

采用 VCSEL 激光光源的 TDLAS 甲烷检测系统的研制

王彪¹, 鹿洪飞^{1,2}, 李奥奇^{1,3}, 陈越^{1,2}, 戴童欣^{1,3}, 黄硕^{1,2}, 连厚泉^{1,3}

- (1. 中国科学院长春光学精密机械与物理研究所, 吉林 长春 130033;
2. 中国科学院大学, 北京 100049;
3. 中国科学技术大学, 安徽 合肥 230026)

摘要: 相比于使用 DFB 边发射激光器, 采用 VCSEL 激光器作为检测光源的 TDLAS 激光气体检测系统, 具有功耗低的优点。针对低功率下的 TDLAS 气体检测信号特点, 结合 VCSEL 激光光源调制特性, 自主开发了 VCSEL 激光器驱动模块、信号采集及处理模块, 采用波长调制光谱 (WMS) 技术研制出了一套低功率甲烷 (CH₄) 气体检测系统。选择了 1653.7 nm 附近 CH₄ 分子的吸收峰作为吸收谱线, 采用锁相放大器提取二次谐波 (2f) 信号。实验研究了不同浓度的 CH₄ 检测的响应情况, 记录 2f 信号的峰峰值并进行线性拟合, 线性度为 0.999 8。该检测系统在 50 ~ 500 ppmv 范围内, 检测精度优于 10%, 检测下限为 10 ppmv。对 250 ppmv 的 CH₄ 持续检测 10 h, 数值波动小于 ±2.4%。引入 Allan 偏差分析, 初始积分时间为 1 s 时, Allan 偏差为 9.9 ppmv; 积分时间达到 359 s 时, Allan 偏差为 0.06 ppmv, 表征了系统良好的稳定度。

关键词: VCSEL 激光器; 低功率; TDLAS; WMS; 甲烷浓度检测

中图分类号: O433.5⁺1 **文献标志码:** A **DOI:** 10.3788/IRLA202049.0405002

Research of TDLAS methane detection system using VCSEL laser as the light source

Wang Biao¹, Lu Hongfei^{1,2}, Li Aoqi^{1,3}, Chen Yue^{1,2}, Dai Tongxin^{1,3}, Huang Shuo^{1,2}, Lian Houquan^{1,3}

- (1. Changchun Institute of Optics, Fine Mechanics and Physics, Chinese Academy of Sciences, Changchun 130033, China;
2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China;
3. University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China)

Abstract: Compared with the DFB laser, the TDLAS laser gas detecting system using the VCSEL laser as the detecting light source has the advantage of low power consumption. According to the characteristic of the low power TDLAS gas detection signal, combined with the characteristics of modulation VCSEL laser source, a laser driver, signal acquisition and processing were designed, and a low-power TDLAS methane (CH₄) gas detector based on WMS was designed. The absorption peak of CH₄ molecule near 1653.7 nm was selected as the absorption line, and the second harmonic (2f) signal was extracted by a lock-in amplifier. The response of different concentrations of CH₄ detection was studied experimentally, and the 2f signal's amplitude was recorded and linearly fitted. The results show that the CH₄ concentration has a good linear relationship with its 2f signal's amplitude, and the linearity is 0.9998. Accuracy of the detection system is better than 10% in the range of 50 - 500 ppmv, and the detection limit is 10 ppmv. With the long-term detection of 250 ppmv of CH₄ for 10 h, the

收稿日期: 2019-12-27; 修订日期: 2020-01-11

基金项目: 国家重大科研仪器研制项目 (61727822); 国家重点研发计划重点专项项目 (2017YFB0405300)

作者简介: 王彪 (1981-), 男, 副研究员, 博士, 主要从事嵌入式系统软硬件方面的研究。Email: wb5996@163.com

fluctuations are less than $\pm 2.4\%$. Allan deviation analysis was introduced. When the initial integration time was 1 s, the Allan deviation was 9.9 ppmv. When the integration time reached 359 s, the Allan deviation was 0.06 ppmv, which indicated the good stability of the system.

