

## 准连续激光调制吸收谱的多谐波分析

齐汝宾<sup>1</sup>, 杜振辉<sup>1\*</sup>, 孟繁莉<sup>1</sup>, 李金义<sup>1</sup>, 高东宇<sup>1</sup>, 徐晓斌<sup>1</sup>, 陈文亮<sup>1,2</sup>, 徐可欣<sup>1</sup>

1. 天津大学精密测试技术及仪器国家重点实验室, 天津 300072  
2. 天津大学微光机电系统技术教育部重点实验室, 天津 300072

**摘要** 使用准连续二极管激光器进行多重调制光谱检测时,发现吸收光谱信号中存在着丰富的倍频、和频以及差频成分;从激光与气体吸收谱线的非线性作用角度研究了倍频、和频及差频等信号存在的必然性;从实验角度对信号特征进行研究,发现其中有些和频、差频成分的幅度比传统调谐二极管激光吸收光谱技术中的二次谐波信号的幅度更大,有望在准连续调制谱技术中提高检测的灵敏度。

**关键词** 准连续调制光谱技术;倍频/和频/差频检测;谐波信号

**中图分类号:** O433.1 **文献标识码:** A **DOI:** 10.3964/j.issn.1000-0593(2012)03-0586-04

### 引言

调谐二极管激光吸收光谱(tunable diode laser absorption spectroscopy, TDLAS)是灵敏度高、选择性好的气体分析技术<sup>[1]</sup>,通过对连续、单频激光二极管(laser diode, LD)的高频调制与谐波检测,可有效抑制各种噪声和干扰。已有多篇文献对连续波长调制谱(wavelength modulation spectroscopy, WMS)的各次谐波特性进行全面研究<sup>[2-4]</sup>,其中二次谐波(2f)信号的峰值与吸收线峰值相对应,且其幅度大、信噪比高,目前WMS技术中广泛采用2f-WMS信号<sup>[4,5]</sup>。WMS技术在环境监测、工业流程控制、科学研究等领域得到广泛应用。

LD在脉冲/准连续工作方式下,具有功耗低、热稳定性和环境适应性好、LD寿命长、峰值功率高等优势,在工业流程、环境监测等现场应用中,脉冲/准连续是LD非常重要的工作方式<sup>[6,7]</sup>。基于脉冲LD的光谱分析,多采用直接光谱检测方法<sup>[8,9]</sup>,检测灵敏度低。为了利用交流检测实现高灵敏的光谱分析,需要对准连续LD做多重调制, Namjou等<sup>[10]</sup>对红外外量子级联激光器做“锯齿波+脉冲+正弦”的三重调制, Weidmann等<sup>[11]</sup>在占空比为5%~50%的脉冲电流上叠加正弦信号驱动LD,使用锁相放大器对气体吸收谱的正弦2倍频进行解调,实现高灵敏检测。

我们在研究准连续LD的多重调制谱技术中,首次发现在吸收光谱信号中存在着丰富的倍频、和频及差频成分,并

存在多个比现有使用2f幅度更大的信号,这些谐波成分源于对LD电流的多重调制以及气体吸收谱线的线形特征。从理论和实验角度对准连续LD多重调制情况下的气体吸收谱线谐波特性进行了研究。

### 1 理论分析

#### 1.1 准连续LD的多重调制

在调制激光吸收光谱技术中,准连续LD的多重调制信号由脉冲信号、高频正弦信号及锯齿波信号等组成,如图1所示。根据LD的工作要求,脉冲信号的占空比一般为1%~50%,频率为几百Hz~几十kHz;正弦信号是测量的载波,根据系统的工作环境和测量的技术要求,正弦的频率一般在几kHz~几百kHz,调制频率越高越有利于对低频噪声的抑制;激光调制谱技术中的波长扫描可以由锯齿波信号实现,也可以利用LD脉冲注入电流热效应的波长扫描,前者的调

