

物理学报
Acta Physica Sinica
ISSN 1000-3290, CN 11-1958/O4

《物理学报》网络首发论文

题目：利用波长慢速扫描和快速调制激光吸收光谱实验数据反演光谱吸收函数的理论和实验研究

作者：黄知秋, 李启正, 张猛, 彭志敏, 杨乾锁

网络首发日期：2023-04-25

引用格式：黄知秋, 李启正, 张猛, 彭志敏, 杨乾锁. 利用波长慢速扫描和快速调制激光吸收光谱实验数据反演光谱吸收函数的理论和实验研究[J/OL]. 物理学报. <https://kns.cnki.net/kcms/detail/11.1958.O4.20230425.1339.004.html>



网络首发：在编辑部工作流程中，稿件从录用到出版要经历录用定稿、排版定稿、整期汇编定稿等阶段。录用定稿指内容已经确定，且通过同行评议、主编终审同意刊用的稿件。排版定稿指录用定稿按照期刊特定版式（包括网络呈现版式）排版后的稿件，可暂不确定出版年、卷、期和页码。整期汇编定稿指出版年、卷、期、页码均已确定的印刷或数字出版的整期汇编稿件。录用定稿网络首发稿件内容必须符合《出版管理条例》和《期刊出版管理规定》的有关规定；学术研究成果具有创新性、科学性和先进性，符合编辑部对刊文的录用要求，不存在学术不端行为及其他侵权行为；稿件内容应基本符合国家有关书刊编辑、出版的技术标准，正确使用和统一规范语言文字、符号、数字、外文字母、法定计量单位及地图标注等。为确保录用定稿网络首发的严肃性，录用定稿一经发布，不得修改论文题目、作者、机构名称和学术内容，只可基于编辑规范进行少量文字的修改。

出版确认：纸质期刊编辑部通过与《中国学术期刊（光盘版）》电子杂志社有限公司签约，在《中国学术期刊（网络版）》出版传播平台上创办与纸质期刊内容一致的网络版，以单篇或整期出版形式，在印刷出版之前刊发论文的录用定稿、排版定稿、整期汇编定稿。因为《中国学术期刊（网络版）》是国家新闻出版广电总局批准的网络连续型出版物（ISSN 2096-4188，CN 11-6037/Z），所以签约期刊的网络版上网络首发论文视为正式出版。

利用波长慢速扫描和快速调制激光吸收光谱实验数据 反演光谱吸收函数的理论和实验研究

黄知秋¹⁾²⁾ 李启正¹⁾²⁾ 张猛¹⁾²⁾ 彭志敏³⁾ 杨乾锁^{1)2)†}

- 1) 中国科学院力学研究所，流固耦合系统力学重点实验室，北京 100190
- 2) 中国科学院大学工程科学学院，北京 100049
- 3) 清华大学能源与动力工程系，电力系统与发电设备控制与仿真国家重点实验室，北京 100084

摘要

在波长慢速均匀扫描和波长快速周期调制的情况下，基于激光吸收光谱的实验数据，提出了利用激光调制频率和激光扫描范围两个参数以及透射波信号和参考波信号反演谱线吸收函数的矩阵切片方法。当波长调制为单频正弦调制时，利用透射波信号和参考波信号的相除结果得到的矩阵，通过两个相距半个调制周期的切片积分的最小值即可得到准确的谱线吸收函数轮廓，并能反演出调制幅度的大小。当波长的快速调制扭曲为非单频的多频叠加调制时，可以利用多个切片的互补形成谱线吸收函数。上述方法可以用于在扫描波长范围内包含由多条吸收谱线且有重叠的真实吸收函数反演过程。而且，可以利用扫描波长范围内多条谱线的间隔参数来标定激光波长的扫描范围。采用上述的矩阵切片法，通过实验验证，得到了低吸状况下 CO 在 4300.700cm^{-1} 吸收谱线的吸收函数和较强吸收状况下 CO_2 在 6336cm^{-1} 附近 2 条吸收谱线的吸收函数信息。

关键词： 波长调制，波长扫描，吸收函数，数据矩阵

PACS: 42.62.Fi, 33.20.Ea, 42.55.Px

DOI:10.7498/aps.72.20230371

† 通信作者.E-mail: qsyang@imech.ac.cn

第一作者.E-mail: huangzhiqiu@imech.ac.cn

1 引言

在激光吸收光谱测量中,如果对激光波长进行调制,透射光具有抗干扰性强、灵敏度高的特点^[1-6]。当频率为 100~1kHz 的波长调制与频率为 $10^2\sim 4$ kHz 的频率调制相比,前者在激光装置和探测器的支撑电路和器件结构上具有天然的优势^[1, 2, 4, 7]。众所周知,对二极管激光器的注入电流进行 100~1kHz 量级的正弦调制,不仅会使激光器的输出功率具有随动的调制,而且会使工作波长发生滞后的周期性波动^[1, 4, 6, 8-12]。这两种动态效应的自然交织对波长调制的激光吸收光谱测量非常不利,因为这些特征使吸收函数的推断过程大幅度地复杂化。在典型的激光吸收光谱测量中,二极管激光器同时被高频正弦信号和低频线性斜坡信号或锯齿信号调制。这种类型的注入电流通常使激光的工作波长扫过介质发生光吸收的波长区域^[3, 5, 6, 8, 10, 11, 13]。通过研究上述过程的透射光随时间的演变,可以得到吸收函数在扫描波长范围内的具体信息^[1-6, 8, 9, 11-15]。再结合谱线的相关参数,可以外推出气体介质一些特征参数,如温度、压力、浓度^[1, 2, 4-6, 8-10, 12-15]。而如何利用发射光和透射光的具体试验结果和激光器的具体工作参数是波长调制的吸收光谱测试的核心研究内容。

原则上,透射光的信息包含了所扫描波长区域内的所有吸收光谱特征,因此在相应的数据处理中,应充分利用所测量的信息。在目前的大部分工作中,流行的原理或方法的是研究如何充分利用谐波数据来计算气体介质的一些重要参数,甚至用于吸收函数的反演^[1-6, 8-16]。一些方法所使用的谐波数据仅限于基频和二次谐波^[2-5, 8-10]。不幸的是,当调制过程的波峰或波谷与吸收函数在波长上的敏感区域重合时,吸收特征明显地发生剧烈波动,而这些快速变化只能在高次谐波中表现出来^[6, 9-14, 16]。更糟糕的是,谐波阶数越高,对应的测量数据的比例越小,相应