Key words: VCSEL laser; low power; TDLAS; WMS; methane concentration detection

0 引言

甲烷的全球增温潜势 (Global Warming Potential, GWP) 约为二氧化碳 (CO_2) 的 21 倍, 对于 CH_4 的排放检测是控制和减排温室气体的首要问题^[1]。此外, 由于 CH_4 泄露导致的爆炸事件屡有发生, 给社会经济造成巨大损失的同时也威胁着人身安全^[2]。因此, 对于 CH_4 的高精度检测具有重要的科学价值和社会意义。

近年来, 可调谐半导体激光吸收光谱 (TDLAS) 作为一种实时、高效的在线检测技术得到了广泛的应用, TDLAS 通过可调谐半导体激光器扫描待测气体的单根吸收谱线, 相比于电化学法、半导体法、催化燃烧法等检测方法, TDLAS 检测响应速度快、灵敏度高, 具有非接触性检测且选择性强的优点^[3-6]。在 TDLAS 气体浓度检测系统中, 传统的检测光源通常采用功耗较大的 DFB 激光器, 其工作电流通常在 100 mA 左右^[7]。VCSEL 激光器工作电流仅为几毫安, 使用 VCSEL 型半导体激光器作为检测光源具有更低的功率, 使得检测设备符合本安特性, 因此 VCSEL 型 TDLAS 检测设备在燃爆安全、井下作业中有着重要的应用前景^[8]。与直接吸收光谱 (DAS) 技术相比, 波长调制光谱 (WMS) 技术能够消除激光器本身以及外界环境扰动带来的低频噪声干扰, 显著提高了检测系统的精度和灵敏度, 因此得到了广泛的应用^[9-12]。此外, 文中采用了单波长双光路差分检测结构, 可消除由光源波动引起的背景噪声进而提高检测精度。综合采用上述两种方法, 可使 TDLAS 气体检测系统的整体检测精度得到较大提升, 在不增加系统复杂度的情况下可以更好地满足实际应用当中对于 CH_4 气体的高精度检测需求。

文中基于 TDLAS 和 WMS, 采用 VCSEL 激光器实现了 CH_4 的浓度检测, 激光器发射的激光波长为 1 654 nm。自主开发了激光器驱动电路, 自行开发了基于 ARM 的高精度激光器温度控制电路, 控温精度为 0.01 $^{\circ}\text{C}$ 。多反射气室的吸收程长为 2 m。为了消除光源功率波动、电路温漂等影响, 设计了单波长双

光路差分检测结构, 系统通过锁相放大器提取二次谐波 (2f) 信号的峰峰值, 检测数据经算法处理后得出 CH_4 的浓度值。进行了气体检测实验, 研究了系统的响应性能, 系统测量不同浓度的 CH_4 具有良好的线性度。此外, 对系统的检测精度和稳定度进行了分析, 系统在 50~500 ppmv 范围内的精度优于 10%, 检测数据波动小于 $\pm 2.4\%$ 。系统的检测下限为 10 ppmv。

1 气体检测原理

1.1 比尔-朗伯定律

基于比尔-朗伯定律 (Beer-Lambert), 当一束光透过 CH_4 分子时, CH_4 分子对特定波长的光具有吸收作用。由于 CH_4 分子的选择性吸收会造成光能量的衰减, 光衰减的能量与 CH_4 的分子数成正比^[13], 吸收后的光强为:

$$I_t = I_0 e^{-\alpha(v)CL} \quad (1)$$

式中: I_0 为入射光强; $\alpha(v)$ 为吸收线型函数; C 为待测气体的浓度; L 为吸收光程。在一个标准大气压下, $\alpha(v)$ 可采用 Lorentz 线型:

$$\alpha(v) = \frac{\alpha_0}{\left(\frac{v - v_{cm}}{\Delta v}\right)^2 + 1} \quad (2)$$