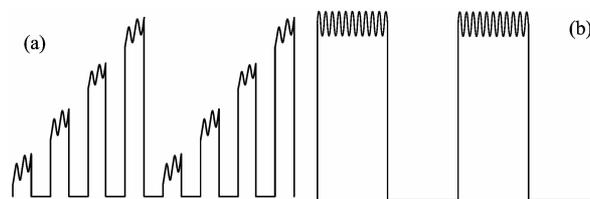


Fig. 1 Schematic of multi-modulation waveforms for quasi-continuous wave LD

(a): ramp+pulse+sine; (b): pulse+sine

收稿日期: 2011-06-29, 修订日期: 2011-09-28

基金项目: 国家高技术研究发展计划(863计划)项目(2009AA04Z160)和天津市自然科学基金重点项目(10JCZDJC22700)资助

作者简介: 齐汝宾, 1984年生, 天津大学精密测试技术及仪器国家重点实验室博士研究生 e-mail: qirubin@gmail.com

\* 通讯联系人 e-mail: duzhenhui@tju.edu.cn

谱范围小(<0.5 nm)、线性度好,而后者的调谐范围宽(>1 nm)、存在调谐非线性。

### 1.2 多重调制谱的谐波分析

对于图 1(a)所示的三重调制信号,设正弦信号频率为  $f_1$ ,方波信号频率为  $f_2$ ,解调信号(即锁相放大器的参考信号)频率为  $f_d$ 。则激光器在受到准连续电流驱动时,由于二极管有源区的热效应将会导致输出波长产生调谐,在准连续工作脉宽较短时,该波长调谐基本为线性变化<sup>[10]</sup>,因此,激光器在  $t$  时刻输出的瞬时频率可表示为

$$\nu(t) = (\nu_c + mt + \cos(f_1 t)) \cdot \text{sqr}(f_2 t) \quad (1)$$

式中,  $\nu_c$  为激光器输出的基本频率,与方波驱动电流幅度有关,  $m$  为二极管有源区热效应导致的输出激光频率调谐系数,  $\text{sqr}(f_2 t)$  为单位幅度方波信号。

在弱吸收情况下,激光通过气体吸收后的光强可表示为<sup>[1]</sup>

$$I(\nu) = I_0(\nu)[1 - \sigma_0 \bar{\chi}(\nu)NL] \quad (2)$$

式中,  $I_0(\nu)$  为激光器输出未经气体吸收时的光强,  $\sigma_0$  为吸收线中心处的吸收截面,  $\bar{\chi}(\nu)$  为气体吸收线形函数,  $N$  为气体浓度,  $L$  为气体吸收光程。激光输出基本频率  $\nu_c$  随调谐电流缓慢变化,在激光频率调制幅度很小情况下,激光输出光强近似不变,即  $I_0(\nu) \approx I_0$ 。

在大气压下,谱线展宽主要为压力展宽,因此气体吸收线形可用洛伦兹线形来表示。对式(2)表示的光强信号进行傅立叶级数展开,其  $n$  阶傅立叶余弦项系数为

$$A_{L,n}^{\text{even}}(\nu_c, m) = I_0 \sigma_0 NL \frac{2 - \delta_{n0}}{\tau} \int_0^{1/f_d} \chi_L(\nu) \cos(2\pi n f_d t) dt = I_0 \sigma_0 NL \frac{2 - \delta_{n0}}{\tau} \int_0^{1/f_d} \frac{(\Delta\nu_L)^2}{[\nu_0 - (\nu_c + mt + \cos(f_1 t)) \cdot \text{sqr}(f_2 t)]^2 + (\Delta\nu_L)^2} \cos(2\pi n f_d t) dt \quad (3)$$

式中,  $\nu_0$  为吸收线的中心频率,  $\Delta\nu_L$  为洛伦兹线形的半高半宽,  $\delta_{n0}$  为克罗内克符号。

由于洛伦兹线形函数的非线性特性,波长受到调制的光强信号与气体吸收线形相互作用后,在调制信号的各个频率组合(倍频、和频以及差频等)处将产生与吸收相关谐波信号。利用锁相放大器对检测器检测到的光强信号进行相敏检测,探测频率选择为准连续信号频率和正弦信号频率的各级倍频、和频以及差频上,即可得到式(3)表示的吸收信号的各项谐波信号。

当正弦信号频率为  $f_1$ ,方波信号频率为  $f_2$ ,谐波信号频率为  $f_h$ ,则能够检测到吸收信号的解调频率与正弦和方波信号频率间存在关系

$$f_h = m f_1 + n f_2 \quad (4)$$

其中  $m$  和  $n$  均为整数,且一般为绝对值较小的整数。由式(4)可知,谐波频率出现在正弦调制频率和方波频率的各级倍频以及各级和频或差频上,但不同阶次的倍频、和频或差频具有不同的信号幅度、线形。

