Website: ycyk.brit.com.cn

# 基于背景扣除的弱吸收信息精确提取方法研究

张步强,牛慧文,钟翔雨,郑 林,宁佳晨,史 青,周建发,彭泳卿 (北京遥测技术研究所北京100076)

摘要:随着半导体器件的快速发展,基于分子振-转吸收光谱的研究日益深入,以可调谐半导体激光吸收光谱 (Tunable Diode Laser Absorption Spectroscopy, TDLAS)为代表的检测技术取得巨大进步,应用领域进一步扩大,已有超 过一千类仪器应用于连续监测以及过程控制,每年出售的气体检测仪器占据了红外气体传感检测仪器总数的5%以上,已 实现不同领域组分浓度、温度、压力等参数的高精度探测。本文针对仪器开发领域目标吸收信息被完全覆盖的复杂应用环 境,利用调制技术将吸收信息转移到高频部分,经过分通道背景扣除和谐波信号归一化处理提取吸收信息。以测量含硫天 然气中微量H<sub>2</sub>S为例,天然气中CH<sub>4</sub>含量超过90%,目标组分H<sub>2</sub>S的吸收信息被完全覆盖,将吸收信息转移到1kHz频率, 得到的谐波信号峰值与H<sub>2</sub>S浓度呈正相关,线性参数达到0.9999,实现了弱吸收信号的有效提取,从方法上验证了提取弱 吸收信号的有效性,进一步扩展了光学气体传感的应用领域,为仪器开发提供技术保障。

关键词:吸收光谱;弱信号;背景扣除;精确提取

中图分类号: TP212; O433.1 文献标志码: A 文章编号: 2095-1000(2023)05-0119-07

**DOI**: 10.12347/j.ycyk.20221212001

引用格式:张步强,牛慧文,钟翔雨,等.基于背景扣除的弱吸收信息精确提取方法研究[J].遥测遥控,2023,44(5): 119-125.

# Research on accurate extraction method of weakly absorbed information based on background deduction

ZHANG Buqiang, NIU Huiwen, Zhong Xiangyu, Zheng Lin, Ning Jiachen, SHI Qing, ZHOU jianfa, PENG Yongqing (Beijing Research Institute of Telemetry, Beijing 100076, China)

**Abstract:** With the rapid development of semiconductor devices, the research based on molecular vibration-rotation absorption spectroscopy has been deepened, significant progress has been made in detection methods represented by Tunable Diode Laser Absorption Spectroscopy (TDLAS), the application field has gradually expanded, and more than 1 000 instruments have been used in continuous emission monitoring and industrial process control and other fields, TDLAS-based gas detection instruments sold every year account for more than 5% of the total number of infrared gas sensing and detection instruments, and have achieved high-precision detection of parameters such as component concentration, temperature, and pressure in different fields. In this paper, in a complex application environment where the target absorption information in the instrument development field is completely covered, modulation technology is used to transfer the absorption information to the high-frequency part, and the absorption information is extracted through multi-channel background subtraction and harmonic signal normalization processing. Taking the measurement of trace  $H_2S$  in sulfur-containing natural gas as an example, when the  $CH_4$  content in natural gas exceeds 90%, the absorption information of the target component  $H_2S$  is completely covered, and the absorption information is transferred to a frequency of 1 kHz. The peak value of the harmonic signal obtained is positively correlated with the  $H_2S$  concentration, with a linear parameter of 0.999 9, achieving effective extraction of weak absorption signals. The method verifies the effectiveness of extracting weak absorption signals is verified, which further expands the application field of optical gas sensing and provides technical support for instrument development.

Keywords: Absorption spectrum; Weak signal; Background subtraction; Precise extraction

Citation: ZHANG Buqiang, NIU Huiwen, Zhong Xiangyu, et al. Research on accurate extraction method of weakly absorbed

information based on background deduction[J]. Journal of Telemetry, Tracking and Command, 2023, 44(5): 119-125.