式中: α_0 为吸收峰中心的吸收系数; v_{cm} 为吸收峰的中心频率; Δv 为吸收峰半宽度。

1.2 波长调制光谱技术

为了提高 CH_4 检测系统的检测精度和灵敏度, 采用 WMS 技术消除激光器本身以及外界环境扰动带来的低频噪声干扰, 对激光器的注入电流进行调制^[14], 激光器的输出频率和输出光强为:

$$v = v_0 + v_m \cos \omega t \quad (3)$$

$$I'_0 = I_0(1 + \eta \cos \omega t) \quad (4)$$

式中: v_0 为激光器输出的中心频率; v_m 为调制信号的振幅; η 为强度调制指数; ω 为调制频率的 2π 倍。

联立公式 (4) 和公式 (1) 可以得到经过气体吸收后的激光光强表达式:

$$I(\nu, t) = I_0(1 + \eta \cos \omega t) e^{[-\alpha(\nu)CL]} \quad (5)$$

由于实际的气体吸收和强度调制非常小, 即 $\alpha(\nu) \ll 1$ 且 $\eta \ll 1$ 。根据 Lorentz 线型表示式公式 (2), 调整激光器的中心频率 ν_0 , 使得其发光的中心频率和气体的吸收峰重合, 即 $\nu_0 = \nu_{cm}$, 则泰勒级数展开后, 光电探测器的检测信号 $S_1(t)$ 和参考信号 $S_2(t)$ 可以表示为:

$$S_1(t) = sI_0(1 + \eta \cos \omega t - \frac{\alpha_0 c L}{1 + m^2 \cos^2 \omega t}) \quad (6)$$

$$S_2(t) = sI_0(1 + \eta \cos \omega t) \quad (7)$$

$$m = \frac{\nu_m}{\Delta \nu} \quad (8)$$

式中: s 为光电探测器的衰减系数, 对公式 (6) 和公式 (7) 的差值 $S(t) = S_2(t) - S_1(t)$ 进行傅里叶级数展开, 得到:

$$S(t) = \sum_{n=0}^{\infty} S_{nf}(\nu_0) \cos(n\omega t) \quad (9)$$

其二次谐波系数为:

$$S_{2f} = ksI_0CL\alpha_0 \quad (10)$$

由公式 (10) 可知, 在 m, L, I_0 一定的情况下, 气体的浓度 C 和 $2f$ 信号 S_{2f} 是成正比的。实验中, 提取 $2f$ 信号分析, 即可计算出待测 CH_4 的浓度, C 和 S_{2f} 之间的关系可以通过校准实验获取。

1.3 CH_4 吸收谱线的选取

在对 CH_4 进行激光浓度检测时, 选择合适的吸收波长, 可以有效地减小混入气体对系统检测精度的干扰。

根据 HITRAN 2016 数据库, CH_4 分子在 1 492.5 ~ 1 694.9 nm 范围内的吸收谱线如图 1 所示。可以明显看出在 1 653.7 nm ($6\,046.955\text{ cm}^{-1}$) 处, CH_4 分子具有吸收线强度最强的谱线, 数量级为 10^{-21} 。水 (H_2O)、二氧化碳 (CO_2) 等常见干扰气体分子在此范围内的吸收线强度的数量级均小于 10^{-25} , 远远小于 CH_4 分子的吸收强度。综合考虑上述因素, 为了得到精确的检测结果, 尽可能避免其它气体分子的干扰, 同时考虑到 VCSEL 激光器的制造工艺和成本, 文中选用 CH_4 分子 1 653.7 nm ($6\,046.955\text{ cm}^{-1}$) 处的吸收线实现浓度检测, 吸收线强度为 1.510×10^{-21} 。