的精度就越低，且数据处理过程就越复杂^[5,10,12-14]。因此，一些吸收谱线的特征信息和激光器的参数信息或多或少地需要弥补这些谐波方法的不足，特别是在未知吸收函数的反演仅基于锁相放大器获得谐波信息的情况下^[2-6,8-18]。同时，仅依靠低次谐波的测量结果来估计谱线的某些特定参数或吸收特征大幅度也降低了测试的精度^[3,10,12,14,16,18]。

在波长调制的吸收光谱测量中，通过吸收单元的透射光强和直接从激光器获得的参考光强或基线光强的演化曲线是最基本的测量数据。在随时间演化的透射光强数据和参考光强数据相除后，入射光强的周期性波动对吸收测量的影响轻易地被消除了。从上述过程中获得的巨大数据序列可以转换为分别以激光器均匀慢速扫描的中心波长和快速调制的周期位相为两维的轴向数据矩阵。这个数据矩阵将吸收特征对慢速均匀扫描和快速周期调制的两种波长演化分割开来。通过对数据矩阵的不同具体操作，即可利用单频正弦快速调制的特征，也可以避开快速调制过程出现的非单频调制对数据矩阵的复杂化。当然这些操作的目的在于最终得到谱线的吸收函数轮廓。本文在下述的内容中，一方面通过数值模拟，阐述了这种试验数据处理方法的正确性和可行性；另一方面，用上述方法，利用透射光和参考光强数据及其调制频率，推算出了正确的 CO 气体的 4300.700cm^{-1} 谱线和 CO₂ 气体的 6335.797cm^{-1} 和 6336.242cm^{-1} 谱线的吸收函数和单频正弦调制的幅度等参数。

2 原理和数据处理过程

在波长慢速均匀扫描和波长快速周期调制相互结合的吸收光谱测量过程中，充分利用了激光器的工作特性：一方面，慢速均匀变化的注入电流保证了激光器中心波长的均匀变化，随时间均匀变化的速率称之为中心波长的变化速率，定义为 γ_s ；另一方面，在注入电流之上施加的快速周期调制电流使得激光器的工作电流围绕激光器的中心波长作微小的周期变化，且这个波长的周期变化与中心波长的大小无关。不失一般性，激光器的工作波长， $\lambda(t)$ ，可以表示为：

$$\lambda(t) = \lambda_c(t) + f(t) = \lambda_c(0) + \gamma_s t + f(t) \quad (1)$$

这里 $\lambda_c(t)$ 为激光器的中心波长， $f(t)$ 为波长的快速周期调制，对应的调制周期为 T 。 $\lambda_c(0)$ 为开始时刻的中心波长。当调制电流的幅度比较小时，波长调制表现为单纯的正弦调制。当周期调制电流的幅度增大到一定幅度时，波长快速调制的非正弦性逐步显现出来：变为基频和以这个基频为基础的不同阶正弦调制的叠加，其中的基频为调制电流的频率。

不失一般性，鉴于调制的周期性， $f(t)$ 可以利用三角函数展开：

$$f(t) = f(t - nT) = \sum_{n=1} a_n \sin(2n\pi f_m t + \phi_n) \quad (2)$$

通过吸收介质的光强随时间的演化 $I_t(t)$ ，参考光强 $I_0(t)$ ，吸收强度 A 和谱线吸收函数 $\varphi(\lambda)$ 的关系可以表述为：

$$A\varphi[\lambda_c(t) + f(t)] = -\ln[I_t(t)/I_0(t)] \quad (3)$$

当我们把(3)表述为中心波长和周期调制两个变量的函数时，(3)式可以写成：

$$A\varphi[\lambda_c, f(t)] = -\ln[I_t(t)/I_0(t)] \quad (4)$$

因此，实验得到的数据转化为二维的数据矩阵：一个方向为对应着不同中心波长的调制时间，另一个方向对应的是相同调制时刻或调制位相的不同中心波长。无论调制如何，在调制位相相同的情况下，沿中心波长方向的数据轮廓均为真实的谱线吸收函数，这些轮廓起点对应的波长差别随调制时刻的变化而变化。但是，在 $f(t) = 0$ 的时刻，数据轮廓的起点和中心波长慢速扫描的起点重合，利用这个特点可以很方便地得到谱线吸收函数的轮廓，这里只需要波长的周期调制频率。

另外，可以利用数据矩阵推测波长周期调制中的特性和多个参数。

在激光器的工作波长相同的条件下，可以得到：

$$C = \lambda_{c,1} + f(t_1) = \lambda_{c,2} + f(t_2) = \dots = \lambda_{c,n} + f(t_n) \quad (5)$$

这里在调制的多个时刻， t_1, t_2, \dots, t_n ，在工作波长相同的条件下，激光器的中心波长具有各自的价值。但是，对应的吸收系数 $A\varphi(C)$ 却具有相同的吸收值，包括谱线吸收轮廓中的最高峰处。

另一方面，鉴于(2)式中， n 个展开项有 $2n$ 个未知数。可以利用在相同 $A\varphi[\lambda_c, f(t)]$ 的条件下， t_1, t_2, \dots, t_n 对应时刻的 $f(t_1), f(t_2), \dots, f(t_n)$ 求解 a_1, a_2, \dots, a_n 和 $\phi_1, \phi_2, \dots, \phi_n$ 。

对于简单的正弦调制，即 $f(t) = a_1 \sin(2\pi f_m t + \phi_1)$ ，有下列等式：

$$\lambda_{c,2} - \lambda_{c,1} = f(t_1) - f(t_2) = a_1 [\sin(2\pi f_m t_1 + \phi_1) - \sin(2\pi f_m t_2 + \phi_1)] \quad (6)$$

当 $t_2 - t_1 = T/2$, 且 $a_1 \sin(2\pi f_m t_1 + \phi_1) = a_1 \sin(2\pi f_m t_2 + \phi_1) = 0$ 时, 对应的有 $\lambda_{c,2} = \lambda_{c,1}$, $A\varphi[\lambda_c, f(t_1)] = A\varphi[\lambda_c, f(t_2)] = A\varphi[\lambda_c, 0]$, 这样可以得到: $2\pi f_m t_1 + \phi_1 = 0$ 和 $2\pi f_m t_2 + \phi_1 = \pi$, 由此可以求出 t_1 和 t_2 , 可以利用这里特性确定 $A\varphi[\lambda_c, 0]$ 在数据矩阵中的两个精确位置。另一方面, 当 $2\pi f_m t + \phi_1 = \pm\pi/2$ 时, $A\varphi[\lambda_c, \pm a_1]$ 和 $A\varphi[\lambda_c, 0]$ 的最高吸收值的偏离为 $\pm a_1$, 由此可以从数据矩阵得到波长调制幅度。

