

分类号: TP242. 6

密 级: 公开

学校代码: 10363

学 号: 2220320192



安徽工程大学

Anhui Polytechnic University

硕士学位论文

题目 基于 TDLAS 的甲烷和乙炔
 同时测量技术研究

论 文 作 者 徐丁力

校 内 导 师 葛强 副教授

校 外 导 师 郝文良

专业学位类别 电子信息

研究方向 (领域) 先进传感与检测

论文提交日期: 2025 年 05 月 15 日

分类号：TP242.6

单位代码：10363

密 级：公开

学 号：2220320192

题 目 基于 TDLAS 的甲烷和乙炔同时测量技术研究

题 目 Research on simultaneous measurement technology of methane and acetylene based on TDLAS

学生姓名：_____徐丁力_____

校内导师：_____葛强 副教授_____

校外导师：_____郝文良_____

专业学位类别：_____电子信息_____

研究方向（领域）：_____先进传感与检测_____

论文答辩日期：2025.5.12

安徽工程大学学位论文原创性声明

本人郑重声明：我恪守学术道德，崇尚严谨学风。所呈交的学位论文，是本人在导师的指导下，独立进行研究工作所取得的成果。除文中已明确注明和引用的内容外，本论文不包含任何其他个人或集体已经发表或撰写过的作品及成果的内容。论文为本人亲自撰写，我对所写的内容负责，并完全意识到本声明的法律后果由本人承担。

学位论文作者签名：徐丁力

日期：2025 年 5 月 15 日

安徽工程大学学位论文版权使用授权书

学位论文作者完全了解学校有关保留、使用学位论文的规定，同意学校保留并向国家有关部门或机构送交论文的复印件和电子版，允许论文被查阅或借阅。本人授权（）大学可以将本学位论文的全部或部分内容编入有关数据库进行检索，可以采用影印、缩印或扫描等复制手段保存和汇编本学位论文。

保密 ☐，在 _____ 年解密后适用本版权书。

本学位论文属于

不保密 ☐。

学位论文作者签名：徐丁力

日期：2025.5.15

指导教师签名：

日期：2025.5.15

基于 TDLAS 的甲烷和乙炔同时测量技术研究

摘 要

甲烷(CH_4)和乙炔(C_2H_2)作为典型的碳氢化合物,在工业生产和能源领域具有重要应用。其中, CH_4 是天然气的主要成分,广泛应用于燃料供应和化工生产; C_2H_2 是重要的化工原料,在焊接、切割及有机合成等工业过程中发挥关键作用。然而,二者均具有较低的爆炸极限(CH_4 约 5-15%, C_2H_2 约 2.5-81%),且在许多实际工业环境中常共存于同一生产系统中,存在较高的安全隐患。因此,开展 CH_4 和 C_2H_2 的高灵敏度同时测量研究,实时监测其浓度变化,对于工业安全预警和泄漏监测具有重要意义。

可调谐二极管激光吸收光谱技术(TDLAS)作为一种先进的气体检测方法,凭借其非接触测量、快速响应和强抗干扰能力等特点,广泛应用于痕量气体检测领域。然而,在实际测量中,TDLAS 通常仅能测量特定波数范围内对应的单一气体分子,存在检测局限性。同时,环境噪声等外界因素的干扰也会降低其检测精度,进而影响气体测量的准确性。本文针对 TDLAS 气体检测系统的性能提升以及多组分检测问题开展研究,提出了一种 $\text{CH}_4/\text{C}_2\text{H}_2$ 双气体同时检测系统以及一种基于神经网络模型增强的 CH_4 检测系统。实验结果表明,所提出的方法在检测精度和系统稳定性方面均表现出良好的性能。本文主要工作内容如下:

(1) 设计了一种基于时分复用(TDM)和直接吸收光谱(DAS)的紧凑型 $\text{CH}_4/\text{C}_2\text{H}_2$ 气体检测系统。系统以中心波长为 1653.72 nm 和 1533.46 nm 的分布式反馈(DFB)激光器作为光源, 通过基于比例-积分-微分(PID)反馈控制的波长稳定技术有效抑制激光波长漂移。同时, 引入 H 无穷(H_∞)滤波算法显著降低系统噪声干扰。Allan 方差分析显示, 在最佳积分时间 556 s 和 312 s 时, CH_4 和 C_2H_2 的检测极限分别为 39.9 ppb 和 47.3 ppb。

(2) 提出了一种基于神经网络的气体分析模型, 通过神经网络滤波器(NNF)和网络浓度预测器(NCP)从噪声污染的气体透射光谱中提取有效吸收信息, 并实现对气体浓度的准确预测。实验结果表明, NNF 在滤波性能上优于传统数字滤波算法, 信噪比(SNR)较原始光谱提升了 2.58 倍; 同时, NCP 在浓度测量方面较传统吸光度积分法表现出更高的准确性, 其平均绝对误差(MAE)和平均相对误差(MRE)分别降低至 1.29 ppm 和 2.05%。

关键词: DFB 激光器, TDLAS, 性能提升, 甲烷, 乙炔, 神经网络

RESEARCH ON SIMULTANEOUS MEASUREMENT TECHNOLOGY OF METHANE AND ACETYLENE BASED ON TDLAS

ABSTRACT

As typical hydrocarbons, methane (CH_4) and acetylene (C_2H_2) have important applications in industrial production and energy. Among them, CH_4 is the main component of natural gas, which is widely used in fuel supply and chemical production; C_2H_2 is an important chemical raw material, playing a key role in industrial processes such as welding, cutting and organic synthesis. However, both of them have low explosion limits (about 5-15% for CH_4 and 2.5-81% for C_2H_2) and often coexist in the same production system in many practical industrial environments, which poses a high safety hazard. Therefore, it is of great significance to carry out research on the simultaneous measurement of CH_4 and C_2H_2 with high sensitivity and real-time monitoring of their concentration changes for industrial safety warning and leakage monitoring.

