretical deduction of saturated absorption coefficients with arbitrary cross angles and the numerical calculations of point absorbance under different saturation parameters. Next, a weak signal detection method based on high-frequency sinusoidal modulation of the saturated beam intensity was proposed, in which the first-order harmonic signal was theoretically deduced and verified by numerical demonstration. Furthermore, it is found that the FWHMs (full width at half maximum) of different order harmonics are all the same and equal to the width of the absorption signal without modulation, which implied that the superposition of multi-harmonics could enhance the signal-to-noise ratio (SNR) in measuring the spectrum line-width.

收稿日期: 2018-11-12; 收到修改稿日期: 2019-02-21

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(11702312)

作者简介: 陈卫(1985-), 男, 博士, 助理研究员, 主要从事光谱技术与高温气体诊断方向的研究。E-mail: chenweikeeping@163.com

Keywords: absorption spectroscopy; point measurement; high spatial resolution; weak signal detection; harmonic
Citation: Chen W, Wu Y, Luo J, *et al.* Theoretical research of point-measurement laser absorption spectroscopy[J]. *Opto-Electronic Engineering*, 2019, 46(10): 180575

1 引言

可调谐二极管激光吸收光谱技术(Tunable diode laser absorption spectroscopy, TDLAS)通过调谐激光输出波长对气体某一共振吸收谱线进行扫描,获得该谱线的强度和宽度等信息,继而可以得到气体的温度、速度、浓度等参数^[1]。由于它是一种主动测量方法,且只围绕一根或邻近的几根具体谱线进行测量,因此具有较灵活的实现方式以及较高的信噪比。同时结合波长调制技术,将信号频率远离气流起伏、电磁干扰等噪声频率之外,灵敏度可进一步提高^[2-3]。由于该技术简单易行且性价比高,作为一种非接触测量手段在高温流场诊断、气体痕量检测、大气检测、医学检测等方面得到了广泛应用^[4-7]。

但传统的 TDLAS 技术是光程路径的积分测量(即视线测量),不能直接反应非均匀气体的局部信息。在轴对称条件下,可以通过特定的几何关系以及吸收的线性叠加特性,利用 Abel 变换原理,由积分吸光度反演出浓度或温度的二维分布^[8]。为了在更普遍情况下进行局域测量,近年来结合计算机层析成像技术的激光吸收二维断层成像技术(tunable diode laser absorption tomography, TDLAT)得到了广泛研究^[9-11]。TDLAT 通过将待测区域分成许多网格,并沿网格线进行 TDLAS 积分吸光度测量,然后利用带约束的最小二乘法等反演算法得到网格交会处的吸收信息。但是 TDLAT 不仅需要不同方向多路激光同时扫描和探测,具有较高的测量成本,而且各网格点的参数也是通过拟合估算得到,而不是实际直接测量。并且在某些不具有轴对称的几何分布又受限于空间布局的特殊环境中,比如航空或航天发动机内部燃烧流场^[12]、激波风洞或电弧风洞的高焓流场^[13-14]、高超声速激波以及附面层气流^[15]等, TDLAT 技术的应用受到极大限制。本文研究的点测量吸收光谱技术是在传统 TDLAS 技术基础上将可调谐激光器的输出光分为两束,其中一束具有较高功率称为饱和光束或泵浦光束,另一束功率较低为探测光束,将这两束光在待测点处以任意夹角交叉,通过对探测光束进行测量和分析就能得到待测点的气体参数。饱和吸收理论是该技术的基本原理,其在研究原子精细光谱结构等方面已经得到了大量应

用^[16-18],将饱和光束与探测光束反向重叠以消除多普勒展宽影响。但是将饱和光束与探测光束交叉用于非均匀气体的点测量诊断则较少,在上世纪八十年代初有学者以 OH 基和钠原子为检测对象对火焰进行过初步诊断研究^[19-22],但受限于当时激光器制造水平,该技术未能得到广泛应用。近年来,有日本学者将该技术应用到了高温等离子体流场局域温度测量中,以氩原子为检测对象取得了较好效果^[23-24]。但该系统理论分析和点吸收微弱信号处理上仍较缺乏梳理和研究。

本文结合理论推导和数值计算详细分析了点测量吸收光谱技术的基本理论,得到了吸收系数关于饱和参数和光束夹角的关系,并提出了一种调制解调方法用于微弱吸收信号检测,且从理论上推导了解调的一次谐波表达式,有利于促进该技术的实际应用。点测量吸收光谱技术既保持了吸收光谱的高光谱分辨率和实时测量等优势,又克服了视线测量的缺陷,具有亚毫米级的空间分辨能力,可在气体局域参数测量,特别是在具有非均匀、非定常、非平衡特性的高温气体流场诊断中具有很好的应用前景。

2 理论推导

2.1 点测量吸收原理

2.1.1 点测量吸收光谱技术的实现方式

点测量吸收光谱技术以饱和吸收为基本原理,如图 1 所示,在传统的 TDLAS 探测光束上引入一路饱和光束与其交叉,饱和光束与探测光束由可调谐激光器输出通过分束得到,因此两者具有同步的频率扫描,但饱和光束具有较高功率。当关闭饱和光束时,探测光束得到的就是传统的 TDLAS 信号 I_p ,打开饱和光束时,探测光束得到的是局部饱和的吸收信号 I_{ps} 。假设饱和区域长度(即两光束的交叉点沿着探测光束方向的长度)为 Δx ,根据比尔-朗伯吸收定律,通过两次吸收信号的差便给出交叉点处(x_0)的信息^[23]:

$$-\ln\left(\frac{I_p}{I_{ps}}\right) = \{\alpha_0(x_0) - \alpha_s(x_0)\} \Delta x, \quad (1)$$

其中: $\alpha_0(x_0)$ 是交叉点处未饱和吸收系数, $\alpha_s(x_0)$ 是饱和吸收系数。需要注意的是,在 x_0 处吸收探测光的

分子有两类：第一类可以同时吸收探测光和饱和光，第二类仅仅吸收探测光而未吸收饱和光。而第二类分子所产生的吸收信号在相减时被抵消了，因此式(1)中的 α_0 是在饱和光束关闭时第一类分子所产生的吸收系数。下面详细推导 α_s 的表达式。