对于非正弦的多频调制, 我们可以利用所得到数据矩阵的极大值随两个坐标 (中心波长和调制时间) 的连续演化来重构谱线吸收函数: 在每个来自数据矩阵且具有相同调制时间的切片中, 找到其谱线吸收函数的最大值。然后, 根据最大值对应的中心波长和调制时间的位置, 利用部分或全部的数据切片可以方便地建立谱线吸收函数。这里, 所用的参数只涉及调制频率。另一方面, 遗憾的是: 求解各个调制频率的幅度和初始位相变得比较复杂。需要按照在激光器工作波长相同的原则上实施求解, 对于实际的试验数据, 可以用最小二乘法来实施, 由于实际的测试无需这些参数, 这里不再累述。从上述的矩阵切片法数据处理中还进一步发现, 即使在扫描波长范围内存在多条吸收线, 甚至由于压力或温度等原因导致吸收线展宽而相互重叠^[13,19-24], 吸收函数的轮廓也很容易从数据矩阵中反演出来, 同时甚至不需要在扫描波长范围内包含无吸收的区域。当然, 这种方法的测量精度主要取决于测量数据的精度: 透射光和参考光信号强度随时间的演化数据, 其中主要涉及两种信号探测器的零点漂移、信噪比和时间响应精度, 调制频率是一个相对精度很高的数据, 应该对测量误差的影响较小。

3 数值模拟

下面我们利用数值模拟来验证上述方法的可行性和正确性。设在一个波长范围内 6cm^{-1} 的范围内，有三条吸收谱线，具有高斯加宽的形式：

$$A\varphi(\lambda) = 0.4 \times e^{-\frac{(\lambda-1.6)^2}{0.2^2}} + 0.6 \times e^{-\frac{(\lambda-2.6)^2}{0.3^2}} + 0.2 \times e^{-\frac{(\lambda-4.6)^2}{0.4^2}} \quad (7)$$

具体谱线吸收函数图形如图 1(a)所示。利用波长慢速均匀变化和快速正弦调制的激光作为探测器，设定激光在一个固定的时间范围内慢速均匀扫过 6cm^{-1} 的波长范围。在其扫描过程中，完成了 1200 次的调制，每个调制周期含有 1000 个数据点。不失一般性，激光器的波长随时间的演化可以表示为：

$$\lambda(t) = \lambda_c(0) + \gamma_s t + a_1 \sin(2\pi f_m t + \phi_1) \quad (8)$$

考虑到上述的数值，波长慢速均匀变化和快速调制可以写成：

$$\lambda(n) = \lambda_c(0) + 0.5 \times 10^{-5} n + 0.3 \times \sin\left(\frac{2\pi n}{1000} + \phi_1\right) \quad (9)$$

设定每个周期包含 1000 个时间单位，则每完成一次测试需要 1,200,000 个时间单位，这里，调制幅度为 0.3cm^{-1} 。在 $\phi_1 = \pi/6$ 的情况下，对应的数据矩阵 $A\varphi(\lambda_c, t - nT)$ 的二维数据矩阵图如图 1(b)所示，由此可见图中的等高线沿调制时间的方向为正弦分布。

由于为正弦调制，我们可以利用上述的二维数据矩阵反演出谱线吸收函数 $A\varphi(\lambda)$ ，调制幅度 a_1 和初始位相 ϕ_1 。

在正弦调制的状态下，当数据切片的调制时间变量满足

$$a_1 \sin(2\pi f_m t_c + \phi_1) = 0 \quad (10)$$

时，对应的数据切面为谱线吸收函数。这其中有两个时刻， t_{c1} 和 t_{c2} 满足这个要求：

$$2\pi f_m t_{c1,2} + \phi_1 = 0, \pi \quad (11)$$

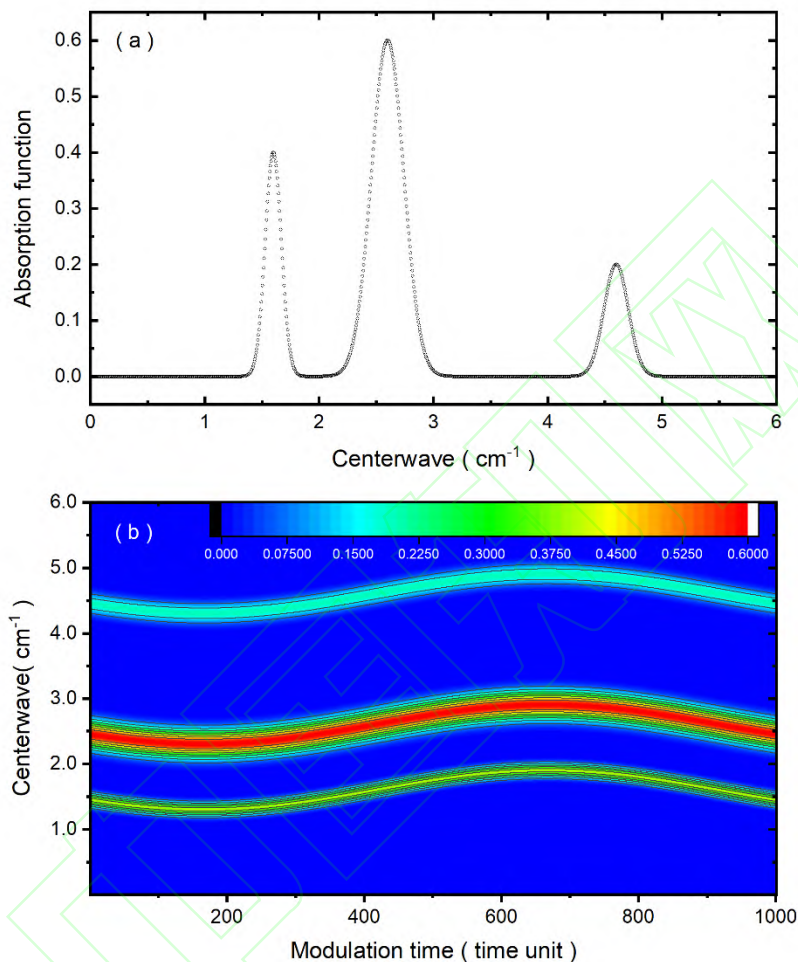


图 1 (a) 三个吸收谱线的吸收函数；(b) 利用波长的慢速均匀扫描和快速单频正弦调制得到的数据矩阵等高图像

Fig. 1. (a) The absorption function of three absorption lines; (b) The contour image of the data matrix with a slow uniform scanning of the center wavelength and a fast sinusoidal modulation