# 引 言

TDLAS技术是一种非入侵式高分辨光谱多参 数原位测量,最早可以追溯至20世纪60年代,已 成功应用于各种环境气体介质参数的精确测量, 如气体温度、环境总压、气流速度等,具有高选 择性、高灵敏以及实时测量的特点印。按照注入激 光器的电流类型,分为直接吸收(Direct Absorption, DA) 和波长调制 (Wavelength Modulation, WM)技术,直接吸收的应用集中在吸收线相对孤 立、受临近干扰吸收较弱、能够产生高信噪比的 环境[2,3]。对于较弱的吸收,如目标气体浓度较低, 直接测量难以获得理想的信噪比;或者受到复杂 背景吸收的影响,目标吸收被整体淹没,直接吸 收技术一般不能通过拟合或积分方式得到精确的 吸光度,也就不能得到准确的流场参数信息。纯 粹应对目标浓度低的情况可以通过增加光程实现, 但是背景干扰严重时,光程作为共有条件的变化 难以实现目标吸收的有效剥离,此时需要利用有 效的背景扣除方法实现目标吸收信息的精确 提取[4]。

在基于光学原理的弱吸收信号检测方面,普 林斯顿大学<sup>[5]</sup>研制的CO<sub>2</sub>测量装置,该装置同时使 用直接吸收和波长调制技术获得了ppm量级的检 测限;普林斯顿大学<sup>[6]</sup>研制的N<sub>2</sub>O和CO同时测量 装置,使用最小二乘拟合方法进行浓度反演,当 调制参数达到最优即2.2时,两种气体的检测限均 能够到10°量级;莱斯大学<sup>[7]</sup>实现了N<sub>2</sub>O、CH<sub>4</sub>、 H<sub>2</sub>O的同时探测,改变压强使其降低,从而实现背 景有效扣除,检测限分别能够到ppm量级以上。 国内关于叠加光谱信号有效提取的研究相对较晚, 研究单位主要有中国科学院安徽光学精密机械研 究所<sup>[8,9]</sup>、天津大学<sup>[10,11]</sup>等,但是应用到测量设备上 的公开报道较少,还是以实验室的研究为主。

吸收光谱产生的原因是介质与电磁波的相互 作用,物质对光的吸收光谱位置由能级差决定。 图1表示单波长光源穿过气体吸收介质,当激光器 的出光频率正好等于分子振-转能级差时,分子将 吸收光子,实现低能级到高能级的跃迁。

对于理想的均匀介质,光束的强度和流场参数信息遵循朗伯比尔定律(Beer law):





Fig. 1 Schematic diagram of gas molecules on the laser path due to absorption transition

$$\tau(v) = \left(\frac{I_i}{I_0}\right)_v = \exp\left(\sum_j -S_j(T) \cdot P \cdot x \cdot l \cdot \phi_j\right)$$
(1)

其中,  $\tau$ 表示透过率, v表示激光器输出频率(通常 用波数 cm<sup>-1</sup>表示, 与波长 $\lambda$ 关系为:  $v=1/\lambda$ ),  $I_0 \pi I_i$ 分别是吸收前和吸收后的光强,  $S_j$ 、 $\phi_j$ 分别表示分 子*j*跃迁的吸收线强和线性函数, T、P、l、x分别 表示气体温度、环境总压、有效吸收光程和体积 分数。另外线性函数在频域范围具有归一化的特 点, 即 $\int_{0}^{+\infty} \phi_j dv = 1$ , 则吸光度A可表示为:

$$A = P \cdot X \cdot L \cdot S(T) \tag{2}$$

本文基于调制光谱技术背景精确扣除方法, 实现复杂测量环境中弱吸收信号的有效提取。

#### 1 波长调制基本原理

当给激光器注入持续扫描的锯齿波和频率为f 的调制波形时,出光频率可以描述为:

$$v(t) = \overline{v}(t) + a\cos(\omega t) \tag{3}$$

其中, $\bar{v}(t)$ 为中心波长, $\omega$ 为调制信号的角频率(其 中 $\omega=2\pi f$ ),a表示调制深度。激光器频率被调制的 同时强度同样被调制,此时光强可表示为:

 $I_0(t) = \bar{I}_0[1 + i_0 \cos(\omega t + \varphi_1) + i_2 \cos(2\omega t + \varphi_2)]$  (4) 其中, $\bar{I}_0$ 表示平均光强, $i_0$ 、 $i_2$ 分别为被 $\bar{I}_0$ 归一化的 调制幅度, $\varphi_1$ 、 $\varphi_2$ 分别是线性和非线性相位差,此 处只考虑前两阶强度响应,这些参数依赖于激光 器的频率和光强响应特性,激光束穿过气体介质 后的光强表示为:

 $I_{t}(t) = I_{0}(t) \cdot \tau(\bar{v}(t) + a\cos(\omega t))$ (5) 其中,  $\tau$ 表示透过率, 对其进行傅里叶级数展开:

$$\tau(v(t)) = \sum_{k=0}^{\infty} H_k(\bar{v}, a) \cos(k\omega t)$$
(6)

其中, $H_k$ 为 $\tau$ 的傅里叶系数,结合公式(1),可以得 出 $H_k$ 的表达式:

$$H_{0} = \frac{1}{2\pi} \int_{-\pi}^{\pi} \exp\left(\sum_{j} S_{j}(T) \cdot \phi_{j}(\overline{\nu} + a\cos\theta) \cdot P \cdot x_{j} \cdot L\right) d\theta \quad (7)$$
$$H_{k} = \frac{1}{\pi} \exp\left(\sum_{j} S_{j}(T) \cdot \phi_{j}(\overline{\nu} + a\cos\theta) \cdot P \cdot x_{i} \cdot L\right) \cos k\theta d\theta,$$
$$(8)$$

由图2可知,对于任意调制深度,H的峰值随 阶数的增加而降低,并且偶次H分量的峰值与吸 收谱线的中心频率重合,而奇次H分量的峰值不 在中心频率处,中心频率初值为0。



Fig. 2 Waveforms of 1st to 6th order *H* components

# 1.1 背景扣除原理

在利用调制吸收光谱技术用于仪器开发时, 最常用的处理方法即利用公式8给出的H分量与吸 收气体的浓度呈正相关关系,通常选择二次谐波 实现组分含量计算。获取谐波分量的过程即光谱 解调,将探测器接收到的调制吸收光强信号*I*<sub>i</sub>(*t*)与 参考信号相乘,使得对应的谐波成分转移到直流 部分,对于单通道解调的参考信号即 cos(2πnf), 其中n为谐波次数,对于双通道解调的参考信号为 两个正交信号 cos(2πnf)和 sin(2πnf),再通过低通 滤波提取,得到各阶次谐波。以2次谐波为例,经 解调的2f信号X分量和Y分量表示为:

$$X_{2f} = \frac{GI_0}{2} \left[ H_2 + \frac{i_0}{2} (H_1 + H_3) \cos \varphi_1 + i_2 \left( H_0 + \frac{H_4}{2} \right) \cos \varphi_2 \right]$$
(9)

$$Y_{2f} = -\frac{GI_0}{2} \left[ \frac{i_0}{2} (H_1 - H_3) \sin \varphi_1 + i_2 \left( H_0 - \frac{H_4}{2} \right) \sin \varphi_2 \right]$$
(10)

其中,G表示光电增益系数,双通道R2;表示为:

$$R_{2f} = \sqrt{X_{2f}^2 + Y_{2f}^2} \tag{11}$$

测量介质中没有光子被吸收时,即可得到背景信号:

$$X_{2f}^{0} = \frac{G\bar{I}_{0}}{2}i_{2}\cos\varphi_{2} , \quad Y_{2f}^{0} = \frac{G\bar{I}_{0}}{2}i_{2}\sin\varphi_{2} , \quad R_{2f}^{0} = \bar{I}_{0}i_{2} \quad (12)$$

根据上式可以看出:没有光子被吸收时, X<sub>2</sub>, Y<sub>2</sub>以及 R<sub>2</sub>均与i<sub>2</sub>有关系。基于此可以认为:即使没 有干扰气体的存在,谐波信号也具有一定的幅值。 当存在干扰时,可以通过相应的算法实现干扰气体 以及背景的同时扣除,扣除方法可以描述为:

$$S_{2f} = \sqrt{\left(X_{2f} - X_{2f}^{0}\right)^{2} + \left(Y_{2f} - Y_{2f}^{0}\right)^{2}}$$
(13)