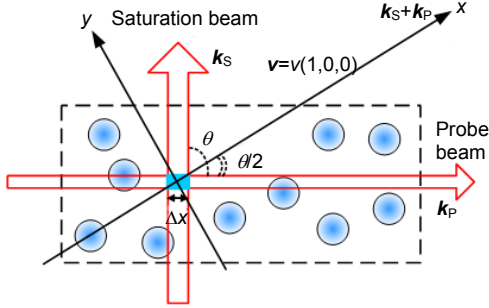


图 1 点测量吸收光谱技术原理示意图
Fig. 1 Schematic diagram of the point measurement absorption spectroscopy

2.1.1.2 饱和吸收系数

令探测光的波矢为 k_p ，饱和光束的波矢为 k_s ，两者夹角为 θ ，以 $k_s + k_p$ 方向为 x 轴建立坐标系，由于 $|k_s| = |k_p| = 2\pi/\lambda$ ，因此 x 轴与 k_p 的夹角为 $\theta/2$ ， $k_p = k(\cos\theta/2, -\sin\theta/2, 0)$ 。

假设样品中分子处于热力学平衡状态，则单位体积中位于能级 E_i 上且沿 x 方向运动 $v = v(1, 0, 0)$ 的分子数量具有麦克斯韦-玻尔兹曼分布^[25]：

$$n_i = \frac{N_i}{v_p \sqrt{\pi}} \exp\left(-\left(\frac{v}{v_p}\right)^2\right), \quad (2)$$

其中： $N_i = \int n_i(v) dv$ 是能级 E_i 上的所有分子数密度， $v_p = (2k_B T/m)^{1/2}$ 是最可几速度， m 是分子质量， k_B 是玻尔兹曼常数。

当探测光通过分子气体时，在运动分子坐标系中，多普勒位移的激光频率为

$$\omega' = \omega - k_p \cdot v = \omega - kv \cos\left(\frac{\theta}{2}\right).$$

只有当这一频率位于静止分子吸收频率中心 ω_0 处的均匀展宽线宽 γ 之内时，该分子才能够对吸收做出显著的贡献。同时，当饱和光束存在时，为了实现饱和光束和探测光束同时吸收，要求分子沿着这两束光方向具有相同的速度分量，即只有沿 x 方向运动的分子才对探测到的饱和吸收产生贡献^[24]。分子从低能级 $|1\rangle$ 跃迁至高能级 $|2\rangle$ 的吸收截面为^[25]

$$\sigma_{12}(\omega, v) = \sigma_0 \frac{(\gamma/2)^2}{(\omega - \omega_0 - kv \cos(\theta/2))^2 + (\gamma/2)^2}, \quad (3)$$

其中： σ_0 是分子跃迁谱线中央处的吸收截面最大值。在饱和光束作用下，并且忽略探测光束对饱和效应的影响以及探测光与饱和光的干涉作用，根据文献^[25]的推导， x_0 处饱和粒子数之差为

$$\Delta n(\omega, v) = \Delta n_0(v) \cdot \left[1 - \frac{S_0 (\gamma/2)^2}{[\omega - \omega_0 - kv \cos(\theta/2)]^2 + (\gamma_s/2)^2} \right], \quad (4)$$

其中： $\Delta n_0(v)$ 是未饱和时的上下能级粒子数密度之差， $S_0 = I_{\text{pump}}/I_{\text{sat}}$ 是吸收频率中心处的饱和参数， I_{sat} 为分子的饱和强度， I_{pump} 为饱和激光束的强度， $\gamma_s = \gamma\sqrt{1+S_0}$ 。

在交叉区域，吸收能级上的所有分子产生的总饱和吸收系数为

$$\alpha_s(\omega) = \int \Delta n(\omega, v) \sigma_{12}(\omega, v) dv. \quad (5)$$

将式(2)、式(3)和式(4)代入，得到：

$$\alpha_s(\omega) = \frac{\Delta N_0 \sigma_0}{v_p \sqrt{\pi}} \left(\frac{\gamma}{2}\right)^2 \cdot \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\exp(-(v/v_p)^2)}{[\omega - \omega_0 - kv \cos(\theta/2)]^2 + (\gamma_s/2)^2} dv, \quad (6)$$

其中： $\Delta N_0 = N_1 - N_2$ 是未饱和时上下能级总粒子数密度之差。注意到上式饱和吸收系数为伏赫特线型，即洛伦兹函数与高斯函数的卷积。当 γ_s 远大于多普勒展宽时，高斯函数可近似为 δ 函数，并注意到 $\int_{-\infty}^{+\infty} \exp(-(x/a)^2) dx = a\sqrt{\pi}$ ，则：

$$\alpha_s(\omega) = \Delta N_0 \sigma_0 \left\{ \frac{(\gamma/2)^2}{[\omega - \omega_0 - kv \cos(\theta/2)]^2 + (\gamma_s/2)^2} \right\}_{v=0} = \frac{\Delta N_0 \sigma_0}{1+S_0} \times \frac{(\gamma_s/2)^2}{(\omega - \omega_0)^2 + (\gamma_s/2)^2}. \quad (7)$$

可见对于均匀展宽的饱和吸收系数，其幅值降低了 $(1+S_0)^{-1}$ 倍，但线宽增加了 $\sqrt{1+S_0}$ 倍。

当多普勒展宽远大于 γ_s 时，式(6)中的洛伦兹函数可近似为 δ 函数，并注意到： $\int_{-\infty}^{+\infty} \frac{1}{x^2 + a^2} dx = \frac{\pi}{a}$ ，式(6)可以化为

$$\alpha_s(\omega) = \frac{\Delta N_0 \sigma_0}{v_p \sqrt{\pi}} \left(\frac{\gamma}{2}\right)^2 \frac{2\pi}{\gamma_s} \frac{1}{k \cos(\theta/2)} \left\{ e^{-(v/v_p)^2} \right\}_{v=\frac{\omega-\omega_0}{k \cos(\theta/2)}} = \frac{\alpha^0(\omega_0)}{\sqrt{1+S_0} \cos(\theta/2)} \exp\left(-\left[4 \ln 2 \left(\frac{\omega - \omega_0}{\Delta \omega_{SD}}\right)^2\right]\right), \quad (8)$$