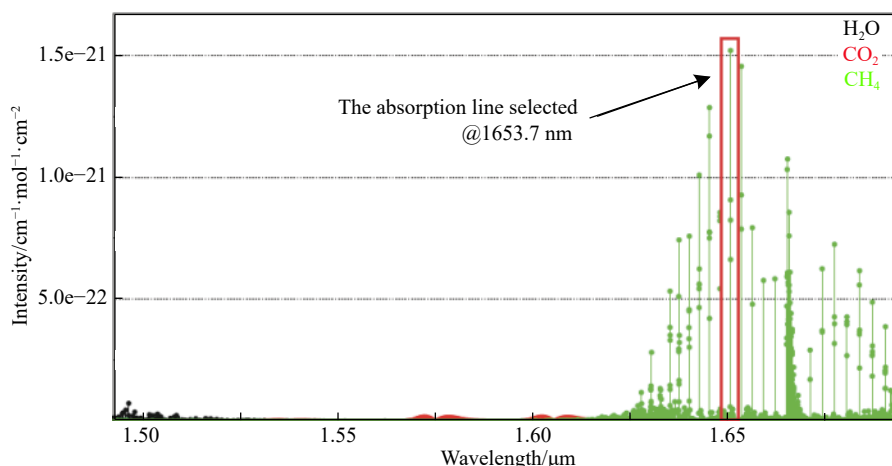


图 1 CH_4 分子在 1 492.5 ~ 1 694.5 nm 范围内的吸收谱线

Fig.1 Absorption line of CH_4 molecule at 1 492.5 - 1 694.5 nm

2 检测系统配置

CH_4 检测系统整体结构如图 2 所示, 采用德国 VERTILAS 公司的 VCSEL 激光器作为激光光源, 型号为 VL-1654-1。针对 CH_4 检测波长, 选用日本滨松公司的 G12180-003A 型光电二极管, 其波长响应范围为 0.9 ~ 1.7 μm , 对 1654 nm 的红外光有较强响应, 且

对可见光无响应, 响应截止频率高达 600 MHz, 可以实现对高频调制激光的响应, 符该系统的应用需求。

激光器发射的光由光纤耦合进入气室, 多反射气室的物理尺寸为 420 mm×100 mm×137 mm, 容积为 1 230 mL 前后镜面间距约 32 cm, 光在气室内经过 6 次反射, 有效光程为 2 m。激光穿过气室被 CH_4 吸收发生衰减后, 由光电探测器预处理电路将光电电流信

号转化为电压信号。为了消除光源功率波动、电路温漂等影响,设计了单波长双光路差分检测结构,将实际的检测信号和参考信号做差分处理,经由放大滤波电路提取出实际的衰减后的激光光强信号。系统通过锁相放大器提取信号中 $2f$ 信号的峰峰值,使用

AD 模数转换功能对锁相放大器输出 $2f$ 信号的峰峰值进行实时连续采集,完成一个扫描周期后,将计算求得单个检测周期的 CH_4 检测浓度。重复多个扫描周期,记录 CH_4 浓度检测结果并计算平均值,完成一次 CH_4 浓度检测。