Tunable Diode Laser Absorption Spectroscopy (TDLAS), as an advanced gas detection method, is widely used in the field of trace gas detection by virtue of its non-contact measurement, rapid response, and strong anti-interference capability. However, in practical measurements, TDLAS is usually only able to measure a single gas molecule within a

specific wave number range, which has detection limitations. In addition, the interference of external factors such as environmental noise can also reduce its detection accuracy, which in turn affects the accuracy of the measurement. In this paper, a $\text{CH}_4/\text{C}_2\text{H}_2$ dual-gas simultaneous detection system and a CH_4 detection system based on neural network model enhancement are proposed for the performance enhancement of TDLAS gas detection system and multi-component detection challenges. The experimental results show that the proposed methods exhibit good performance in terms of detection accuracy and system stability. The main work of this paper is as follows:

(1) A compact $\text{CH}_4/\text{C}_2\text{H}_2$ gas detection system based on time-division multiplexing (TDM) and direct absorption spectroscopy (DAS) was designed. A distributed feedback (DFB) laser with center wavelengths of 1653.72 nm and 1533.46 nm is used as the light source, and the laser wavelength drift is effectively suppressed by a wavelength stabilization technique based on proportion-integral-differential (PID) feedback control. Meanwhile, the introduction of the H infinity (H_∞) filtering algorithm significantly reduces the system noise interference. Allan analysis of variance shows that the detection limits of CH_4 and C_2H_2 are 39.9 ppb and 47.3 ppb, respectively, when the optimal integration time is 556 s and 312s.

(2) A neural network-based gas analysis model is proposed to extract effective absorption information from noise-polluted gas transmission

spectra by a neural network filter (NNF) and a network concentration predictor (NCP), and to realize accurate prediction of gas concentration. The experimental results show that the NNF outperforms the traditional digital filtering algorithm in filtering performance, and the signal-to-noise ratio (SNR) is improved by a factor of 2.58 compared with the original spectra; meanwhile, the NCP exhibits higher accuracy than the conventional absorbance integration method in concentration measurement, and its mean absolute error (MAE) and mean relative error (MRE) are reduced to 1.29 ppm and 2.05%, respectively.

Xu Dingli (Electronic Information)

Supervised by Prof. Ge Qiang, Hao Wenliang

KEY WORDS: DFB Laser, TDLAS, Performance improvement, methane, acetylene, neural network

目 录

第 1 章 绪论	1
1.1 研究背景与意义	1
1.2 激光吸收光谱技术	2
1.2.1 可调谐二极管激光吸收光谱技术	2
1.2.2 腔衰荡光谱技术	4
1.2.3 石英音叉增强光声光谱技术	4
1.3 可调谐二极管激光吸收光谱研究现状	5
1.3.1 国外研究现状	5
1.3.2 国内研究现状	7
1.4 本文主要研究内容与章节安排	8
第 2 章 基于可调谐二极管吸收光谱技术的气体检测理论	9
2.1 分子吸收光谱基本理论	9
2.1.1 朗伯-比尔定律	9
2.1.2 吸收谱线强度	11
2.1.3 吸收谱线展宽机制与线型函数	12
2.2 数字滤波算法	18
2.2.1 平均滤波算法	18
2.2.2 卡尔曼滤波算法	19
2.2.3 小波变换滤波算法	20
2.2.4 Savitzky-Golay 滤波算法	21
2.3 吸收光谱在线拟合方法	22
2.4 本章小结	24
第 3 章 基于波长稳定和 H_{∞} 滤波的 $\text{CH}_4/\text{C}_2\text{H}_2$ 同时测量	25
3.1 基于 DFB 激光器的双气体检测系统	25
3.1.1 吸收谱线选择	25
3.1.2 DFB 激光器特性	27
3.1.3 实验装置系统	28
3.1.4 系统气密性与有效光程分析	30
3.2 系统关键技术实现与优化	31

3.2.1 时分复用技术	32
3.2.2 基于 PID 反馈控制的波长稳定	33
3.2.3 H_{∞} 滤波	34
3.3 实验结果与分析	37
3.3.1 系统性能测试	37
3.3.2 Allan 方差分析	40
3.3.3 大气环境 CH ₄ 实时测量	41
3.4 本章小结	42
第 4 章 基于神经网络的 DAS 气体检测系统性能提升研究	43
4.1 基于神经网络气体分析模型增强的 CH ₄ 气体检测系统	44
4.1.1. 检测系统配置	44
4.1.2. 神经网络滤波器	45
4.1.3. 网络浓度预测器	47
4.1.4. 数据集构建与模型训练	49
4.2 实验结果与分析	50
4.2.1. 模拟数据的模型性能分析	50
4.2.2. 实验结果的模型性能分析	53
4.2.3. 系统性能分析	54
4.3 本章小结	55
第 5 章 总结与展望	56
5.1 全文总结	56
5.2 工作展望	57
参考文献	58
攻读硕士的学术成果	66
致谢	67

第 1 章 绪论

1.1 研究背景与意义

及时、准确地监测生产和生活环境中的气体浓度，对于保障人民生命财产安全、促进国家经济发展以及保护自然环境具有重要意义。近年来，多起重大安全事故的发生均是由于对生产环境中危险气体的含量检测迟缓或不准确导致的。随着经济和工业的快速发展，作为能源和生产原料的易燃易爆气体使用量持续增加，随之而来的安全隐患也日益凸显。开发具有高灵敏度、快速响应且准确可靠的气体检测系统^[1-5]，实时监测危险气体含量，对于保障煤炭、化工等高风险产业的安全至关重要。同时，这些行业生产中排放的污染性气体也会对大气环境造成破坏，危害人类生存环境。实时的气体泄漏和排放情况监测，不仅有助于确保工厂安全生产，还能为环境保护提供重要的数据支持。