其中： $\alpha^0(\omega_0) = \frac{\Delta N_0 \sigma_0 \gamma c \sqrt{\pi}}{2\nu_p \omega_0}$ ， $\Delta\omega_{SD}$ 是多普勒饱和吸收

线宽，其与多普勒展宽 $\Delta\omega_{SD}$ [25] 的关系如下：

$$\begin{cases} \Delta\omega_{SD} = \Delta\omega_D \cos(\theta/2) \\ \Delta\omega_D = \frac{\omega_0}{c} \sqrt{\frac{8k_B T \ln 2}{m}} \end{cases} \quad (9)$$

可以看到，当 $\theta = \pi$ ，即饱和光束与探测光束逆向时，多普勒产生的饱和吸收线宽为零，从而可以消除多普勒效应的影响。这正是检测兰姆凹陷或其它超精细光谱结构测量技术 [16-18] 的主要原理。而在点测量吸收光谱技术中， θ 需要根据实际光路布局确定，太小的夹角不利于饱和吸收线宽的测量，一般可以取 $\theta = \pi/2$ 。

2.1.3 温度测量方法

下面推导点测量吸收信号的表达式，正如本节开始指出的，未饱和吸收系数 α_0 也是沿 x 轴方向运动的分子产生的，因此其也与 θ 相关，具有式(6)类似的形式，只是将其中的 γ_s 替换为 γ 。因此式(1)右边的吸收系数可具体表示为

$$\begin{aligned} \alpha_0(\omega) - \alpha_s(\omega) &= \frac{\Delta N_0 \sigma_0}{\nu_p \sqrt{\pi}} \left(\frac{\gamma}{2} \right)^2 \\ &\times \left\{ \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\exp[-(v/\nu_p)^2]}{[\omega - \omega_0 - kv \cos(\theta/2)]^2 + (\gamma/2)^2} dv \right. \\ &\left. - \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\exp[-(v/\nu_p)^2]}{[\omega - \omega_0 - kv \cos(\theta/2)]^2 + (\gamma_s/2)^2} dv \right\} \quad (10) \end{aligned}$$

仿照式(8)，在多普勒展宽占主导时式(10)可以写为

$$\begin{aligned} \alpha_0(\omega) - \alpha_s(\omega) &= \frac{\alpha^0(\omega_0)}{\cos(\theta/2)} \left(1 - \frac{1}{\sqrt{1+S_0}} \right) \\ &\cdot \exp \left[- \left[4 \ln 2 \left(\frac{\omega - \omega_0}{\Delta\omega_{SD}} \right)^2 \right] \right] \quad (11) \end{aligned}$$

因此，对 2.1.1 节的点测量吸收光谱技术实现方式所得到吸收线型(式(1))，进行高斯函数拟合，便可以得到线宽 $\Delta\omega_{SD}$ ，再根据式(9)就可以计算出温度 T 。除此之外，也可以按照传统 TDLAS 的双谱线方法测温 [26]。分别对同一组分的两根谱线进行扫描测量，然后对吸收线型式(11)进行积分，消除线宽的影响，在饱和参数 S_0 已知的情况下可分别得到包含两根谱线的高低能级粒子数密度差 $\Delta N_0(\lambda_1)$ 和 $\Delta N_0(\lambda_2)$ 的吸收系数，再结合不同能级上粒子数密度的玻尔兹曼分布公式 [25]：

$$N_i = N \frac{g_i}{Z} \exp \left(- \frac{E_i}{k_B T} \right) \quad (12)$$

通过两根谱线吸收线型积分的比值就可以完全确定气体的温度。相比传统的 TDLAS 双谱线测温方法，此处的双谱线积分比值与 θ 和 S_0 有关。通过合理布局，可以使激光 λ_1 和 λ_2 共用传输光路，从而消除 θ 的影响。但是两条谱线的 S_0 往往是不同的，因为 λ_1 和 λ_2 具有不同的饱和强度，所以有必要先独立测量每条谱线的饱和强度。饱和强度 I_{sat} 可以通过改变饱和光束输出功率 I_{pump} ，然后对 $\alpha_s \sim I_{pump}$ 进行曲线拟合得到 [24]。

需要注意的是，式(9)和式(12)中的温度具有不同含义，引起多普勒展宽的是分子热运动，因此对其描述的温度被称为平动温度(translation temperature, T_t)，而后者描述的是不同能级上电子占据情况，该温度被称为占据温度(population temperature, T_p)。在热力学平衡下，两者是一致的，在某些非平衡条件下，比如电弧加热器设备的高温气体流场中 [14]，两者具有不同的值。点测量吸收光谱技术与传统 TDLAS 技术一样，也能同时测量这两种温度。

2.2 信号调制与解调

在实际应用中， Δx 往往很小并且饱和程度有限，因此式(1)所表示的有效信号非常微弱，采用两次吸收直接相减方法的实际操作性较低。为此，需要发展适用于微弱信号检测的调制与解调方法，完整的探测光信号 I_{probe} 可以表示为

$$\begin{aligned} -\ln(I_{probe}) &= \int_{x \neq x_0} \alpha'(x) dx \\ &+ \alpha_0(x_0) \cdot \Delta x + \alpha_s(x_0) \cdot \Delta x \quad (13) \end{aligned}$$

其中：等号右边第一项表示在整个探测光路径上非交叉区域的吸收，第二项表示在交叉区域内不受饱和光束作用的吸收，第三项表示在交叉区域内的饱和吸收。考虑 α_s 具有式(8)描述的形式，并重新写为

$$\alpha_s(\omega) = \frac{\alpha}{\sqrt{1 + \frac{I_{pump}}{I_{sat}}}} g(\omega) \quad (14)$$