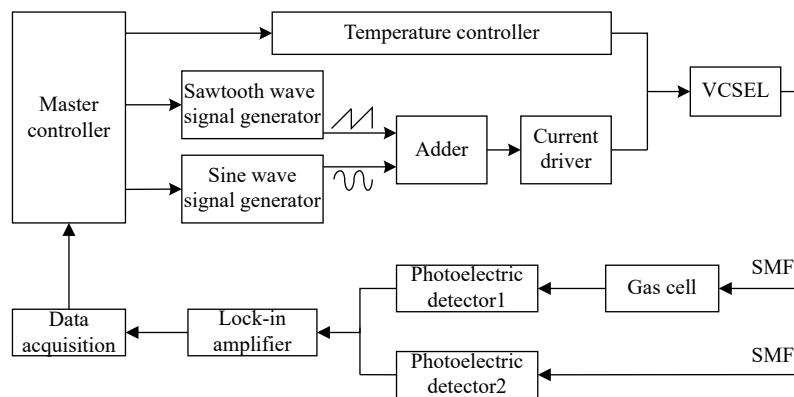


图 2 实验配置

Fig.2 Experimental configuration

3 实验结果与分析

3.1 标定实验

在 $20\text{ }^{\circ}\text{C}$ 室温下,以 N_2 为背景气体,配置 50、100、150、200、250、300、350、400、450、500 ppmv 的 10 组 CH_4 标准气。为了测量 $2f$ 信号的峰峰值和 CH_4 浓度之间的关系,将已配置好的 10 组不同标准浓度的 CH_4 以 5 min 时长为间隔,依次通入气室。系统每 5 s 记录一次检测数据,每一种浓度的 CH_4 进行 60 次检测。

如图 3 所示,实验中得到的 $2f$ 信号的峰峰值记

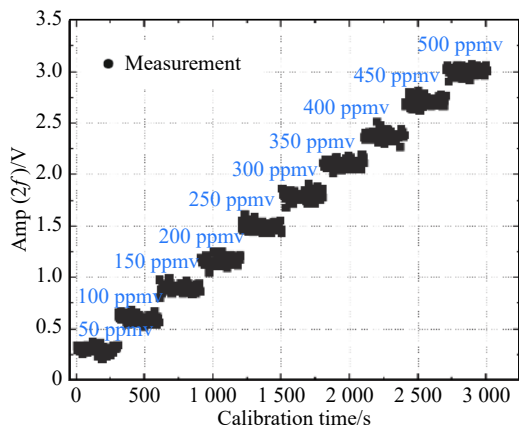


图 3 10 种不同浓度 CH_4 的 $2f$ 信号的峰峰值

Fig.3 $2f$ signals' amplitude of 10 different concentrations of CH_4

为 $\text{amp}(2f)$, 数据表明 CH_4 对激光能量的吸收与其浓度呈线性关系,线性拟合得到公式 (11)(式中 C_{CH_4} 为被测 CH_4 浓度):

$$\text{amp}(2f) = 0.006C_{\text{CH}_4} - 0.0011 \quad (11)$$

继而推导出公式 (12):

$$C_{\text{CH}_4} = 166.6667\text{amp}(2f) + 0.1833 \quad (12)$$

根据公式 (12) 可以将检测到的 $2f$ 信号的峰峰值换算为相应的 CH_4 浓度,其线性相关度为 0.999 8,拟合曲线如图 4 所示。

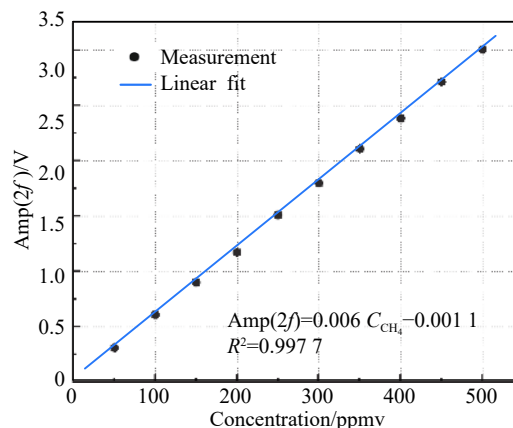


图 4 $2f$ 信号的峰峰值与 CH_4 浓度的拟合曲线

Fig.4 Fitting curve of the $2f$ signal's amplitude and the CH_4 concentration

3.2 检测下限

为了测量 CH₄ 检测仪的检测下限,配置 250 ppmv 的 CH₄ 通入检测气室,通过双光路差分检测结构消除光源功率波动、电路温漂等影响,锁相放大器探测到的 2f 信号的峰峰值如图 5 所示;CH₄ 浓度为 0 ppmv 时,其 2f 信号噪声如图 6 所示。数据表明,在 CH₄ 浓度为 250 ppmv 时,2f 信号的峰峰值 (SA) 为 1.501 V,0 ppmv 的噪声信号波动幅值 (NA) 为 0.06 V,系统的