对于单通道来说,只有 $X_{y}$ 分量,对应的扣除 后的谐波信号表示为 $(X_{y}-X_{y}^{0})$ ,单通道输出与参 考信号的初始相位有关,此时存在相位匹配以及 长期工作相位稳定性问题,而双通道输出则能够 有效避免该现象发生。

#### 1.2 归一化处理方法

无论是单通道输出还是双通道输出,*S*<sub>2</sub>/信号 幅值与增益系数及光强均有关系,这两个因素在 仪器研制时均无法避免。对于1*f*信号同样利用1.1 节中的解调方法得到,其*X*<sub>1</sub>,*Y*<sub>1</sub>,以及*R*<sub>1</sub>,可表示为:

$$X_{1f} = \frac{G\bar{I}_0}{2} \left[ H_1 + i_0 \left( H_0 + \frac{H_2}{2} \right) \cos \varphi_1 + \frac{i_2}{2} (H_1 + H_3) \cos \varphi_2 \right]$$
  

$$Y_{1f} = -\frac{G\bar{I}_0}{2} \left[ i_0 \left( H_0 - \frac{H_2}{2} \right) \sin \varphi_1 + \frac{i_2}{2} (H_1 + H_3) \sin \varphi_2 \right]$$
(14)  

$$R_{1f} = \sqrt{X_{1f}^2 + Y_{1f}^2}$$

由上式可知, R<sub>1</sub>,同样与增益系数和光强有关, 用 1f对 2f信号进行点对点相除实现归一化,能够 消除光强抖动以及其他噪声或损耗对测量的影响, 经过处理的2f信号可以表示为:

$$S_{2flf-bgs} = \sqrt{\left(\frac{X_{2f}(t)}{R_{lf}} - \frac{X_{2f}^{0}(t)}{R_{lf}^{0}}\right)^{2} + \left(\frac{Y_{2f}(t)}{R_{lf}} - \frac{Y_{2f}^{0}(t)}{R_{lf}^{0}}\right)^{2}}(15)$$

其中, bgs表示 back ground subtract(背景吸收)。

### 2 算法实例

# 2.1 问题提出

利用吸收光谱精确测量流场参数的前提是目

标吸收线吸收信息的有效获取,针对复杂环境的 测量需求,理想的测量环境是目标吸收线相对孤 立,不受背景吸收的影响。但是在实际测量时, 这种理想状态难以满足,尤其在某些测量环境中, 不能通过选线分析得出理想的目标吸收线,并且 背景吸收强度超过目标吸收,此时目标吸收信息 的精确提取需要利用先进的背景扣除方法实现。 我国天然气资源具有高含硫特点,含硫天然气的 主要成分硫化氢(H<sub>2</sub>S)具有极强的毒性,一旦发生 气体泄漏,便会出现严重的安全事故。当测量天 然气中H<sub>2</sub>S的浓度时,可以认为载气为甲烷(CH<sub>4</sub>), 结合光器件的发展现状,对于H<sub>2</sub>S的测量主要集中 在1.5~1.7 µm波段范围,该波段是应用于仪器开发 的最佳选择,图3是标准环境(温度: 296 K,压 强: 1 atm)H<sub>2</sub>S的吸收线列表。

根据图3可以看出,在1.5~1.7 μm波段范围, H<sub>2</sub>S的吸收线强度均在10<sup>-3</sup>量级,如果是单纯的硫 化氢测量,能够通过增加光程的方式提高测量灵



range of 1.5~1.7 µm

敏度和检测限,当测量天然气中 $H_2S$ 含量时,需要 考虑混合气中其他组分吸收带来的影响。首先,设 置测量环境参数:压强P=1 atm、光程L=1000 cm、 温度T=296 K;甲烷的摩尔分数 $X_{CH_4}=0.95$ 、硫化氢 的摩尔分数 $X_{H_2S}=5\times10^{-6}$ 、水汽含量 $X_{H_2O}=2000\times10^{-6}$ , 其余组分为高纯氮气,根据初步选线分析,将激光 器出光范围设置为 $6340\sim6360$  cm<sup>-1</sup>。