利用斩波器或其它光强调制方法，对饱和光束的强度进行调制，为便于分析假设 I_{pump} 具有如下形式：

$$I_{pump} = I^0 [1 + \sin(2\pi f_p t)] \quad (15)$$

其中： f_p 是饱和光束强度调制的频率。 $\alpha_s(\omega)$ 同时也是时间 t 的函数，利用傅里叶级数分析方法，并假设激光波长调谐频率远小于 f_p (即激光频率 ω 是 t 的缓变函数)，则式(14)可展开为

$$\alpha_s(\omega, t) = \frac{A_0}{2} + \sum_{n=1}^N [A_n \cos(2\pi n f_p t) + B_n \sin(2\pi n f_p t)] \quad (16)$$

其一阶傅里叶系数为

$$\begin{cases} A_1(\omega) = 2f_p \int_0^{1/f_p} \alpha_s(\omega, t) \cos(2\pi f_p t) dt \\ B_1(\omega) = 2f_p \int_0^{1/f_p} \alpha_s(\omega, t) \sin(2\pi f_p t) dt \end{cases} \quad (17)$$

经过数学推导，可以得到如下积分公式 ($a > 1$) :

$$\begin{cases} \int_0^{2\pi} \frac{\sin(x)}{\sqrt{a + \sin(x)}} dx = 4 \left[\sqrt{a-1} \xi \left(-\frac{2}{a-1} \right) - \frac{a}{a-1} \sqrt{a-1} \psi \left(-\frac{2}{a-1} \right) \right] \\ \int_0^{2\pi} \frac{\cos(x)}{\sqrt{a + \sin(x)}} dx = 0 \end{cases} \quad (18)$$

其中： $\psi(x)$ 是第一类完全椭圆积分， $\xi(x)$ 是第二类完全椭圆积分。将式(15)代入式(14)，用 $x = 2\pi f_p t$ 变量替换，并令参数 $a = I^0/I_{sat} + 1$ ，利用式(18)的积分公式，最终可以得到一次谐波的表达式为

$$H_1(\omega) = \frac{4\alpha g(\omega)}{\pi} \left[(a-1)\xi \left(-\frac{2}{a-1} \right) - a\psi \left(-\frac{2}{a-1} \right) \right] \quad (19)$$

可见，一次谐波具有与饱和吸收系数式(8)一样的函数形式，其线宽仍然为 $\Delta\omega_{SD}$ ，幅值也正比于 ΔN_0 ，只是多了一部分与参数 a 相关的系数，因此一次谐波也完全具备温度以及分子数密度测量能力。考虑到饱和光束的强度调制式(14)可能包含有未知相位，可利用正交锁相放大技术原理来提取一次谐波：直接以探测光信号式(13)做为输入信号，分别用 $\sin(2\pi f_p t)$ 和 $\cos(2\pi f_p t)$ 两路正交信号与其相乘，使得 A_1 和 B_1 成为直流信号，而其它部分(包括式(13)中的 α' 和 α_0 ，以及式(16)中的其它谐波分量)均变为高频信号，结合低通滤波器便能实现一次谐波的提取，如图 2 所示。

3 分析与讨论

3.1 饱和参数与光束夹角的影响

式(8)或式(11)成立的前提是： $\Delta\omega_{SD} \gg \gamma_s$ ，而 $\Delta\omega_{SD}$ 与夹角 θ 有关， γ_s 与饱和参数 S_0 有关。当上述前提不成立时，必须基于式(6)或式(10)进行分析，由于伏赫特函数没有解析表达式，需要通过数值计算的方式来讨论在普遍情况下点测量吸收光谱展宽与饱和参数的关系。

利用高斯函数对式(10)进行拟合，可以得到点测量吸收信号的半高全宽(FWHM)。图 3 是饱和光束与探测光束夹角 $\theta = \pi/2$ 时在均匀展宽 γ 与多普勒展宽 $\Delta\omega_D$ 具有不同比值下，半高全宽以及信号幅值相对强度 $(\alpha_0 - \alpha_s)/\alpha_0$ 随饱和参数 S_0 的变化曲线，图 4 是在 $S_0=10$ 时拟合半高宽以及信号相对强度随夹角 θ 的变化曲线。为了得到尽可能强的点测量吸收信号，需要 S_0 (或饱和光束强度)越大越好，但随着 S_0 增大 FWHM 与 $\Delta\omega_{SD}$ 的偏差也越大。从图 3 中可以看到，当 $S_0 > 10$ 的时信号相对强度大于 70%，并且当 $\gamma \leq 0.01\Delta\omega_D$ 时，FWHM 与 $\Delta\omega_{SD}$ 的偏差可以忽略，此时 S_0 可以使用尽可能大的值；而当 $\gamma \geq 0.05\Delta\omega_D$ 时，在 $S_0=10$ 处的线宽偏差已经大于 1%。而且更大的 S_0 要求更高的激光功率密度，提高了测量难度和成本，因此一般取 $S_0=10$ 即可。原子的饱和吸收强度一般在 $0.1 \text{ mW/mm} \sim 1 \text{ mW/mm}^{2[24,27]}$ ，为了得到较强的点测量吸收信号以及较小的测量误差，饱和光束的强度需要在 10 mW/mm^2 量级。从图 4 可以看到，在 $0 \sim \pi/2$ 范围内夹角的增加对线宽测量的偏差影响并不大，即便在 $\gamma = 0.1\Delta\omega_D$ 条件下， $\theta = \pi/2$ 时的偏差也只会比 $\theta = 0$ 时高 1.4%。但是由于随着 θ 增大，多普勒展宽会逐步抵消，使得点测量吸收线型展宽减小，而吸收信号的幅值将增加，可