甲烷(CH_4)和乙炔(C_2H_2)是两种常见的易燃易爆气体，具有较高的安全风险。其中， CH_4 是煤矿中瓦斯的主要成分，占比约 83-85%，当其浓度超过爆炸下限(5%左右)时，遇明火极易发生爆炸，严重威胁煤矿生产安全和人员生命安全。此外， CH_4 还是一种温室气体，在全球温室效应中约有 20%的增温效应是由其引起的。因此，准确监测 CH_4 浓度对于气候变化研究和工业安全管理均具有重要意义^[6,7]。 C_2H_2 是工业生产中的重要有机原料，常温常压下无色无味，但化学性质极其活泼，且爆炸浓度范围较广(约 2.5-81%)，在空气中一旦遇到火源就可能发生爆炸。因此，在工业生产现场，特别是高风险区域内，对 C_2H_2 进行实时在线检测是预防安全事故的有效手段^[8,9]。另一方面， CH_4 和 C_2H_2 还都是变压器绝缘油中常见的故障气体。 CH_4 浓度的异常升高通常预示着低温故障的发生，而 C_2H_2 的产生则往往与高温故障或电弧放电有关。通过同时监测这两种气体的浓度变化，可以更加准确地判断变压器故障类型和严重程度，从而及时采取有效的维护措施^[10,11]。

随着科技的进步，气体检测技术不断发展。目前常用的气体检测方法主要有：电化学检测法^[12,13]、催化燃烧法^[14,15]、气相色谱法^[16,17]和激光吸收光谱法

[18-21]。电化学检测法通过检测气体与电极发生化学反应时所产生的电流信号来反演气体浓度，具有成本低、灵敏度高和选择性好的特点，但检测范围相对较窄，且由于电解液反应的限制，响应时间存在一定的局限性。催化燃烧法基于气体燃烧所引起的温度变化来反演气体浓度，响应速度较快，但容易受到其他化学物质的干扰，特别在低氧环境下，检测存在较大的误差。气相色谱法具有出色的分离能力，能够对不同种类的气体进行定量分析，检测精度较高。但是，该方法需要在实验室进行取样和分析，响应时间较长，无法满足气体实时监测的需求。相比之下，激光吸收光谱法基于气体分子对特定波长光的吸收特性，依据朗伯-比尔定律[22,23]进行气体浓度反演，具有高分辨率、高选择性、快速响应和非接触测量等优势。近年来，随着激光技术的不断进步，基于激光吸收光谱的气体检测技术在灵敏度、稳定性和可靠性方面都得到了显著提升，已广泛应用于工业安全和环境监测领域，并朝着更高灵敏度和更高精度方向持续发展。

1.2 激光吸收光谱技术

激光吸收光谱技术作为一种非接触式检测方法，根据检测原理的不同，可以分为直接测量和间接测量两种类型。直接测量方法基于光的吸收现象，通过检测激光经过气体介质前后的光强变化，测定目标气体的相关信息；而间接测量方法则利用光被吸收时诱发的各种物理效应(如声波信号)进行定量分析。常见的激光吸收光谱技术包括可调谐二极管激光吸收光谱技术(TDLAS)[24-26]、腔衰荡光谱技术(CRDS)[27-29]、积分腔输出光谱技术(ICOS)[30-32]、光声光谱技术(PAS)[33-35]和石英音叉增强光声光谱技术(QEPAS)[36-38]。

1.2.1 可调谐二极管激光吸收光谱技术

可调谐二极管激光吸收光谱技术(Tunable Diode Laser Absorption Spectroscopy, TDLAS)是一种基于半导体激光器窄线宽与波长可调谐特性的气体检测技术。该技术通过调谐激光器的驱动电流和工作温度，改变其发射波长，从而实现目标气体吸收线的高分辨率扫描。根据调制方式的不同，TDLAS 技术分为直接吸收光谱(DAS)和波长调制光谱(WMS)：

(1) 直接吸收光谱(Direct Absorption Spectroscopy, DAS)

DAS 通过测量激光穿过气体介质后透射光强相比于入射光强的衰减程度,实现目标气体的定量分析。其基本结构通常包括激光器、样品吸收池、光电探测器以及相关的控制和数据采集设备,典型结构如图 1-1 所示。在检测大气中浓度较低的痕量气体时,通常采用 Herriott 型或 White 型多通吸收池,将有效吸收光程扩展至 10-100 m 量级,从而提高检测灵敏度。

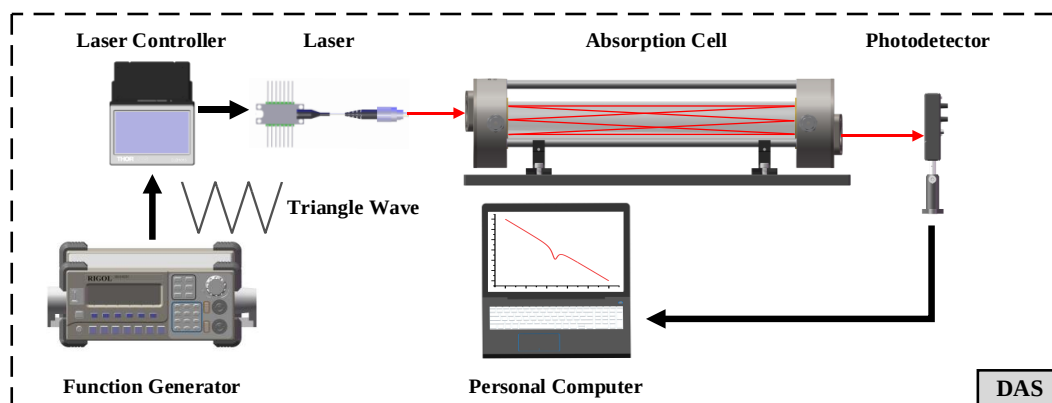


图 1-1 DAS 气体检测系统示意图

(2) 波长调制光谱(Wavelength Modulation Spectroscopy, WMS)