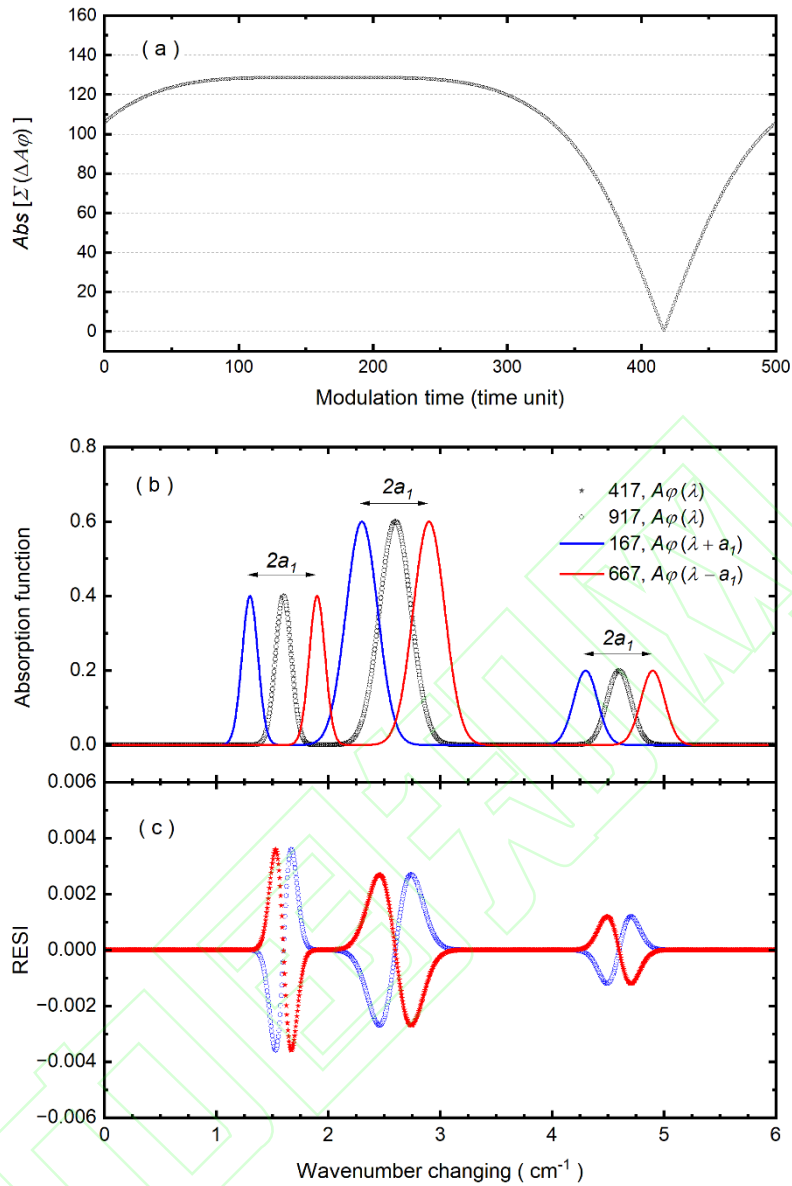


图 2 (a) 对应的两个间隔半个周期的吸收函数面积绝对值之差随调制时间的演化曲线；(b) 两个标准吸收函数曲线和调制时间偏置 1/4 周期对应的吸收函数曲线；(c) (b) 中的两个标准吸收函数曲线和理论值的 RESI

Fig. 2. (a) The evolution curve of the difference of the absolute value of the areas of two absorption function with a half-period interval; (b) The two standard absorption function curves and the absorption function curves with an offset of 1/4 period; (c) The RESI of the two standard absorption functions in figure 2(b) and theoretical values.

这里无需初始位相即可确定两个调制时间的值：一方面这两个调制时间的间隔为半个周期；另外这两个时刻的谱线吸收函数值相等，除此之外任何两个谱线吸收函数的值均有差异。利用这两个条件，我们可以首先确定谱线吸收函数的轮廓。所用的求解两个相隔半个周期的谱线吸收函数轮廓之差的绝对值如下：

$$\int \text{abs}(\varphi\{\lambda_c + a_1 \sin[\phi(t_{c1})]\} - \varphi\{\lambda_c + a_1 \sin[\phi(t_{c2})]\}) d\lambda_c \geq 0 \quad (12a)$$

$$\phi(t_{c1,2}) = 2\pi f_m t_{c1,2} + \phi_1 \quad (12b)$$

$$\phi(t_{c2}) - \phi(t_{c1}) = \pi \quad (12c)$$

对于离散数值可以变为：

$$\sum \text{abs}(\varphi\{\lambda_c + a_1 \sin[\phi(t_{c1})]\} - \varphi\{\lambda_c + a_1 \sin[\phi(t_{c1}) + \pi]\}) \geq 0 \quad (13)$$

当(13)式取极小值时，对应的数据矩阵中的切片为谱线吸收函数。

图 2(a)是上述取值随调制时间单元的演化曲线。在数据矩阵中，最小值对应的切片为标准谱线吸收函数轮廓，第一个时刻为 417 个时间单位，第二个时刻为 917 个时间单位，中间相隔半个周期，对应的标准谱线吸收函数曲线如图 2(b)所示，两个调制时刻对应的位相角为 $2\pi \cdot 0.417 + \frac{\pi}{6} = 1.000667\pi$ ， $2\pi \cdot 0.917 + \frac{\pi}{6} = 2.000667\pi$ 。和标准谱线吸收函数偏离 0.25 个周期的线轮廓对应 $A\varphi(\lambda_c \pm a_1)$ 两条曲线，图形中三个峰值的偏离均为分别 $\pm 0.3 = a_1$ 。

对于非正弦的调制而言，调制项可以进行傅里叶展开，不失一般性，可以表示成：

$$f(t) = \sum a_n \sin(2n\pi f_m t + \phi_n), \quad t \leq T \quad (14)$$

在数值模拟中，选取基频、倍频和三倍频的叠加来描述调制项：

$$\lambda(\mathbf{n}) = \lambda_c(0) + 0.5 \times 10^{-5} \mathbf{n} + 0.5 \sin\left(\frac{\pi \mathbf{n}}{500} + \frac{\pi}{6}\right) + 0.1 \sin\left(\frac{2\pi \mathbf{n}}{500} + \frac{\pi}{3}\right) + 0.03 \sin\left(\frac{3\pi \mathbf{n}}{500} - \frac{\pi}{4}\right)$$

(15)