## 2 结果与分析

### 2.1 实验系统

实验系统结构图如图 2 所示,由多通道函数发生器(Fluke284)生成各种信号组成准连续调制信号,通过激光驱动器(ILX LDC3908)驱动激光器工作,激光器的输出光经多光程池内的气体吸收后被光电探测器转换为电信号,并进行前置放大后输出到锁相放大器,锁相放大器的解调信号被采集卡采集到计算机进行处理分析。实验所用激光器为近红外DFB二极管激光器,工作在准连续模式下,利用调谐二极管激光吸收光谱技术探测  $\text{CO}_2$  在 1 579.574 nm 处的吸收线。

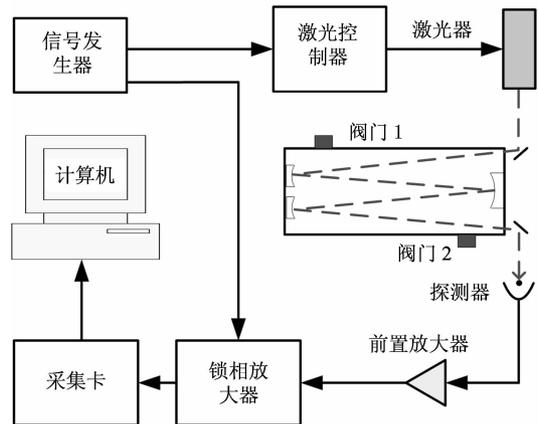


Fig. 2 Schematic diagram of the experimental apparatus

### 2.2 结果

实验研究了多组谐波频率所对应的吸收信号的线形、幅值,如图 3 所示为正弦频率为 50 kHz,方波频率为 17 kHz 以及锯齿频率 4 Hz 条件下的各组谐波信号,当解调信号频率为  $f_1 - f_2, f_1, f_1 + f_2, f_1 + 3f_2, f_1 + 5f_2, 4f_2, 6f_2, 8f_2 \dots$  时谐波信号在吸收线的中心处为过零点,具有与连续波长调制技术中的一次谐波具有同样的线形特征,这里统称为类一次谐波信号;当解调信号频率为  $2f_2, 3f_2, 5f_2, f_1 + 2f_2, f_1 + 4f_2, f_1 + 6f_2, 2f_1 + f_2, 2f_1 + 2f_2, 2f_1 + 3f_2 \dots$  时谐波信号在吸收线的中心处为峰值,具有与连续波长调制技

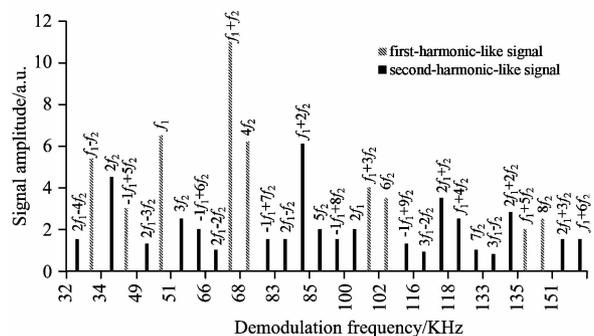


Fig. 3 Harmonic signals and their amplitudes when  $f_1 = 50$  kHz,  $f_2 = 17$  kHz

The broken histogram represents the first-harmonic-like signal; the solid histogram represents the second-harmonic-like signal

术中的二次谐波具有同样的线形特征,这里统称为类二次谐波信号。其中具有较大幅值的谐波信号的阶次一般较低,如对比一次谐波线形,当谐波频率为  $f_1$ ,  $f_1+f_2$ ,  $4f_2$  及  $f_1-f_2$  时信号幅度较大;对于类二次谐波线形,当谐波频率为  $2f_2$ ,  $f_1+2f_2$ ,  $f_1+4f_2$ ,  $2f_1+f_2$  时信号幅度较大,因此在后续的分析中将着重对这几组谐波信号进行分析。

### 2.3 讨论

由于各组调制频率下的谐波信号都遵循式(4)所描述规律,因此,这里选择一组具有代表性的调制频率,即正弦频率  $f_1$  为 50 kHz, 准连续(或方波)调制频率  $f_2$  为 17 kHz 时的谐波信号进行分析。