WMS 与 DAS 在基本原理上类似,但 WMS 通过在激光驱动电流上叠加高频调制信号(典型频率为 1-10 kHz),使激光发射波长在目标气体吸收谱线附近进行小幅度周期性调制。其核心思想是利用波长调制将吸收信号从基频转移到高频,再通过锁相放大器(Lock-in Amplifier, LIA)对吸收信号进行提取和解调,从而获得谐波分量(通常为 $2f$)。这种方法可以有效抑制低频噪声,提高检测灵敏度。但实验装置相对复杂,对系统的稳定性要求较高,典型的结构如图 1-2 所示。

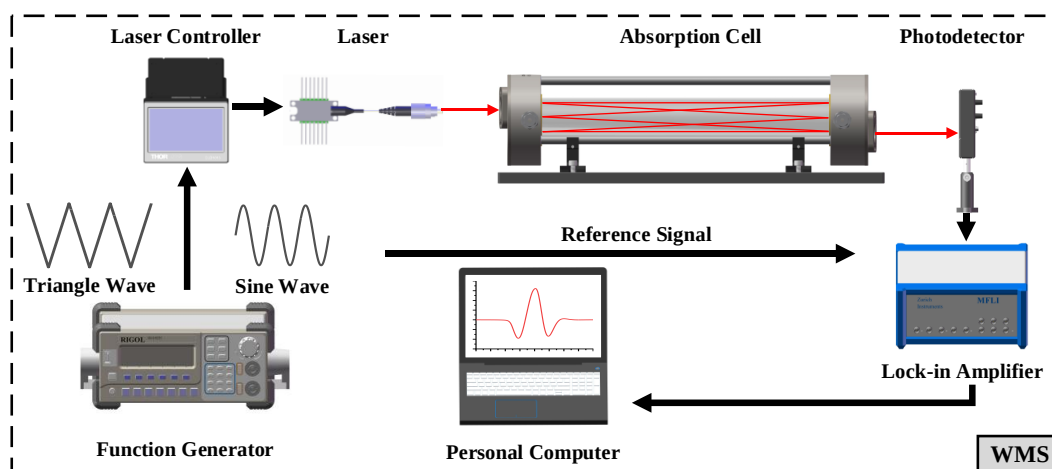


图 1-2 WMS 气体检测系统示意图

1.2.2 腔衰荡光谱技术

腔衰荡光谱技术(Cavity Ring-down Spectroscopy, CRDS)是一种基于光学谐振腔的气体检测方法。其核心原理是采用由两个或多个高反射率(通常反射率 $\geq 99.99\%$)反射镜构成的光学谐振腔,将光束在腔内的有效吸收光程扩展至 km 量级,从而显著提升检测灵敏度。CRDS 的典型结构如图 1-3 所示,在测量过程中,当脉冲激光入射至谐振腔后,受高反射镜的约束作用,光束在镜面间经历多次往返反射,形成持续的光传播状态。当激光源关闭后,谐振腔中的光强不再受外部激光激励,而是依靠高反射镜的反射作用逐渐衰减。此时,光强会随着时间呈指数衰减,衰减速率由谐振腔的品质因数(Q 值)和腔内气体介质的吸收特性共同决定。通过精确测量光强在谐振腔内的衰减时间(即衰荡时间 τ),CRDS 可以实现对气体介质吸收系数的定量分析。

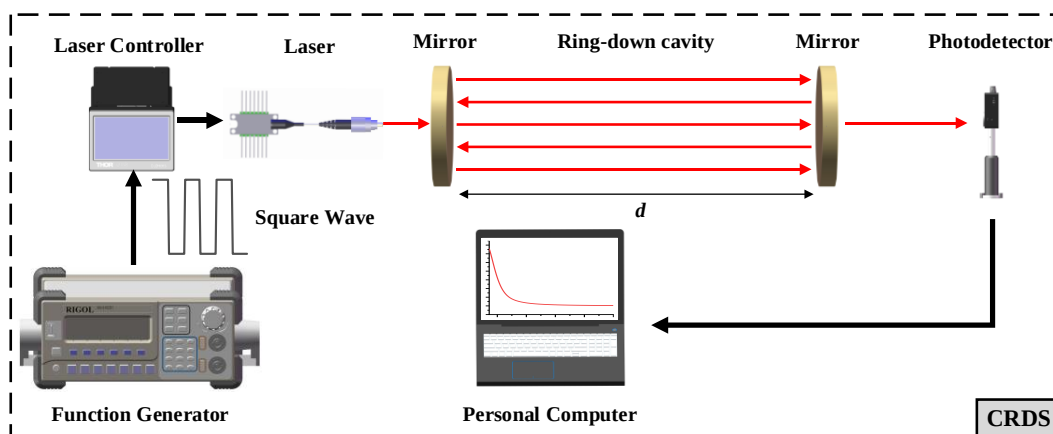


图 1-3 CRDS 气体检测系统示意图

1.2.3 石英音叉增强光声光谱技术

光声光谱技术(Photoacoustic Spectroscopy, PAS)是一种基于光声效应的气体检测技术。当特定波长的光被气体分子吸收后,分子跃迁至激发态,并通过分子碰撞等非辐射跃迁过程将吸收的光能转化为热能,导致气体局部温度周期性的升高和降低。这种周期性的温度变化会引起气体体积的微小波动,从而产生可检测的声波信号。由于测量中使用的是经过调制的光源,产生的声波频率与调制频率相匹配。通过高灵敏度麦克风等声波探测器捕获声波信号并分析其幅