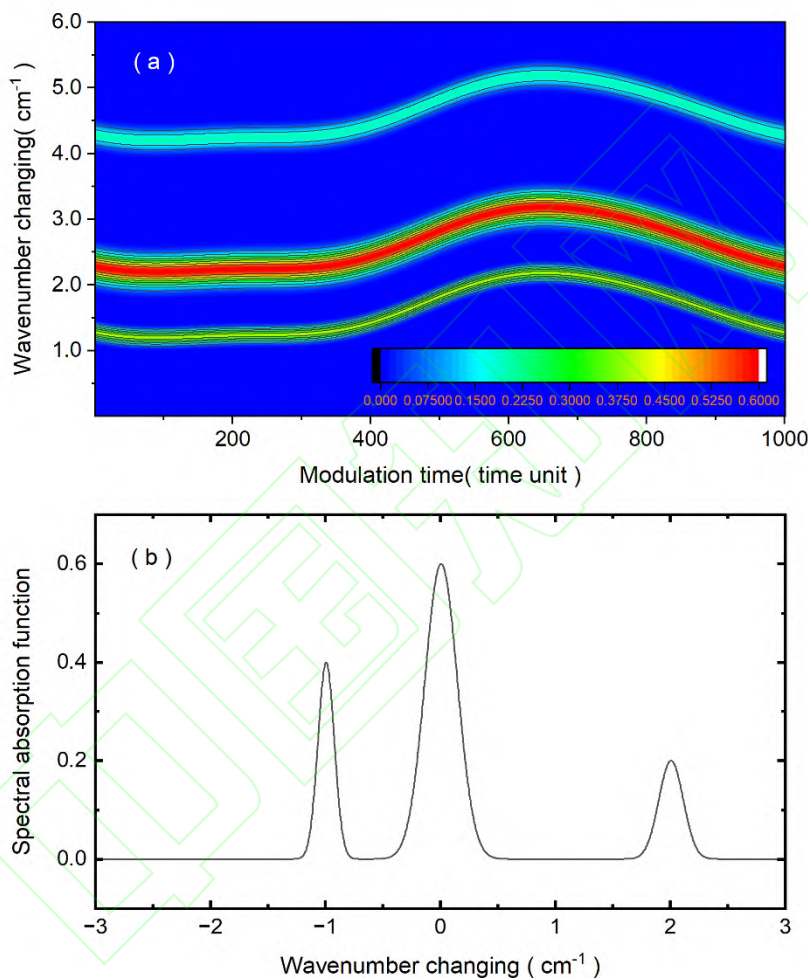


图 3 (a) 调制为 3 个频率的叠加时的数据矩阵对应的等高吸收线图；(b) 利用等高吸收图得到的以吸收最大值出现在零波数点的吸收函数曲线

Fig. 3. (a) The contour absorption map of the data matrix with a superposition modulation of three frequencies; (b) The absorption function curve obtained by using contour absorption graph where the absorption maximum is defined at the zero point of the wavenumber changing.

由此得到的数据矩阵图形如图 3(a)所示，对应得到的谱线吸收函数轮廓如图 3(b)

所示，这里选择吸收最大值出现在波数为零的点，通过数据库的标定可以定义出零点的绝对波数值。另外，可以通过简单的坐标平移实现理论起点和实际扫描起点的重合。事实上，每个调制时刻的吸收谱线轮廓均相同，所不同的是起始位置具有不同的偏置：当调制是正弦调制时，起始位置的偏置遵循简单的关系；当调制中含有多个频率时，起始位置的偏置关系变得复杂，其复杂性起源于每个频率的调制具有各自不同的初始位相。



4 实验验证

为了验证上面数据处理方法的可行性和有效性，建立了如图 4 所示的实验装置。首先泵空吸收气室，然后充入一定压力的浓度约为 0.1% 的 CO 气体。信号发生器(Keysight 33500B)产生的调制电流信号输入到激光控制器(Thorlabs ITC4001)，控制中心波长的激光源来自 2327nm DFB 激光器，输出的激光束由分束器分成三束，分束比为 4:4:2。第一束光束通过一个光学长度为 52.5 cm 的吸收单元，然后吸收信号被红外探测器(Thorlabs)接收。第二束穿过与 $(L_1 + L_2)$ 长度相同的外部空气，并被同类型的探测器作为参考信号接收。第三条路径通过锗标尺获取干涉信号进行波长识别。三种信号由同一示波器(Agilent DSO-X 3024A)显示和记录。根据这些数据，可以精确地确定波长扫描范围和波长调制深度。

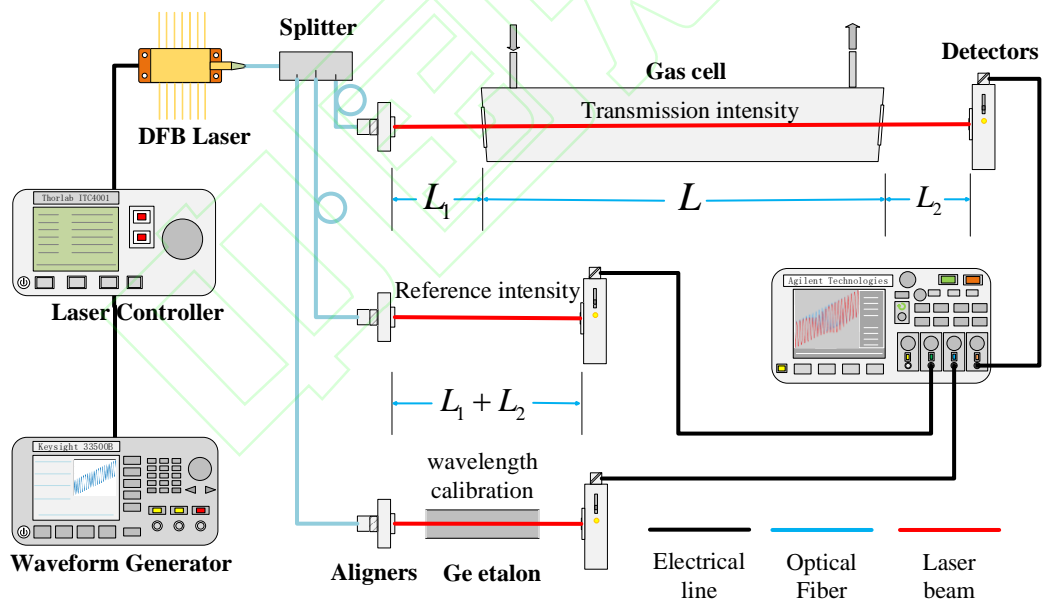


图 4 波长慢速均匀变化和快速调制激光吸收光谱实验装置

Fig. 4. Experimental apparatus for laser absorption spectra with slow uniform wavelength scanning and fast wavelength modulation.