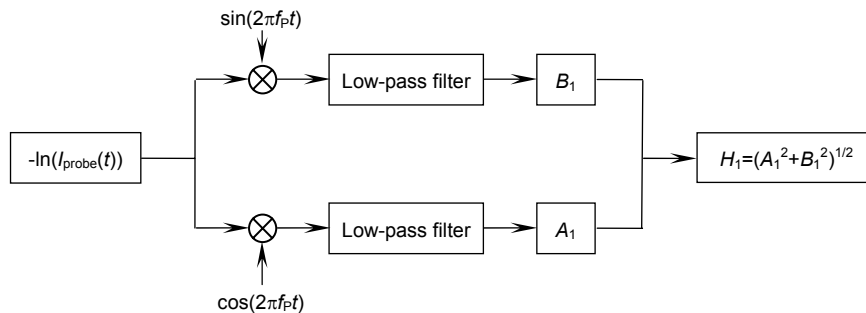


图 2 一次谐波解调原理示意图

Fig. 2 The schematic diagram of demodulating the first-order harmonic

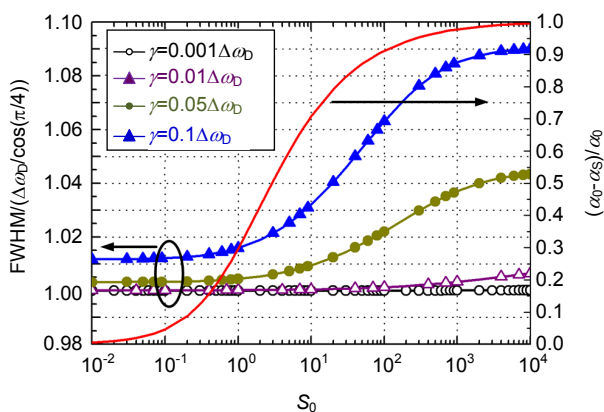


图 3 点测量吸收信号的半高全宽以及幅值相对强度随饱和参数的变化关系

Fig. 3 FWHM and amplitude curves with different saturation parameters

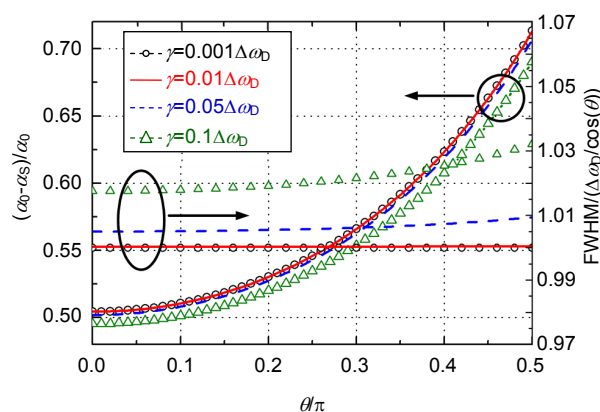


图 4 点测量吸收信号半高全宽以及幅值相对强度随光束夹角的变化关系

Fig. 4 FWHM and amplitude curves with different crossing angles

以看到 $\theta = \pi/2$ 时的信号幅值比 $\theta = 0$ 时高出约 40%。因此适当增大饱和和光束与探测光束的夹角有利于提高点测量吸收信号的信噪比。

3.2 谐波解调特性分析

为了检验上述提出的调制与解调方法的正确性，以式(13)为探测信号，以式(15)为饱和光束强度 I_{pump} 的调制方式，饱和光束与探测光束夹角为 $\pi/2$ ，并采用图 2 所示的信号解调流程，采用切比雪夫 I 型数字低通滤波器^[28]。重新定义饱和参数 $S_0 = I^0 / I_{sat}$ ，则式(19)中的系数 $a = S_0 + 1$ 。为了满足激光频率 ω 是时间的缓变函数关系，令激光调谐的三角波扫描频率为 1 Hz，饱和光束调制频率 f_p 为 1 kHz，信号采样频率为 100

kHz。图 5(a)为在饱和光束受正弦调制下的探测信号及其解调的一次谐波信号，为了便于清晰显示探测信号，绘图时降低了饱和光束的调制频率。在传统 TDLAS 的双谱线比值测温或浓度检测中，一般需要对吸收线型进行频率积分以消除谱线展宽的影响。在点测量吸收光谱技术中，同样可以对一次谐波线型进行积分得到低能级上粒子数密度 N_i ，从而实现双谱线测温或浓度测量。但是一次谐波的积分与饱和参数有关，为了消除饱和参数的影响必须知道饱和参数在谐波信号中的具体函数形式。图 5(b)中圆圈表示一次谐波的积分随饱和参数的变化曲线，而实线表示的是按式(19)进行如下式修正后的效果：

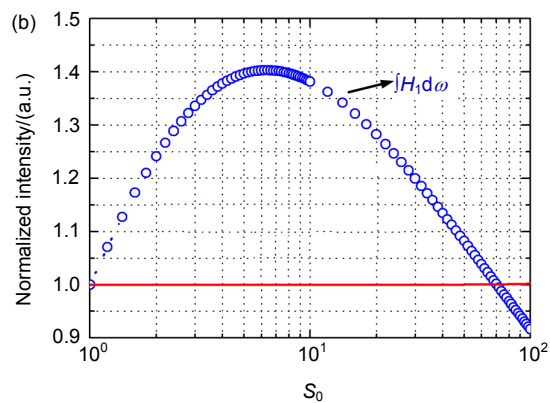
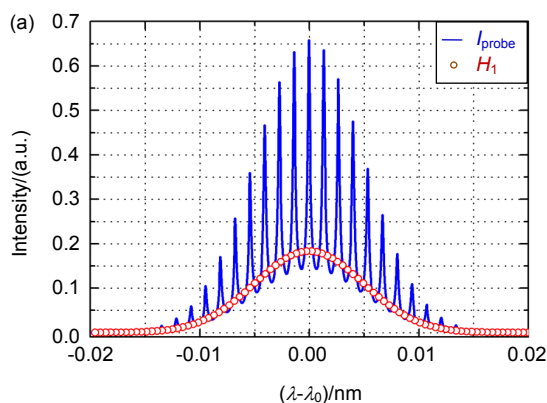


图 5 信号解调结果分析。(a) 原始探测信号与解调的一次谐波信号；(b) 一次谐波积分及其修正与饱和参数的关系

Fig. 5 The analysis of demodulated signal. (a) The detected signal and its first-order harmonic; (b) Relations of the integration of H_1 and its modification with the saturation parameter

$$\frac{\int H_1 d\omega}{(a-1)\xi\left(-\frac{2}{a-1}\right)-a\psi\left(-\frac{2}{a-1}\right)}$$