Fig. 4 Absorbance of three gases in the range of 6  $340 \sim 6 360 \text{ cm}^{-1}$ 

由图4可知,天然气中痕量硫化氢的吸收被甲 烷的吸收完全覆盖,而水汽吸收的影响可以忽略, 另外,整个波段均不能找到适合H<sub>2</sub>S测量的孤立吸 收线。按照技术手段角度分析,直接吸收难以实 现吸收信息的完全提取,经过逐段分析可知,在 吸收中心6351 cm<sup>-1</sup>处的硫化氢吸收虽然被甲烷吸 收严重干扰,但是该位置甲烷的吸收相对来说是 慢变信号,基于此用波长调制的方法能够实现硫 化氢的测量。精确测量的本质是将淹没在背景吸 收中的弱吸收目标信息有效提取,与直接吸收相 比,波长调制技术的光源工作方式是在低频锯齿 扫描信号的基础上叠加高频调制信号,将吸收信 息转移到高频部分,可以很好地抑制低频噪声, 提高信噪比。

#### 2.2 弱吸收信号提取

2.2.1 正演过程

根据严格的物理传输过程,通过仿真的方法 得到包含吸收信息的谐波信号,用于弱吸收信号 提取方法的验证,是正演的最终目的,其过程如 图5所示。

正演过程的输入参数包含两部分,一是吸收 光谱谱线参数,由HITRAN(哈佛大学HITRAN数



Fig. 5 Schematic diagram of modeling process

据库 harvard.edu/hitran)给出,单条谱线包括吸收线 中心频率、吸收线线强、与其他组分作用的空气 展宽系数、与分子本身作用的自展宽系数、空气 展宽系数相关温度依赖系数以及与中心频率相关 的压力频移系数;二是环境参数和激光器工作参 数,其中环境参数包括介质温度、环境总压、有 效吸收光程以及各类吸收分子的体积分数,激光 器参数包括强度一时间响应和频率一时间响应。 利用输入参数得到透过率后乘以初始光强,得到 吸收后光强,然后结合创建的参考信号经过低通 滤波最终得到包含吸收信息的谐波信号。

2.2.2 弱吸收信号提取

根据 2.1节,选择的吸收范围为6 350~6 352 cm<sup>-1</sup>,扫描频率和调制频率分别为10 Hz 和1 000 Hz,调制深度为0.2 cm<sup>-1</sup>,调制幅度为0.2 V, 另外激光器出光强度添加10<sup>-3</sup>量级的随机噪声,激 光器的出光频率-时间响应和强度-时间响应如图6 所示。



Fig. 6 Variation of laser output frequency and intensity with time

正演过程中甲烷的摩尔体积分数为0.95,硫化 氢的浓度范围为1×10<sup>-6</sup>~10×10<sup>-6</sup>,共10个浓度值, 吸光度如图7所示。

在激光器工作波段内,不同体积分数的H<sub>2</sub>S吸 光度如图7下面部分,包含CH<sub>4</sub>吸收的吸光度为 图7上面部分,经过对比,无论H<sub>2</sub>S浓度高低,均 受到CH<sub>4</sub>吸收的强烈干扰,实际测量时只能得到复 合吸收的吸光度。背景扣除的过程是将包含干扰 吸收(CH<sub>4</sub>)的光强信号作为整体背景,同时将式12 的直流本底和干扰同时扣除,图8为经过解调的谐 波信号和扣除背景并归一化的谐波信号。

根据图8可知,背景未扣除的谐波信号中包含 了干扰吸收和目标吸收的复合吸收信息,其中目 标吸收信息被完全覆盖,基于对H<sub>2</sub>S测量时,吸收 中心的位置难以确定,并且基于峰值反演浓度的 方法不再适用。经过分通道背景扣除的方法得到 的结果如图8所示,能够实现弱吸收信息的完全提 取,峰值与浓度的关系如图9所示。

图9中横坐标为H<sub>2</sub>S的浓度值,纵坐标表示谐 波信号的峰值,二者呈正相关关系,对其进行线



Fig.7 Changes of absorbance with concentration in selected wavelength bands



Fig. 8 Harmonic signal without background subtraction (top) and harmonic signal after background subtraction (bottom)