在测定 CO 的 4300.700 cm^{-1} 谱线吸收时，调制频率为 4.0kHz ，调制深度为 0.0614 nm ， 50 ms 的扫描波长范围为 0.759 nm ，总共有 200 个调制周期，每个调制周期由 1000 个数据点组成，参考光和透射光强度随时间的演化曲线如图 5(a) 所示。在 6336 cm^{-1} 附近，有两条 CO_2 吸收线，它们的中心波长分别为 1578.3339 nm 和 1578.2225 nm 。在上述相同条件下，使用波长为 1578 nm 的二极管激光器作为激光探头，用总光程约为 25 m 的赫里奥特池代替上面的普通吸收池，会产生较强的光吸收。波长调制的频率和振幅分别为 10 kHz 和 0.0342 nm 。在 20 ms (共 200 个调制周期) 的时间范围内，扫描波长范围为 0.4109 nm 。在吸收较强的情况下，图 5 为透射光和参考光随时间变化的强度数据，图 6 为所对应的数据矩阵等高线图， $\Delta\lambda_s$ 是一个调制周期内中心波长的变化值。

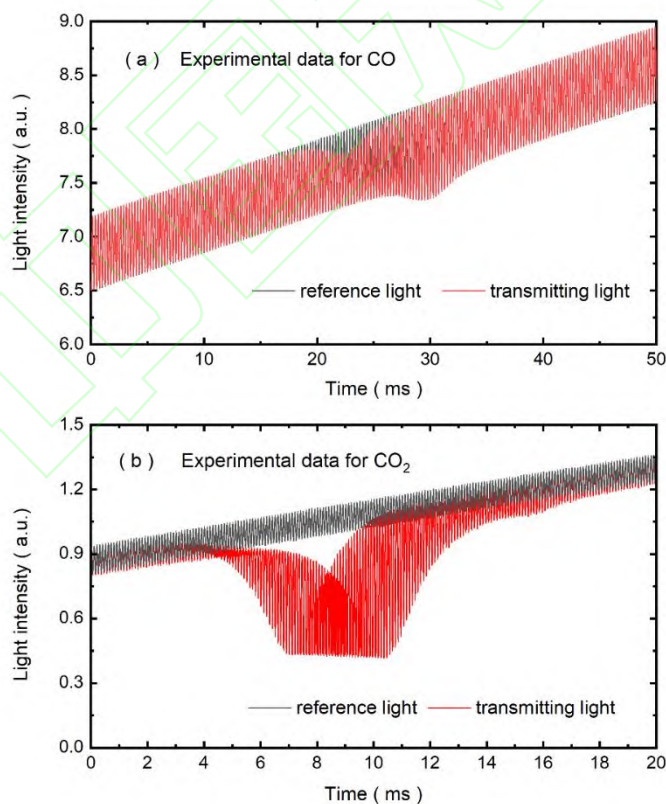


图 5 (a) CO 和 (b) CO_2 波长扫描和调制的激光吸收光谱实验数据

Fig. 5. Tested data of the laser absorption spectroscopy experiments for (a) CO and (b) CO₂ with the slow scanning and fast modulation of the laser wavelength.

从图 6 可以看出，等高线沿横轴的走向为正弦波，由此波长的快速调制应该对应单频的正弦调制。利用 (13) 式对应求解两个吸收函数积分之差的方法，可以得到对应的两个切片曲线（相差半个调制周期）的吸收函数曲线如图 7(a)和 7(b)所示，可以发现，两个吸收函数的等同性具有相当的精度。这里 0 点波长对应着扫描过程的开始波长，而终点波长对应着扫描过程的结束波长，即波长数值和中心波长等效。

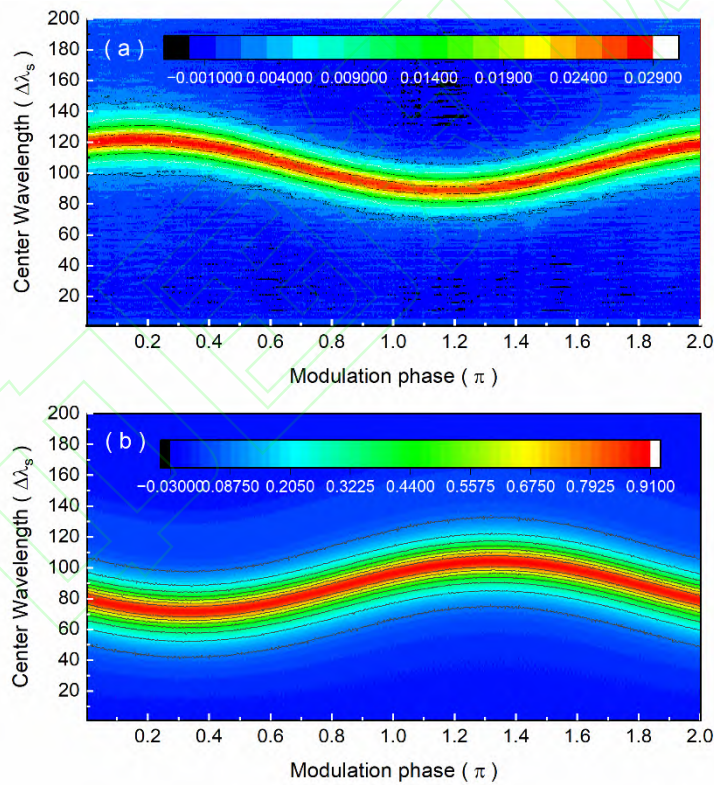


图 6 CO 和 CO₂ 波长扫描和调制的激光吸收光谱实验数据对应的数据矩阵

Fig. 6. The contour image of the data matrix from the laser absorption spectroscopy experiments for (a) CO and (b) CO₂ with the slow scanning and fast modulation of the laser wavelength.