值，可以推算出气体介质浓度。PAS 的显著优势在于其对光源强度波动的不敏感性，这使得它在复杂环境或高背景噪声的场景下具有优异的抗干扰能力。

石英音叉增强光声光谱技术(Quartz Enhanced Photoacoustic Spectroscopy, QEPAS)是 PAS 的一种改进方法。该技术通过采用具有高品质因数的石英音叉作为声波检测元件，有效提高了系统的检测灵敏度和背景噪声抑制能力。与传统的麦克风或压电探测器不同，石英音叉仅对特定频率的声波信号具有强烈的共振响应。因此，QEPAS 可以只响应特定频率的声波信号，而对宽频带的背景噪声几乎不敏感。这种频率选择性使得 QEPAS 可以在极低浓度下(ppb 或更低)实现高灵敏度的检测，典型的 QEPAS 结构如图 1-4 所示。

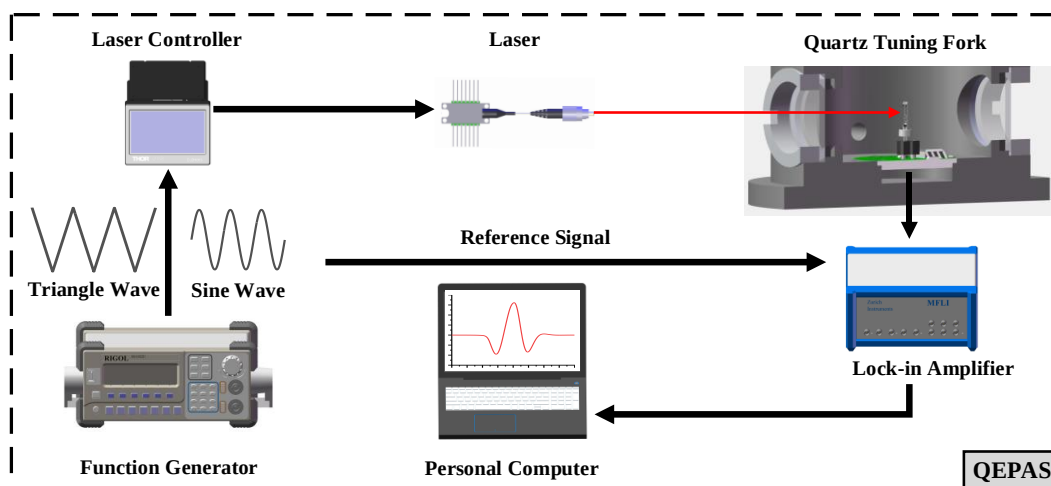


图 1-4 QEPAS 气体检测系统示意图

1.3 可调谐二极管激光吸收光谱研究现状

自 TDLAS 技术问世以来，随着激光技术的不断进步，半导体激光器、量子级联激光器等新型光源的迭代发展，TDLAS 技术在气体检测领域的应用日益广泛。在此背景下，国内外诸多研究学者围绕 TDLAS 技术展开了深入的探讨与研究，推动基于此技术的气体检测系统朝着一体化、小型化以及多气体方向发展。

1.3.1 国外研究现状

国外对于 TDLAS 技术的研究始于 20 世纪 70 年代。1970 年，美国麻省理工学院的 E. D. Hinkley^[39]首先提出了 TDLAS 技术，并通过电流可调谐的二极管激光器实现了 SF₆ 和 CO₂ 在 10.6 μm 附近吸收谱线的精确测量。1978 年，加拿大麦

克马斯特大学的 J. Reid 等人^[40]在 TDLAS 技术的基础上, 采用 White 型多通池, 实现了对 SO_2 等气体的 ppb 级浓度检测。并通过小样本池对系统进行校准, 解决了不同气体分子间的干扰问题。1987 年, 加拿大的 Geoffrey W. Harris 等人^[41]利用 TDLAS 技术, 对柴油发动机尾气中的 NO_2 和 HNO_3 进行了实时测量, 并在采样线上安装特氟龙过滤器以保护光学元件免受尾气颗粒物的影响。1996 年, 美国陆军研究实验室的 Robert G. Daniel 等人^[42]基于 TDLAS 技术, 对低气压预混火焰($\text{CH}_4/\text{O}_2/\text{Ar}$)进行了诊断研究, 并通过 CO 双线测温法测量了火焰的温度分布。2006 年, 荷兰奈梅亨·拉德堡德大学的 B. W. M. Moeskops 等人^[43]使用连续波量子级联(QCL)激光器, 结合 WMS 技术, 实现了对 NO 的 ppb 级浓度检测。2014 年, 印度国防生物工程与电子医学实验室的 S. Neethu 等人^[44]研究了基于 WMS 的氧气测量技术, 通过对比分析三种谐波检测方法(仅 2f, 2f+4f, 1f+2f), 验证了 1f 归一化 2f 法在抗干扰性能和无需校准方面的明显优势。2019 年, 俄罗斯莫斯科工程物理学院的 S V Kireev 等人^[45]提出了一种新的信号处理方法, 将 Wiener 滤波算法应用于同步检测技术获得的实验信号, 在线测量人体呼出气体中 $^{13}\text{CO}_2$ 和 $^{12}\text{CO}_2$ 的混合物, 显著提高了气体的测量精度。2021 年, 沙特阿拉伯的 Abdulaziz Aljalal 等人^[46]开发了一种用于检测 NO_2 的新方法。该方法使用可调谐多模蓝光二极管激光器, 通过测量激光驱动电流函数下的传输特性, 准确测量了 NO_2 的吸收信号。2022 年, 韩国的 Sunghyun So 等人^[47]提出了一种改进的 DAS, 通过结合波分复用技术, 实现了对预混 CH_4 /空气火焰中 OH 自由基浓度、 H_2O 浓度和温度的同时测量。2023 年, 英国克兰菲尔德大学的 Nicholas M. Davis 等人^[48]开发了一种紧凑型 CH_4 传感器。该系统采用有效光程为 70.1 cm 的积分球和发射波长为 $3.313\ \mu\text{m}$ 的带间级联(ICL)激光器, 在 0-50 ppm 的 CH_4 浓度范围内展现出良好的线性响应特性。2024 年, 丹麦技术大学的 A. S. Ashik 等人^[49]开发了一种基于近红外二极管激光器的集成路径多气体传感器, 该系统采用模块化结构设计, 通过基于光纤耦合微机电系统光开关完成多激光源的无缝切换, 实现了 CO_2 、 CH_4 和 C_2H_2 浓度的实时准确测量。实验结果显示, 该系统对 CO_2 、 CH_4 和 C_2H_2 的检测灵敏度分别达到了 0.5 ppm、3 ppb 和 2 ppb。