可见修正后得到的一次谐波积分不再与饱和和参数相关，因此推导的一次谐波解调式(19)是完全正确的。需要注意的是，式(19)的前提只需满足激光频率 ω 是时间的缓变函数关系这一要求，而与具体线型函数无关，因此该式在无论何种展宽占主导的情况下都是成立的。

在多普勒展宽占主导的情况下，还可以通过吸收线型的宽度进行温度测量。实际上，通过式(19)的推导过程还可以发现所有谐波的宽度都是一致的，并且等于饱和多普勒展宽 $\Delta\omega_{SD}$ 。图 6(a)中从上至下依次为解调得到的第一至第五阶谐波曲线，尽管随着阶次越高谐波幅度急剧降低，但仍然具有相同的半高宽。因此可以通过多次谐波的叠加来增强信号强度，而不会

影响多普勒线宽的测量。图 6(b)红色实点显示在对探测信号的前五阶谐波进行叠加即 $\sum_{i=1}^5 H_i$ 后，再进行高斯拟合得到的半高宽 FWHM 与按式(9)计算得到的 $\Delta\omega_{SD}$ 的比较，其中实线是 FWHM 除以多普勒饱和和展宽 $\Delta\omega_{SD}$ ，即 $FWHM/\Delta\omega_{SD}(T)$ 之后的结果。考虑到滤波和拟合等仿真过程中的数值计算误差，完全可以认为多次谐波叠加拟合的 FWHM 与实际的饱和多普勒宽度是一致的。

4 结 论

TDLAS 技术由于具有光谱分辨率高、灵敏度高、小型轻便、主动测量等优点而得到广泛应用，但其视线测量缺陷使得测量结果只能是光程路径上的加权平均值，极大影响了其测量的准确性和实用性。本文研究的点测量吸收光谱技术基于饱和和吸收原理，利用一束同频的饱和激光与探测激光交叉，能得到交叉点位置处的气体吸收信息，从而实现具有亚毫米量级空间分辨能力的点测量。首先从理论上推导了饱和光束与探测光束处于任意夹角交叉时分别在均匀展宽和非均匀展宽下的饱和吸收系数表达式，分析了点测量吸收光谱技术对平动温度和占据温度进行测量的基本原理。然后针对点测量的微弱吸收信号特点，提出了一种通过对饱和光束进行高频调制以实现微弱信号检测的方法，并推导了解调后谐波的表达式。最后通过数值计算，分析了在伏赫特线型函数下，饱和参数 S_0 以及光束夹角对信号强度和拟合吸收线宽的影响。发现当均匀展宽远小于多普勒展宽(即 $\gamma \leq 0.01\Delta\omega_D$) 时，吸收信号线宽基本只与光束夹角有关，但当 $\gamma \geq 0.05\Delta\omega_D$ 时饱和参数的影响不可忽略。通过数值计算还验证了一次谐波表达式的正确性，并对谐波特性进行分析后发现不同阶次的谐波信号具有与原吸收信号一致的半高宽，有利于采用多次谐波的叠加的方式提高线宽测量的信噪比。

在气体检测应用方面，由于原子气体相对于分子气体一般具有较低的饱和吸收强度，以目前可调谐半导体激光器的功率，点测量吸收光谱技术更适用于原子气体的测量，这在高温气体研究领域，比如高超声速飞行器地面风洞试验的高焓流场诊断中，具有非常好的应用前景。

参考文献

[1] Wang S T, Wang C B, Pan Z, et al. Applications of optical technology in gas concentration detection[J]. *Opto-Electronic*