如果从图 6(a)和(b)中分别随意选择一组切片, 仍然可以得到和图 7 相类似的吸收函数轮廓, 但是起始波长和终点波长不再等于对应的中心波长, 不同的切片对应着不同的波长偏移, 但起点和终点的波长跨度相等, 如图 8(a)和 8(b)所示, 这里从数据矩阵图形中选了 4 个不同调制位相($0, 0.5\pi, 1.0\pi$ 和 1.5π)的切片, 可见吸收函数的轮廓相等, 起始波长有所差别。另一方面, 也可以看出: 对于吸收幅度较高的吸收函数, 对应的测试精度较高, 从图 8 中得到的单频调制幅度具有较高的精度, 求解方法参考图 2(b), 这里初始位相的差别导致了图 8 中的谱线吸收函数的轮廓的起点和终点和实际扫描的对应起始和终止波长的差别。

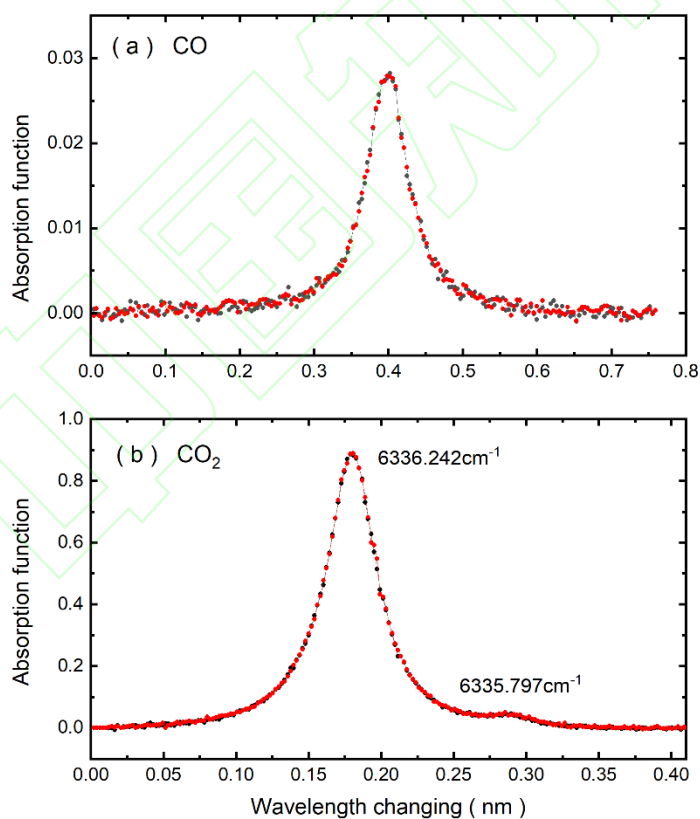


图 7 利用实验得到的数据矩阵数据, 利用时间间隔为半个调制周期的两个切片沿波长扫描方向积分值之差绝对值最小得到的吸收光谱轮廓: (a) CO; (b) CO₂

Fig. 7. The absorption spectrum profiles for (a) CO and (b) CO₂ where the method is utilized by minimizing the absolute difference of the integral values along the center wavelength scanning direction between two slices with an interval of half a modulation period and based on the data matrix data shown in figure 6.

图 7(b)和图 8(b)中所涉及的两条谱线的峰间距为 0.1114 nm，理论上峰强度之比为 33.16^[25]。图 7(b)所示的波长间隔都与理论值非常吻合。然而，峰值比远低于理论预期。究其原因，波数为 6336.242cm⁻¹ 的强吸收谱线展宽了波数为 6335.797cm⁻¹ 的弱吸收谱线的整体轮廓。因此，这两个峰值的标准波长间隔也可以反过来定义波长慢速均匀扫描的范围，这样在实际测量中，所真正需要的激光参数只剩下波长的快速调制频率，而由图 8(b)的数据可以看出，调制的具体形态无需再象其它数学处理过程那样需要具体的测量和了解，且由此得到的调制幅度为 0.0339nm，和实验测到的调制幅度 0.0342nm 非常接近。因此，相对于其它测量方法，这种方法应该更具有“免标定”的特点。

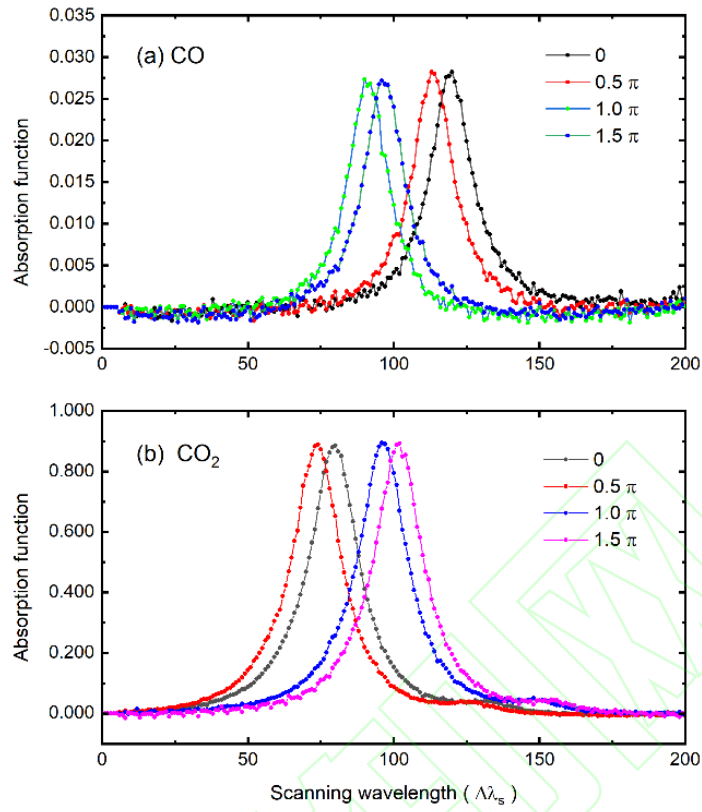


图 8 在两种测量中，从对应的数据矩阵中选择不同波长调制位相处的数据切片轮廓，均对应气体的吸收函数轮廓，只是波长边界发生了位移 (a) CO 和 (b) CO₂

Fig. 8. The data slice contours selected from the two tested data matrix with different wavelength modulation phases are all with the same spectral absorption function but with the different scanning wavelength boundary: (a) CO; (b) CO₂.