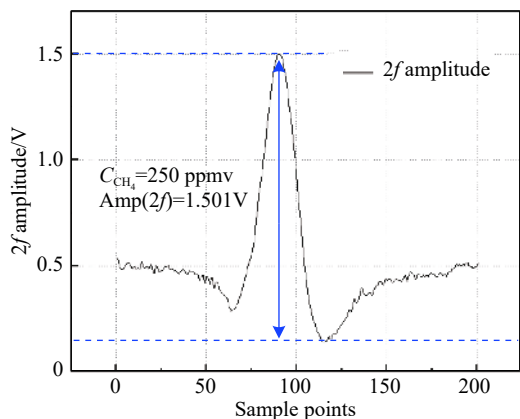


图 5 CH₄ 浓度为 250 ppmv 时的 2f 信号的峰峰值 (SA)

Fig.5 2f signal's amplitude (SA) at a CH₄ concentration of 250 ppmv

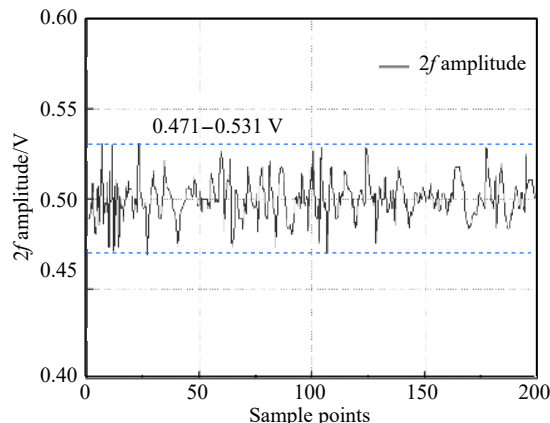


图 6 CH₄ 浓度为 0 ppmv 时的噪声波动信号 (NA)

Fig.6 Noise fluctuation signal (NA) when CH₄ concentration is 0 ppmv

检测下限为: $250 \text{ ppmv} \times NA/SA \approx 10 \text{ ppmv}$ 。

3.3 检测误差和精度

为了计算系统的检测误差,在与标定实验相同的条件下,以 5 min 时长为间隔,依次对 50、100、150、200、250、300、350、400、450、500 ppmv 这 10 种浓度的 CH₄ 进行检测,根据拟合公式计算相应的浓度,表 1 给出了不同浓度的 CH₄ 检测数据。数据分析表明,CH₄ 检测仪最大绝对误差为 6 ppmv,最大相对误差在 $\pm 10\%$ 范围内,系统的检测精度优于 10%。

表 1 检测结果 (背景气体为 N₂)

Tab.1 Test results with N₂ as background

No.	C _{CH4} /ppmv									
	50	100	150	200	250	300	350	400	450	500
1	52	102	150	201	251	300	351	398	454	496
2	51	103	151	201	253	301	351	400	452	501
3	48	98	152	202	249	300	354	401	450	503
4	50	99	148	204	255	304	352	401	451	504
5	49	97	149	199	254	300	351	400	451	505
6	47	100	144	197	251	301	351	399	453	500
7	50	101	154	199	251	299	352	398	451	499
8	53	101	152	201	251	297	349	398	452	504
9	51	102	151	201	252	301	348	395	448	505
10	55	98	151	200	247	301	351	401	449	504
Maximum absolute error	5 ppmv	3 ppmv	6 ppmv	4 ppmv	5 ppmv	4 ppmv	4 ppmv	5 ppmv	4 ppmv	5 ppmv
Maximum relative error	10.00%	3.00%	4.00%	2.00%	2.00%	1.33%	1.14%	1.25%	0.89%	1.00%