1.3.2 国内研究现状

国内对于 TDLAS 技术的研究虽起步较晚,但经过二十多年的快速发展,已在理论创新与工程应用领域取得了一系列标志性成果。2003 年,中国科学院安徽光机所的高晓明等人^[50]基于 TDLAS 技术,成功实现了对 CO_2 分子在 $1.57\text{ }\mu\text{m}$ 附近的高灵敏度吸收探测,获得的最小可探测吸收为 8.6×10^{-5} ,对应 $500\times 10^{-6}\text{ m}^{-1}$ 的探测灵敏度。2006 年,华南理工大学的李坤颖等人^[51]利用 MATLAB 的动态仿真工具 SIMULINK,建立了基于 TDLAS 的 CO 和 CO_2 浓度和温度系统的仿真模型,并验证了 TDLAS 动态参数快速测量系统的正确性与可行性。2009 年,中国科学技术大学的祝玉泉等人^[52]开发了一种基于 TDLAS 技术的城市天然气管道泄漏检测系统,通过发射波长为 $1.65\text{ }\mu\text{m}$ 的分布式反馈(DFB)激光器和 White 型多通池,实现了对天然气泄漏的高灵敏度检测和定位。2012 年,天津大学的邹得宝等人^[53]研究了数字滤波算法在 TDLAS 逃逸氨检测中的应用,比较了五种数字滤波算法在改善原始光谱方面的效果。2015 年,香港中文大学的任伟等人^[54]开发了一种 H_2CO 痕量气体传感器,采用发射波长为 $3.6\text{ }\mu\text{m}$ 的 ICL 激光器,结合一种紧凑的多通池(7.6 cm 物理长度/ 3.75 m 有效光程),实现了对 H_2CO 的高灵敏检测。2018 年,太原科技大学的李传亮等人^[55]开发了一种基于 WMS 技术的 CO 与 CO_2 同时测量方法。2020 年,安徽大学的刘宁武等人^[56]开发了一种基于中红外和近红外激光混合的 TDLAS 多气体光谱测量系统,通过将发射波长为 $4.56\text{ }\mu\text{m}$ 的 QCL 激光器和 $1.653\text{ }\mu\text{m}$ 的 DFB 激光器同时耦合到多通池,实现了对大气中 CO, N_2O 和 CH_4 气体的同时测量。2021 年,山西大学的卫婷婷等人^[57]开发了一种基于微型多通池和石英音叉热探测器的手掌大小 CH_4 传感器,通过将 DFB 激光器与微型多通池和石英音叉热探测器相结合,实现了 CH_4 的高灵敏度检测。2022 年,山东大学的田遴博等人^[58]提出了一种基于神经网络滤波器辅助的近红外 CH_4 传感系统,该系统将神经网络算法与传统 DAS 技术相结合,有效降低了 DAS 在实际应用中的噪声干扰问题,提高了 CH_4 检测的灵敏度和稳定性。2023 年,中国石油大学(华东)的李国林等人^[59]开发了一种用于大气中 CO 检测的中红外遥感传感器。该系统采用直径为 250 mm 的菲涅耳透镜实现了大面积信号收集,并通过激光波长锁定技术,有效降低环境温度变化引起的波长漂移

问题。2024 年,吉林大学的常志勇等人^[60]开发了一种基于长光程吸收光谱技术的近红外 DFB 传感器,实现了大气中 CH_4 、 CO_2 和 O_2 的同时测量。该系统采用光纤开关和时分复用技术依次扫描各目标气体的吸收谱线,并通过激光功率波动校正方法,进一步提高了系统的精度和准确性。

1.4 本文主要研究内容与章节安排

本文围绕基于 TDLAS 的气体检测系统性能优化和多组分测量展开研究。全文共分为五个章节,具体内容安排如下:

第一章 绪论。本章探讨了 CH_4 和 C_2H_2 气体浓度监测在工业安全、环境保护等领域的重要性,并通过比较分析电化学检测、催化燃烧、气相色谱等气体检测技术优缺点;突出了激光吸收光谱技术的优势。此外,本章还介绍了 TDLAS 等典型激光吸收光谱技术,并对 TDLAS 在国内外的研究进展进行了回顾。