5 结论

在激光吸收光谱的测量技术中,基于激光波长慢速均匀扫描和快速调制的特点,提出一种新的利用得到的实验数据矩阵求解谱线吸收函数的数学处理方法,这里的关键突破是在测量中,所要求的数据除了参考光和透射光外,只有探测激光的快速调制频率和波长的慢速扫描范围。如果当谱线中包含多条谱线并有其中的谱线峰值间隔数据时,只需快速调制频率的数值。首先,如果确定波长的快速调制为简单的单频正弦调制时,在一个调制周期中,只有两个数据切片具有起始波长和实际扫描起始波长一致的特点,而且对应的吸收函数轮廓和实际吸收函数相同,且两个切片的位相差对应周期的一半。因此,这两个吸收函数轮廓沿中心波长方向的积分之差理论值为零,实际值则最小。更为广义的是,如果快速波长调制不为单频正弦时,由于任何一个切片均为谱线吸收函数轮廓的一部分,利用多个这样的切片,即可组合出完整的谱线吸收函数。在得到具体的谱线吸收函数后,具体参数可以利用已有的理论数据进行补充和标定。利用上述方法,分别对激光波长慢速均匀扫描和快速调制的激光吸收光谱实验数据进行处理,得到了正确的谱线吸收函数,验证了该类方法的正确性和可行性。

参考文献

- [1] Werle P A 1998 *Rev. Spectro. Chim. Acta. A.* **54** 197
- [2] Bain J R P, Johnstone W, Ruxton K, Stewart G, Lengden M, Duffin K 2011 *J. Lightw. Technol.* **29** 987
- [3] Reid J, Labrie D 1981 *Appl. Phys. B.* **26** 203
- [4] Rieker G B, Jeffries J B, Hanson R K 2009 *Appl. Optics.* **48** 5546
- [5] Wang Z H, Fu P F, Chao X 2019 *Appl. Sci.* **9** 2723
- [6] Goldenstein C S, Strand C L, Schultz I A, Sun K, Jeffries J B, Hanson R K 2014 *Appl. Optics.* **53** 356
- [7] Wang F, Jia S H, Wang Y L, Tang Z H 2019 *Appl. Sci.* **9** 9142816
- [8] Stewart G, Johnstone W, Bain J R P, Ruxton K, Duffin K 2011 *J. Lightw. Technol.* **29** 811
- [9] McGettrick J, Duffin K, Johnstone W, Stewart G, Moodie D G 2008 *J. Lightw. Technol.* **26** 432
- [10] Duffin K, McGettrick A J, Johnstone W, Stewart G, Moodie D G 2007 *J. Lightw. Technol.* **25** 3114
- [11] Sun K, Chao X, Sur R, Goldenstein C S, Jeffries J B, Hanson R K 2013 *Meas. Sci. Technol.* **24** 125203
- [12] Peng Z M, Du Y J, Ding Y J 2020 *Sensors.* **20** 681
- [13] Sun K, Chao X, Sur R, Jeffries J B, Hanson R K 2013 *Appl. Phys. B.* **110** 497
- [14] Peng Z M, Ding Y J, Che L, Yang Q S 2012 *Opt. Express.* **20** 11976
- [15] Du Y J, Peng Z M, Ding Y J 2018 *Opt. Express.* **26** 9263
- [16] Peng Z M, Du Y J, Ding Y J 2020 *Sensors.* **20** 616
- [17] Peng Z M, Ding Y J, Che L, Li X H, Zheng K J 2011 *Opt. Express.* **19** 23104
- [18] Tao B, Lei Q C, Ye J F, Zhang Z R, Hu Z Y, Fan W 2020 *Appl. Phys. B.* **126** 31
- [19] Tian X, Cao Y, Chen J J, Liu K, Wang G S, Tan T, Mei J X, Chen W D, Gao X M 2019 *Sensors.* **19** 820
- [20] Li H J, Rieker G B, Liu X, Jeffries J B, Hanson R K 2006 *Appl. Optics.* **45** 1052
- [21] Li J D, Du Y J, Peng Z M, Ding Y J 2019 *J. Quant. Spectrosc. Ra.* **224** 197

- [22] Sur R, Sun K, Jeffries J B, Socha J G, Hanson R K 2015 *Fuel*. **150** 102
- [23] Rieker G B, Jeffries J B, Hanson R K 2009 *Appl. Phys. B*. **94** 51
- [24] Cai T D, Gao G Z, Wang M R, Wang G S, Liu Y, Gao X M 2007 *J. Quant. Spectrosc. Ra.* **201** 136
- [25] Gordon I E, Rothman L S, Hill C, Kochanov R V, Tan Y, Bernath P F, Birk M, Boudon V, Campargue A, Chance K V, Drouin B J, Flaud J M, Gamache R R, Hodges J T, Jacquemart D, Perevalov V I, Perrin A, Shine K P, Smith M A H, Tennyson J, Toon G C, Tran H, Tyuterev V G, Barbe A, Császár A G, Devi V M, Furtenbacher T, Harrison J J, Hartmann J M, Jolly A, Johnson T J, Karman T, Kleiner I, Kyuberis A A, Loos J, Lyulin O M, Massie S T, Mikhailenko S N, Moazzen-Ahmadi N, Müller H S P, Naumenko O V, Nikitin A V, Polyansky O L, Rey M, Rotger M, Sharpe S W, Sung K, Starikova E, Tashkun S A, Auwera J V, Wagner G, Wilzewski J, Wcisło P, Yu S, Zak E J 2017 *J. Quant. Spectrosc. Ra.* **203** 3

Theoretical and experimental study for spectral absorption function inversion from tested data with slow scanning and fast modulated operation wavelength on laser absorption spectroscopy

Huang Zhi-Qiu¹⁾²⁾ Li Qi-Zheng¹⁾²⁾ Zhang Meng¹⁾²⁾ Peng Zhi-Min³⁾ Yang Qian-Suo¹⁾²⁾ [†]

1) *Key Laboratory for Mechanics in Fluid Solid Coupling Systems, Institute of Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190 China*

2) *School of Engineering Science, University of Chinese Academy of Science, Beijing 100049, China*

3) *State Key Lab of Power Systems, Department of Energy and Power Engineering, Tsinghua University, Beijing 100084 China*

Abstract

Based on the tested data of laser absorption spectra, a matrix slicing method is proposed to invert the absorption function of spectral lines by using the two parameters of laser modulation frequency and laser scanning range as well as transmitted wave signal and reference wave signal under the condition of slow uniform scanning wavelength and fast periodic modulation wavelength. When the modulation is single frequency sinusoidal modulation, an accurate contour of the spectral line absorption function can be obtained by using the matrix data consisting of the values of the transmitted wave signal by the reference wave signal through the minimum value of two slice integrals with the interval of a half modulation period, and the amplitude of modulation can be estimated. When the fast modulation of the wavelength is distorted to the multi-frequency superposition modulation, the absorption function is also formed by using the complementarity of multiple slices. The method above is utilized for a real absorption function inversion process involving multiple overlapping absorption lines in the range of the scanning

wavelengths. Moreover, the scanning range of laser wavelength can be calibrated by the interval parameters of several spectral lines in the scanning wavelength range. The absorption functions of CO at 4300.700cm^{-1} and CO₂ at 6336cm^{-1} are successfully obtained by using this matrix slice method for the experimental verification.

Keywords: wavelength modulation, wavelength scanning, absorption function, data matrix