3.4 稳定度

为了测定检测系统稳定性,可以通过长时间向气

室内输入一定标准浓度的 CH₄ 气体,观测检测系统输出值与时间的关系来衡量。将浓度为 250 ppmv 的

CH₄ 通入检测气室内, 每 1 s 记录一次检测仪输出的浓度数值, 在恒温条件下进行时长 10 h 的稳定度观测实验, 分析检测仪输出的气体浓度数值与时间的关系, 如图 7 所示。在持续 10 h 的长时间检测时, 2f 信号的峰峰值为 1.467 ~ 1.535 V 范围内, 检测仪输出的 CH₄ 浓度值均处在 245 ~ 256 ppmv 之间, 波动小于 ±2.4%, 检测数据的平均值为 250.5 ppmv。

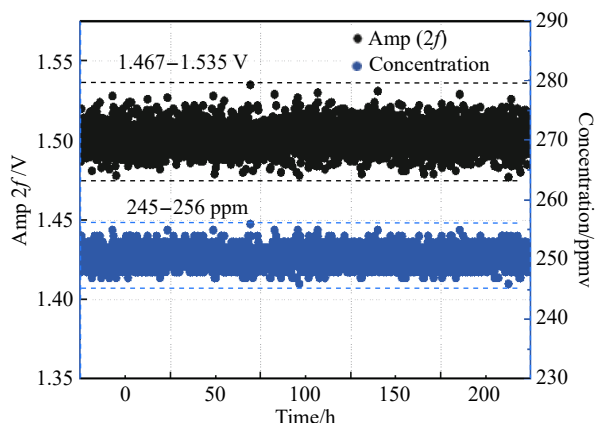


图 7 时长 10 h 的稳定度观测实验数据

Fig.7 10 hours of stability observation experimental data

引入 Allan 偏差对检测系统的长期特性进行分析^[15], 由图 8 所示的 Allan 偏差结果可知, 积分时间为 1 s 时的 Allan 偏差为 9.9 ppmv, 如果积分时间持续增加, 则 Allan 偏差大大降低, 积分时间增加到 359 s 时 Allan 偏差可降至 0.06 ppmv, 表明了系统具有良好的稳定度。

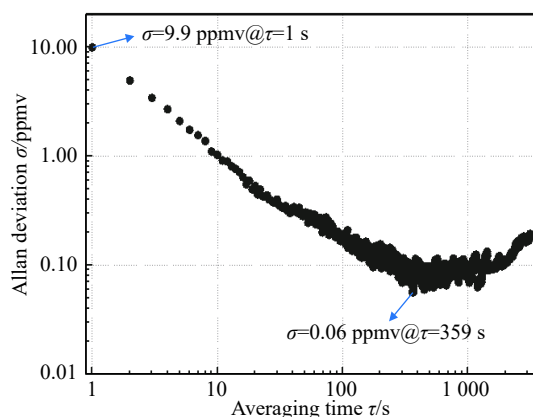


图 8 对检测系统进行 Allan 偏差分析

Fig.8 Allan deviation analysis of the detection system

4 结 论

文中基于 TDLAS 技术, 选择 CH₄ 分子 1 653.7 nm

附近的吸收峰作为吸收谱线, 研制了一套采用 VCSEL 光源的甲烷检测系统。结合 VCSEL 激光光源调制特性, 自主开发了驱动电路和温度控制电路, 锁相放大器被用于提取 2f 信号。采用单波长双光路差分检测结构, 用以消除检测系统中激光光源波动带来的干扰。使用该检测系统做了大量的实验, 研究了其各项性能。实验结果表明系统具有良好的性能指标, WMS 技术的应用大幅度提高了该系统的精确性和灵敏度, 检测系统在 50 ~ 500 ppmv 之间检测精度优于 10%, 检测下限为 10 ppmv。采用 Allan 偏差分析实验数据, 初始积分时间为 1 s 时的 Allan 偏差为 9.9 ppmv; 积分时间增加至 359 s 时, Allan 偏差为 0.06 ppmv, 表征了系统良好的稳定度。此外, 使用 VCSEL 激光器作为检测光源, 其功耗仅为传统 DFB 激光器的十分之一, 符合本安特性, 在 TDLAS 检测领域中具有独特的优势及应用价值。