第二章 基于 TDLAS 技术的气体检测理论。本章详述了 TDLAS 技术的理论基础,包括 Lambert-Beer 定律,分子吸收谱线强度、谱线展宽机制以及 Gauss、Lorentz 和 Voigt 线型函数。此外,讨论了四种典型的数字滤波算法以及基于 Levenberg-Marquardt 非线性拟合算法的吸收光谱在线拟合方法。

第三章 基于波长稳定和 H_∞ 滤波的 $\text{CH}_4/\text{C}_2\text{H}_2$ 同时测量。本章介绍了一种基于 TDM 和 DAS 的紧凑型 $\text{CH}_4/\text{C}_2\text{H}_2$ 气体检测系统。首先,对 CH_4 和 C_2H_2 的吸收谱线选择和所使用的 DFB 激光器特性进行了深入分析。随后,详述了用于抑制激光波长漂移的波长稳定技术和降低系统噪声干扰的 H_∞ 滤波算法。最后,通过实验对该气体检测系统的性能进行了评估。

第四章 基于神经网络的 DAS 气体检测系统性能提升研究。本章提出了一种基于神经网络气体分析模型增强的 CH_4 气体检测系统。首先,详细介绍了气体分析模型中神经网络滤波器和网络浓度预测器的结构,以及数据集构建和模型训练策略。随后,通过模拟数据和实验数据对该模型的性能进行了全面分析。最后,评估了该气体检测系统的检测精度和长期稳定性。

第五章 总结与展望。总结论文的主要研究内容 and 创新点,并对研究工作中存在的不足,提出后续的工作展望。

第 2 章 基于可调谐二极管吸收光谱技术的气体检测理论

TDLAS 技术作为一种高精度气体分析方法，具有高灵敏度、高选择性、快速响应以及非接触式测量等优点。该技术通过调节激光二极管的驱动电流和温度，精确调谐激光波长以覆盖目标气体的特征吸收谱线，实现对气体浓度的精准检测。本章将重点围绕 DAS 的检测理论展开论述。首先，介绍吸收光谱的基本知识，包括 Lambert-Beer 定律、分子吸收谱线强度、谱线展宽机制以及线型函数；其次，分析四种常用数字滤波算法的基本原理；最后，探讨基于 Levenberg-Marquardt 非线性拟合算法的吸收光谱在线拟合方法。

2.1 分子吸收光谱基本理论

在光与分子相互作用过程中，光子能量以量子化方式被分子选择性吸收，这一过程严格遵循能量守恒和跃迁选择定则^[61]。当入射光子的能量($h\nu$)精确匹配分子基态与激发态的能量差(ΔE)时，分子通过电偶极矩、磁偶极矩或四极矩等相互作用机制吸收光子，进而诱发量子化的能级跃迁(跃迁包括电子能级跃迁、振动能级跃迁以及转动能级跃迁，其能量差遵循电子能级>振动能级>转动能级的量级规律)，由此产生的特性光谱即为分子吸收光谱。

分子体系的哈密顿量受其空间构型、键合参数及电子云分布等量子化学特征的决定性影响，使得不同分子在激发态与基态间形成了具有指纹特性的能级结构。这种本征能级的特异性导致分子仅对满足 $\Delta E = h\nu$ 条件的特征频率光子产生共振吸收。在此基础上，通过对特定分子吸收光谱的分析检测，可以进行分子的定性分析或定量研究。

2.1.1 朗伯-比尔定律

气体吸收检测原理如图 2-1 所示，当一束初始光强为 $I_0(\nu)$ 的激光束穿过待测气体介质时，气体分子选择性的吸收一部分光能，导致透射光强衰减至 $I_t(\nu)$ 。整个吸收过程可依据朗伯-比尔(Lambert-Beer)定律进行描述，其数学表达式为：

$$I_t(\nu) = I_0(\nu) \cdot \exp[-a(\nu) \cdot L] \quad (2-1)$$

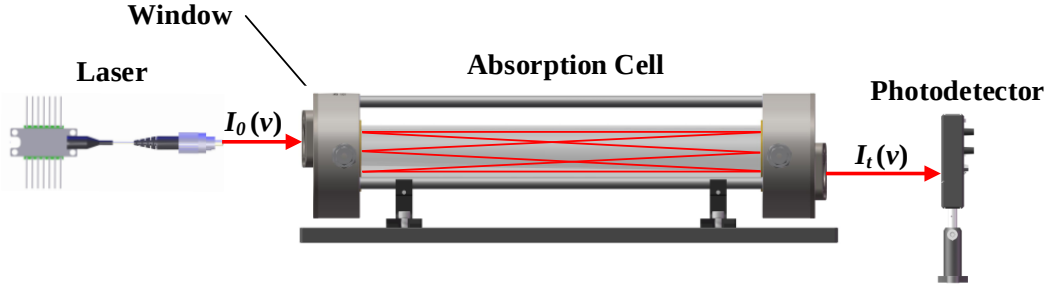


图 2-1 气体吸收检测原理

式中, ν 为光束频率, 单位为 cm^{-1} ; $I_0(\nu)$ 与 $I_t(\nu)$ 分别为初始的入射光强和光束穿过气体介质后的透射光强, 单位为 mW ; L 为光束与气体介质相互作用的有效长度, 单位为 cm ; $a(\nu)$ 为气体吸收系数, 单位为 cm^{-1} , 表征气体对特定频率光的吸收能力, 包含待测气体的浓度、温度和压力等信息, 可进一步表述为:

$$a(\nu) = \sigma(\nu) \cdot N_j(T, P) = \phi(\nu - \nu_0) \cdot S_i(T) \cdot N_j(T, P) \quad (2-2)$$