#### 2.3.1 类二次谐波信号

在 WMS 技术中,二次谐波信号相对于直接吸收信号或其他阶次谐波信号具有较大的信噪比,且在吸收线的中心处为峰值,因此被广泛应用于对气体浓度、压力、温度等的测量。从解调得到的各组类二次谐波信号中选择幅度较大的四组进行研究分析,解调频率分别为  $2f_2$ ,  $f_1+2f_2$ ,  $2f_1+f_2$  和  $f_1+4f_2$ , 并与通常所用正弦倍频处解调得的二次谐波信号(这里即解调频率为  $2f_1$ )进行比较,如图 4 所示。解调频率为  $f_1+2f_2$  时信号幅度最大,比通常所用  $2f_1$  信号大 3 倍以上。解调频率为  $2f_2$  和  $f_1+4f_2$  时信号线宽较宽。从图中还可看出,几组类二次谐波信号的峰值位置几乎都发生了偏移,后面的工作将对其原因进行分析研究。表 1 中类二次

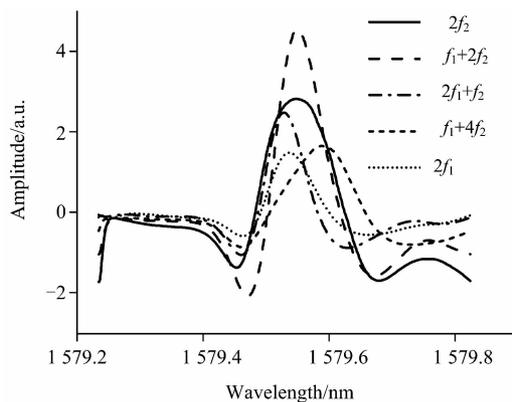


Fig. 4 The second-harmonic-like signals when  $f_1=50$  kHz,  $f_2=17$  kHz

The harmonic frequency are  $2f_2$ ,  $f_1+2f_2$ ,  $2f_1+f_2$ ,  $f_1+4f_2$ , and  $2f_1$

Table 1 The parameters of each demodulated signal

线形	解调频率	幅度/a. u.	线宽/nm
类二次谐波线形	$2f_2$	4.54	0.050
	$f_1+2f_2$	6.43	0.032
	$2f_1+f_2$	3.48	0.027
	$f_1+4f_2$	2.53	0.052
	$2f_1$	2.05	0.032
类一次谐波线形	$f_1$	6.68	0.113
	$f_1+f_2$	10.78	0.089
	$4f_2$	6.43	0.184
	$f_1-f_2$	5.62	0.078

谐波部分为图 4 所示几组信号的幅度和线宽等参数,从表中可知解调频率为  $f_1+2f_2$  时幅度最大,且线宽较小。

#### 2.3.2 类一次谐波信号

一次谐波信号在气体吸收线峰值波长处的值为零,因此在可调谐激光吸收光谱技术中主要应用于给激光器的温度或电流提供反馈信息,使激光器输出的中心波长锁定在气体的吸收线峰值波长处,以实现激光器输出波长的稳定。同时,一次谐波信号也可用于气体的浓度分析。图 5 所示为四组幅度较大的类一次谐波信号。对于该类信号,以信号的峰值与谷值之差作为信号幅度,峰谷值所处波长位置之差作为信号线宽,从图中可看出,解调频率为  $f_1+f_2$ (即 67 kHz)时的信号幅度最大,线宽也较窄;解调频率为  $4f_2$  时的信号线宽较宽,线形也不对称。四组类一次谐波信号的零值点(对应气体吸收的峰值点)也表现出了不同程度的偏移,后面的工作将对其原因进行研究。表 1 中类一次谐波线形部分为四组类一次谐波信号的幅度和线宽等参数。