参考文献:

- [1] Xue Ming, Weng Yibin, Liu Guangquan, et al. Current status on fugitive methane emission measurements and inventory during oil and gas production [J]. *Advances in Climate Change Research*, 2019, 15(2): 187–195. (in Chinese)
- [2] Lu Jiang. Research and application of chemical production regional security modeling and control systems[D]. Zhenjiang: Jiangnan University, 2017. (in Chinese)
- [3] Liu Yufeng, Wang Biao, Yang Kai, et al. The simulation research of gas absorption process based on TDLAS [J]. *Laser Journal*, 2017, 38(3): 37–40. (in Chinese)
- [4] Li Chunguang, Dong Lei, Wang Yiding, et al. Compact mid-infrared trace gas detection system based on TDLAS and ICL [J]. *Optics and Precision Engineering*, 2018, 26(8): 1855–1861. (in Chinese)
- [5] Ouyang Aiguo, Tang Tianyi, Wang Haiyang, et al. Detection of key performance indicators of ethanol diesel by the infrared spectroscopy method [J]. *Chinese Optics*, 2017, 10(3): 363–369. (in Chinese)
- [6] Nie Wei, Xu Zhenyu, Kan Ruifeng, et al. Measurement of low water vapor dew-point temperature based on tunable diode laser absorption spectroscopy [J]. *Optics and Precision Engineering*, 2018, 26(8): 1862–1869. (in Chinese)
- [7] Faugeron M, Michaël Tran, Parillaud O, et al. High-power tunable dilute mode DFB laser with low RIN and narrow

- linewidth [J]. *IEEE Photonics Technology Letters*, 2013, 25(1): 7–10. (in Chinese)
- [8] Rao Y, Yang W, Chase C, et al. Long-wavelength VCSEL using high-contrast grating [J]. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 2013, 19(4): 1701311–1701311. (in Chinese)
- [9] Lv Shuyuan, Du Shaoyong. Detection system of CO₂ using hollow-core crystal fiber based on LabVIEW [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2018, 47(11): 1117002. (in Chinese)
- [10] Zhu Xiaorui, Lu Weiye, Rao Yuzhou, et al. Selection of baseline method in TDLAS direct absorption CO₂ measurement [J]. *Chinese Optics*, 2017, 10(4): 455–461. (in Chinese)
- [11] Hosseinzadeh Salati S, Khorsandi A. Apodized 2f/1f wavelength modulation spectroscopy method for calibration-free trace detection of carbon monoxide in the near-infrared region: theory and experiment [J]. *Applied Physics B: Lasers and Optics*, 2014, 116(3): 521–531. (in Chinese)
- [12] Lu Weiye, Zhu Xiaorui, Li Yuesheng, et al. Comparison of direct absorption and wavelength modulation methods for online measurement of CO₂ by TDLAS [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2018, 47(7)–0717002. (in Chinese)
- [13] Li J, Yu B, Zhao W, et al. A review of signal enhancement and noise reduction techniques for tunable diode laser absorption spectroscopy [J]. *Applied Spectroscopy Reviews*, 2014, 49(8): 666–691.
- [14] Ming D, Chuantao Z, Dan Y, et al. Double-range near-infrared acetylene detection using a dual spot-ring Herriott cell(DSR-HC) [J]. *Optics Express*, 2018, 26(9): 12081–12091.
- [15] Allan D W. Statistics of atomic frequency standards[C]// Proceedings of the IEEE, 1966, 54(2): 221-230.