性拟合,得到线性参数*R*=0.9999,实现了复杂背 景弱吸收信息的有效提取,满足仪器开发需求。

## 3 结束语

随着TDLAS技术的应用范围日益扩大,对光 学器件以及算法研究提出了更高要求。本文以天 然气中H<sub>2</sub>S的精确测量为例,结合波长调制技术, 以严格的物理传输过程为依据,从理论上验证了 复杂背景中弱吸收信号提取方法的有效性,为新 一代检测仪器开发提供了算法依据,基于双通道 背景扣除并归一化的方法必将应用到更多领域, 并逐步发挥更大作用。

#### 参考文献

[1] GOLDENSTEIN C S. Wavelength-modulation spectroscopy for determination of gas properties inhostile environments[D]. Stanford: Stanford University, 2014.

- [2] 张步强, 史青, 彭泳卿, 等. 基于拟合的吸收光谱反演算 法研究[J]. 遥测遥控, 2020, 41(5): 65-70.
  ZHANG Buqiang, SHI Qing, PENG Yongqing, et al. Research on inversion algorithm of absorption spectrum based on fitting[J]. Journal of Telemetry, Tracking and Command, 2020, 41(5): 65-70.
- [3] SUN K, SUR R, CHAO X, et al. TDL absorption sensors for gas temperature and concentrations a high-pressure entrained-flow coal gasifier[J]. Proceedings of the Combustion Institute,2013, 34(2): 3593-3601.
- [4] 魏敏. 基于 CW-QCL 的长光程温室气体高灵敏检测方 法研究[D]. 合肥:中国科学技术大学, 2017.
- [5] WANG W. Compact quantum cascade laser based atmospheric CO<sub>2</sub> sensor[C]. In Quantum Electronics and Laser Science Conference Optical Society of America, 2011.
- [6] TAO L, SUN K, KHAN M A, et al. Compact and portable open-path sensor for simultaneous measurements of atmospheric N<sub>2</sub>O and CO using a quantum cascade laser[J]. Optics express, 2012, 20(27): 28106-28118.
- [7] CAO Y, SANCHEZ N P, JIANG W, et al. Simultaneous atmospheric nitrous oxide, methane and water vapor detection with a single continuous wave quantum cascade laser[J]. Optics express, 2015. 23(3): 2121-32.
- [8] 张步强.高温高压流场温度激光光谱测量方法研究[D].合肥:中国科学技术大学,2019.
- [9] 赵晓虎,孙鹏帅,张志荣,等.基于跨波长调制和直接吸 收光谱的宽量程多气体检测方法[J].红外与激光工程,

2023, 52(1): 90-99.

ZHAO Xiaohu, SUN Pengshuai, ZHANG Zhirong, et al. Wide-range multi-gas detection method based on wavelength modulation spectroscopy and direct absorption spectroscopy[J]. Infrared and Laser Engineering, 2023, 52(1): 90-99.

- [10] XIE H, XU L, TAN Y, et al. Ultra-Low sampled and high precision tdlas thermometry via artificial neural network[J]. IEEE Photonics Journal, 2021(3): 1-10.
- [11] 侯月,黄克谨,于冠一,等.基于红外 TDLAS 技术的高 精度 CO<sub>2</sub>同位素检测系统的研制[J]. 红外与激光工程, 2021, 50(4): 73-77.

HOU Yue, HUANG Kejin, YU Guanyi, et al. Development on high precision  $CO_2$  isotope measurement system based on infrared TDLAS technology[J]. Infrared and Laser Engineering, 2021, 50(4): 73-77.

#### [作者简介]

张步强	1989年生,	博士,	工程师。
牛慧文	1996年生,	硕士,	助理工程师。
钟翔雨	2000年生,	硕士研	究生。
郑 林	1987年生,	硕士,	高级工程师。
宁佳晨	1990年生,	硕士,	高级工程师。
史青	1982年生,	博士,	研究员。
周建发	1981年生,	硕士,	研究员。
彭泳卿	1980年生,	博士,	研究员。

(本文编辑:潘三英)