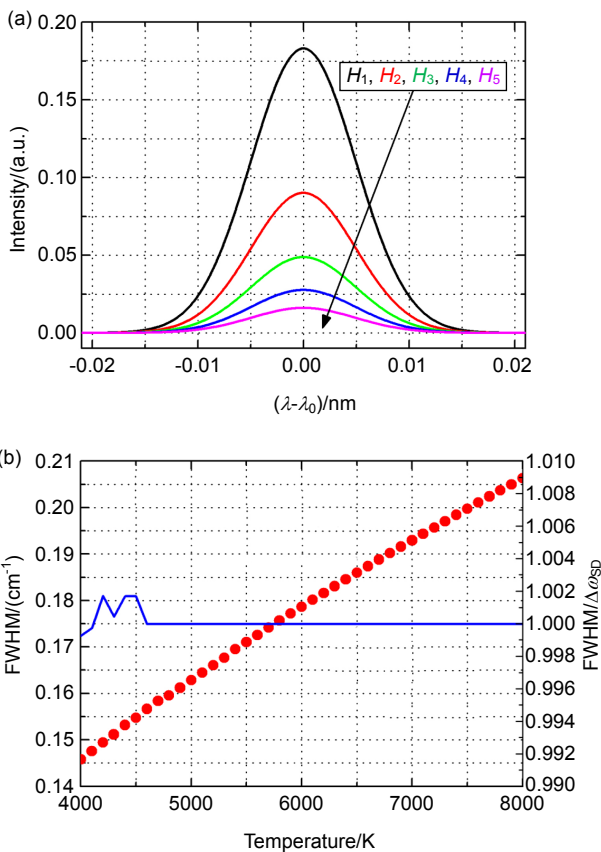


图 6 不同阶次谐波的线宽计算结果。(a) 解调的前五次谐波形式；(b) 前五次谐波叠加后的线宽与温度的关系

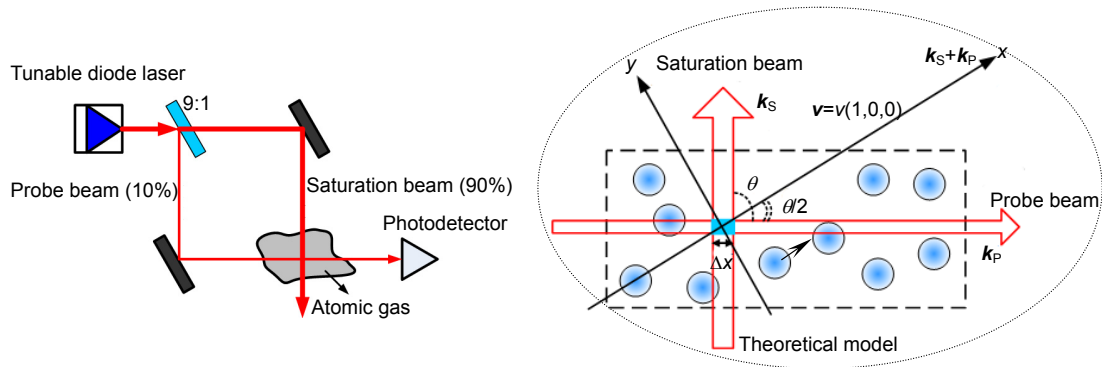
Fig. 6 The linewidths of different order harmonics. (a) The first five harmonics; (b) Relation between FWHM and temperature after multi-harmonics superposition

- Engineering*, 2017, **44**(9): 862–871.
王书涛, 王昌冰, 潘钊, 等. 光学技术在气体浓度检测中的应用[J]. *光电工程*, 2017, **44**(9): 862–871.
- [2] Li L, Yang Y G, Chen W L, *et al.* Correction of influence conditions in TDLAS ammonia measuring based on hollow waveguide cell[J]. *Opto-Electronic Engineering*, 2015, **45**(12): 35–40.
李龙, 杨燕昱, 陈文亮, 等. 基于 HWG 气体池的 TDLAS 氨气测量中影响条件的修正[J]. *光电工程*, 2015, **45**(12): 35–40.
- [3] Sun P S, Zhang Z R, Xia H, *et al.* Study on real-time 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.
- [4] Yin K W, Xu D, Zhang L, *et al.* 2D reconstruction for gas temperature and concentration based on TDLAS[J]. *Opto-Electronic Engineering*, 2016, **43**(12): 20–27.
殷可为, 胥颀, 张龙, 等. TDLAS 技术用于燃烧场气体温度和浓度重建研究[J]. *光电工程*, 2016, **43**(12): 20–27.
- [5] Jia L Q, Liu W Q, Kan R F, *et al.* Oxygen mass flow detection method in supersonic flow based on TDLAS[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2015, **44**(7): 0730001.
贾良权, 刘文清, 阚瑞峰, 等. 采用 TDLAS 的超音速气流中氧气质量流量检测法[J]. *光子学报*, 2015, **44**(7): 0730001.
- [6] Hong G L, Zhang H P, Liu H, *et al.* Review of measurement for atmospheric CO₂ differential absorption lidar[J]. *Opto-Electronic Engineering*, 2018, **45**(1): 170452.
洪光烈, 章桦萍, 刘豪, 等. 国外差分吸收激光雷达探测大气 CO₂ 研究综述[J]. *光电工程*, 2018, **45**(1): 170452.
- [7] Xu C, Fang Z H, Dong M L, *et al.* Design of non-invasive skin cholesterol detection system based on absorption spectroscopy[J]. *Opto-Electronic Engineering*, 2018, **45**(4): 170587.
许超, 方朝晖, 董美丽, 等. 基于吸收光谱技术的皮肤胆固醇无创检测系统设计[J]. *光电工程*, 2018, **45**(4): 170587.
- [8] Liu C, Xu L J, Cao Z, *et al.* One-dimensional tomography of axisymmetric temperature distribution with limited TDLAS data by using three-point Abel deconvolution[C]//*Proceedings of 2014 IEEE International Conference on Imaging Systems and Techniques*, 2014: 432–435.
- [9] Xu L J, Liu C, Jing W Y, *et al.* Tunable diode laser absorption spectroscopy-based tomography system for on-line monitoring of two-dimensional distributions of temperature and H₂O mole fraction[J]. *Review of Scientific Instruments*, 2016, **87**(1): 013101.
- [10] Li J Y, Du Z H, Zhou T, *et al.* Non-uniform temperature distribution measurement of combustion field using temperature tuning multi-line thermometry[J]. *Acta Optica Sinica*, 2013, **33**(S2): s212009.
李金义, 杜振辉, 周涛, 等. 温度调谐多谱线方法测量燃烧场的非均匀温度分布[J]. *光学学报*, 2013, **33**(S2): s212009.
- [11] Nadir Z, Brown M S, Comer M L, *et al.* Gaussian mixture prior models for imaging of flow cross sections from sparse hyperspectral measurements[C]//*Proceedings of 2015 IEEE Global Conference on Signal and Information Processing*, 2015: 527–531.
- [12] Barone D L. Investigation of TDLAS measurements in a scramjet engine[D]. Cincinnati: University of Cincinnati, 2010.
- [13] Hannemann K. Hypersonic research in the high-enthalpy shock tunnel Göttingen[C]//*Proceedings of the 30th International Symposium on Shock Waves 2*, 2017: 1385–1390.
- [14] Ou D B, Chen L Z, Dong Y H, *et al.* Measurements of gas temperature and atomic oxygen density in the arc-heated wind tunnel based on TDLAS[J]. *Journal of Experiments in Fluid Mechanics*, 2015, **29**(3): 62–67.
欧东斌, 陈连忠, 董永晖, 等. 电弧风洞中基于 TDLAS 的气体温度和氧原子浓度测试[J]. *实验流体力学*, 2015, **29**(3): 62–67.
- [15] Kianvashrad N, Knight D. Effect of vibrational temperature boundary condition of isothermal wall on hypersonic shock wave laminar boundary layer interaction of a hollow cylinder flare[C]//*Proceedings of the 7th European Conference for Aeronautics and Aerospace Sciences*, 2017.
- [16] Matsudo T, Takahara Y, Hori H, *et al.* Pseudomomentum transfer from evanescent waves to atoms measured by saturated absorption spectroscopy[J]. *Optics Communications*, 1998, **145**(1–6): 64–68.
- [17] Jing Y F, Yan S B, Qin L, *et al.* Research of thin Rb vapor cell's saturated absorption spectroscopy[J]. *Laser & Infrared*, 2010, **40**(7): 697–699.
荆彦锋, 闫树斌, 秦丽, 等. 薄铷汽室饱和吸收光谱的研究[J]. *激光与红外*, 2010, **40**(7): 697–699.
- [18] Kumar P, Saini V K, Purbia G S, *et al.* Hyperfine structure studies of neutral europium transitions at 601.815 and 580.027 nm by saturation absorption spectroscopy[J]. *Applied Optics*, 2017, **56**(6): 1579–1584.
- [19] Zizak G, Cignoli F, Benecchi S. Spatially resolved saturated absorption measurements of OH in methane-air flames[J]. *Applied Optics*, 1987, **26**(19): 4293–4297.
- [20] Goldsmith J E M. Spatially resolved saturated absorption spectroscopy in flames[J]. *Optics Letters*, 1981, **6**(11): 525–527.
- [21] Walters P E, Long G L, Winefordner J D. Spatially resolved concentration studies of ground state atoms and ions in an ICP: saturated absorption spectroscopic method[J]. *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 1984, **39**(1): 69–76.
- [22] Kychakoff G, Howe R D, Hanson R K. Spatially resolved combustion measurements using cross-beam saturated absorption spectroscopy[J]. *Applied Optics*, 1984, **23**(9): 1303–1305.
- [23] Nomura S, Kaneko T, Komurasaki K. Development of highly sensitive and spatially resolved laser absorption spectroscopy for plasma wind tunnel measurement[C]//*Proceedings of the 50th AIAA Aerospace Sciences Meeting Including the New Horizons Forum and Aerospace Exposition*, 2012.
- [24] Nomura S, Ito G, Fujita K, *et al.* Translational temperature measurements in a shock layer by point-measurement laser absorption spectroscopy[C]//*Proceedings of the 52nd Aerospace Sciences Meeting*, 2015.
- [25] Demtroder W. *Laser Spectroscopy (Vol. 2): Experimental Techniques*[M]. Ji Y, trans. Beijing: Science Press, 2012: 121–124.
沃尔夫冈·戴姆特瑞德. 激光光谱学. 第 2 卷, 实验技术[M]. 姬扬, 译. 北京: 科学出版社, 2012: 121–124.
- [26] Wang J, Huang W, Gu H T, *et al.* Gas temperature measurement with tunable diode laser absorption spectroscopy[J]. *Acta Optica Sinica*, 2007, **27**(9): 1639–1642.
王健, 黄伟, 顾海涛, 等. 可调谐二极管激光吸收光谱法测量气体温度[J]. *光学学报*, 2007, **27**(9): 1639–1642.
- [27] Kim S. Development of tunable diode laser absorption sensors for a large-scale arc-heated-plasma wind tunnel[D]. Stanford: Stanford University, 2004.
- [28] Parks T, McClellan J. Chebyshev approximation for nonrecursive digital filters with linear phase[J]. *IEEE Transactions on Circuit Theory*, 1972, **19**(2): 189–194.