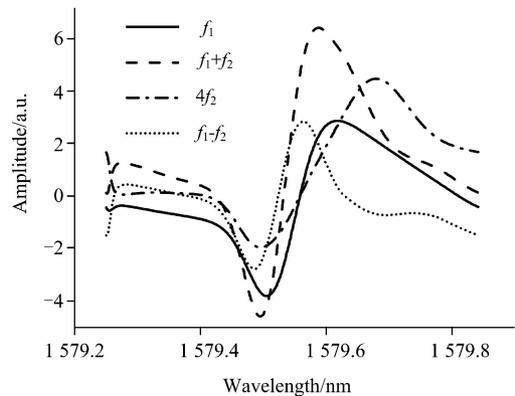


Fig. 5 The first-harmonic-like signals when  $f_1=50$  kHz,  $f_2=17$  kHz

The harmonic frequencies are  $f_1$ ,  $f_1+f_2$ ,  $4f_2$ , and  $f_1-f_2$

## 3 结论

准连续二极管激光器在应用于波长调制激光吸收光谱技术时与连续二极管激光器不同,其不但要受到一个高频正弦调制,还必须有准连续(或方波或脉冲)调制以使其能够满足正常激射条件。本工作研究了准连续二极管激光器在受到准连续信号、锯齿波信号和正弦信号三重调制时,通过相敏检测得到的与吸收相关的各种谐波信号。这些信号出现在准连续信号频率和正弦信号频率的各级倍频、和频和差频上。解调得到的各谐波信号中,幅度较大的类一次谐波线形信号出现在  $f_1$ ,  $f_1+f_2$ ,  $4f_2$  和  $f_1-f_2$  上,其中谐波频率为  $f_1+f_2$  的谐波信号幅度最大且线宽较窄;幅度较大的类二次谐波线形信号出现在解调频率为  $2f_2$ ,  $f_1+2f_2$ ,  $2f_1+f_2$  和  $f_1+4f_2$  上,其中谐波频率为  $f_1+2f_2$  的谐波信号幅度最大且线宽较窄。因此,本研究结果将会对准连续二极管激光器能够更好的应用于 WMS 技术中提供有意义的参考,并有望在准连续波长调制谱技术提高检测的灵敏度。

## References

- [ 1 ] Werle P. Spectrochim. Acta Part A, 1998, 54: 197.
- [ 2 ] Silver J A, Bomse D S. U. S. Patent, 6356350B1, 2002.
- [ 3 ] Dharamsi A N. J. Phys. D: Appl. Phys. , 1996, 29: 540.
- [ 4 ] Kluczynski P, Gustafsson J, Lindberg Å M, et al. Spectrochim. Acta Part B, 2001, 56: 1277.
- [ 5 ] Cui H X, Du Z H, Chen W L, et al. Lasers in Eng. , 2008, 18: 263.
- [ 6 ] Tittel F K, Bakhirkin Y, Kosterev A A, et al. Rev. Lasers Eng. , 2006, 34: 275.
- [ 7 ] DU Zhen-hui, ZHAI Ya-qiong, HU Bo, et al(杜振辉, 翟雅琼, 胡波, 等). Nanotechn. Precis. Eng. (纳米技术与精密工程), 2010, 8 (2): 24.
- [ 8 ] Kosterev A A, Tittel F K, Gmachl C, et al. Appl. Opt. , 2000, 39: 6866.
- [ 9 ] Normand E, McCulloch M, Duxbury G, et al. Opt. Lett. , 2003, 28: 16.
- [ 10 ] Namjou K, Cai S, Whittaker E A, et al. Opt. Lett. , 1998, 23: 219.
- [ 11 ] Weidmann D, Tittel F K, Aellen T, et al. Appl. Phys. B, 2004, 79: 907.

## Multi-Harmonic Analysis of Quasi-Continuous-Wave Laser Modulation Absorption Spectroscopy

QI Ru-bin<sup>1</sup>, DU Zhen-hui<sup>1\*</sup>, MENG Fan-li<sup>1</sup>, LI Jin-yi<sup>1</sup>, GAO Dong-yu<sup>1</sup>, XU Xiao-bin<sup>1</sup>, CHEN Wen-liang<sup>1,2</sup>, XU Ke-xin<sup>1</sup>

1. State Key Laboratory of Precision Measuring Technology and Instruments, Tianjin University, Tianjin 300072, China

2. Key Laboratory of Micor-Opto-Electro-Mechanical System Technology (Tianjin University), Ministry of Education, Tianjin 300072, China

**Abstract** Numerous harmonic components such as multiple frequency, sum frequency and difference frequency of multiple modulation signals were found in quasi-continuous-wave (QCW) diode laser modulation absorption spectroscopy. Then, the authors analyzed these harmonic components' existence in terms of non-linear interactions of laser and gas absorption line. And the signals' characteristics were studied experimentally. The results shows that there are some sum frequency and difference frequency components that have larger amplitudes compared to the second harmonic wavelength modulation spectroscopy signal (2f-WMS) commonly used in tunable diode laser spectroscopy (TDLAS), and it may improve the detection sensitivity of QCW modulation spectroscopy.

**Keywords** Quasi-continuous-wave modulation spectroscopy; Multiple frequency/sum frequency/difference frequency detection; Harmonic signal

(Received Jun. 29, 2011; accepted Sep. 28, 2011)

\* Corresponding author