Theoretical research of point-measurement laser absorption spectroscopy

Chen Wei*, Wu Yue, Luo Jie, Liu Jinbo, Wang Lei, Zhu Xinxin, Zhu Tao

Hypervelocity Aerodynamics Institute, China Aerodynamics Research and Development Center, Mianyang, Sichuan 621000, China



The sketch of point-measurement laser absorption spectroscopy and its theoretical model

Overview: The tunable diode laser absorption spectroscopy (TDLAS) has been widely applied as a non-intrusive gas detection technology due to its high-sensitivity and convenient operation. However, the ‘line-of-sight (LOS)’ measurement is the biggest defect of TDLAS, which means that the absorbance signal is the integration along the path from the laser emitter to the receiver. So the directly measured gas temperatures or densities by TDLAS on the non-uniform conditions are not correct. To overcome this defect, the computed tomography (CT) is always employed for reconstructing the 2D spatially distribution. However, the CT combined TDLAS, usually named as TDLAT, needs a lot of laser beams crossing the gas field from different directions, and each beam needs to be received. Sometimes, it is not feasible to deploy so many emitters and receivers, such as the measurement of high-temperature gas in shock wave layer in high-enthalpy wind tunnel. The point measurement laser absorption spectroscopy (PMLAS) studied in this article is another technology to overcome the LOS defect of traditional TDLAS. The PMLAS is the combination of TDLAS and saturated absorption spectroscopy (SAS). It is realized by crossing with two frequency synchronized laser beams: one named probe beam as in traditional TDLAS and the other named saturated beam with higher power. By subtracting the probe beam signal when the saturated beam is off with the probe beam signal when the saturated beam is on, the PMLAS could acquire the absorbance at the crossing point and therefor achieve the ‘point’ measurement with at least millimeter spatial resolution. In this paper, the theory of PMLAS was firstly analyzed by the theoretical deduction of saturated absorption coefficients with arbitrary cross angles and the numerical calculations of point absorbance under different saturation parameters. Next, a weak signal detection method based on high-frequency sinusoidal modulation of the saturated beam intensity was proposed, in which the first-order harmonic signal was theoretically deduced and verified by numerical demonstration. Furthermore, it is found that the FWHMs (full width at half maximum) of different order harmonics are all the same and equal to the width of the absorption signal without modulation, which implied that the superposition of multi-harmonics could enhance the signal-to-noise ratio (SNR) in measuring the spectrum line-width. The theoretical research of PMLAS including the weak signal demodulation method in this work is the foundation of applying this technology to measure the local temperature and density of gas in dramatic non-uniform and disturbance condition. By the way, due to the very low saturation intensity of the atoms, the PMLAS is easily realized in high-temperature atomic gas measurement.

Citation: Chen W, Wu Y, Luo J, *et al.* Theoretical research of point-measurement laser absorption spectroscopy[J]. *Opto-Electronic Engineering*, 2019, 46(10): 180575

Supported by National Natural Science Foundation of China (11702312)

* E-mail: chenweikeeping@163.com