式中, $\sigma(\nu)$ 为气体吸收截面, 单位为 $\text{cm}^2/\text{molecule}$; $N_j(T, P)$ 为分子数密度, 单位为 $\text{molecule}/\text{cm}^3$; $S_i(T)$ 为分子吸收谱线强度, 单位为 $\text{cm}/\text{molecule}$; $\phi(\nu - \nu_0)$ 为以 ν_0 为中心的吸线型, 满足归一化条件: $\int_{-\infty}^{+\infty} \phi(\nu - \nu_0) d\nu = 1$, 单位为 cm 。

通过对公式(2-2)两端进行积分, 获得气体分子吸收谱线积分面积 A :

$$A = \int_{-\infty}^{+\infty} \ln \left[\frac{I_0(\nu)}{I_t(\nu)} \right] d\nu = N_j(T, P) \cdot L \cdot \int_{-\infty}^{+\infty} \sigma(\nu) d\nu = S_i(T) \cdot N_j(T, P) \cdot L \quad (2-3)$$

积分面积 A 反映了气体对光的吸收特性。在相关实验条件(如温度、压力、光程和谱线参数)已知的情况下, 通过测量积分面积 A , 即可利用公式(2-3)反演出吸收气体分子的浓度 C (单位为 ppm):

$$C = \frac{N_j(T, P)}{N(T, P)} \times 10^6 = \frac{A \cdot P_0 \cdot T}{S_i(T) \cdot L \cdot P \cdot N_0 \cdot T_0} \times 10^6 \quad (2-4)$$

式中, $N(T, P) = \frac{P}{P_0} \cdot N_0 \cdot \frac{T_0}{T}$ 为气体介质的总分子数密度; N_0 为洛施密特常量 (Loschmidt constant), 在标准温度和压力 ($T_0 = 273.15 \text{ K}$, $P_0 = 1 \text{ atm}$) 下, $N_0 = 2.6875 \times 10^{19} \text{ molecule}/\text{cm}^3$ 。

实际测量过程中, 当光束穿过待测气体介质时, 由于气体折射率梯度引起的光束发散及介质散射效应(包括瑞利散射和米氏散射)的影响^[62], $I_0(\nu)$ 发生非吸收性衰减, 导致 $I_t(\nu)$ 呈现下降趋势。在基于 DAS 的气体浓度检测中, 可通过提取原始吸收信号中的无吸收区域, 利用多项式拟合或样条插值法建立基线函数 $I_{baseline}(\nu)$ 。图 2-2(a)展示了 DAS 技术得到的原始吸收信号与拟合基线。在完成基线扣除后, 得到气体的吸光度曲线, 通过选取合适的线型函数对光谱数据进行拟合并积分, 得到拟合曲线与基线之间的积分面积 A , 拟合吸光度积分面积如图 2-2(b)所示。

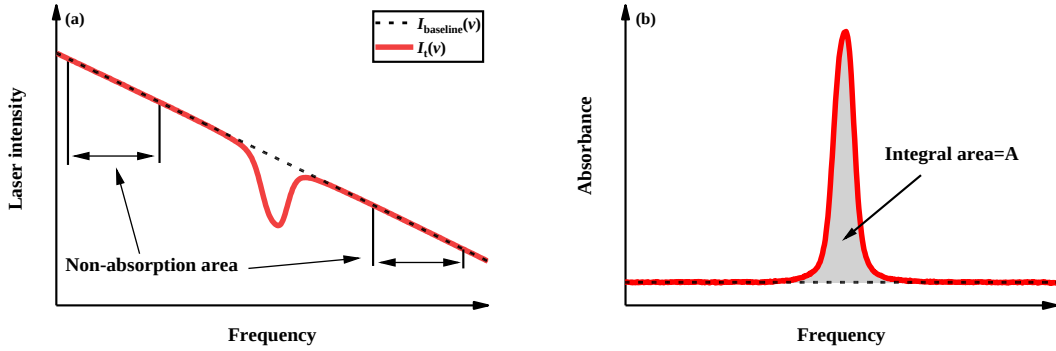


图 2-2 (a) 原始吸收信号与拟合基线; (b) 扣除基线后的吸收光谱信号

2.1.2 吸收谱线强度

分子吸收谱线强度 S 与低能态的分子布局数 N_i 及跃迁几率密切相关。低能态的分子布局数 N_i 满足玻尔兹曼分布, 而分子在高能级态 $|k\rangle$ 和低能级态 $|i\rangle$ 之间的跃迁则取决于爱因斯坦系数(Einstein coefficient) B_{ik} : $B_{ik} = 8\pi^3 / (3h^2c) \cdot |R_{ik}|^2$ 。分子吸收谱线强度可描述为:

$$S = \frac{1}{N} \cdot \frac{h\nu_{ik}}{c} \cdot B_{ik} \cdot N_i \cdot \left[1 - \exp\left(-\frac{h\nu_{ik}}{kT}\right) \right] \quad (2-5)$$

式中, c 为真空中的光速, 单位为 cm/s ; h 为普朗克常数, 单位为 $\text{erg}\cdot\text{s}$; ν_{ik} 为 $|k\rangle \rightarrow |i\rangle$ 跃迁的中心频率; k 为玻尔兹曼常数, 单位为 $\text{erg}\cdot\text{K}^{-1}$ 。上式中的热力学因子 $\left[1 - \exp\left(-\frac{h\nu_{ik}}{kT}\right) \right]$ 反映了分子跃迁能级间的吸收修正。结合玻尔兹曼分布, 低能态的分子布局数 N_i 可进一步表述为:

$$N_i = \frac{Ng_i}{Q} \cdot \exp\left(-\frac{hcE_i''}{kT}\right), Q = \sum_i g_i \cdot \exp\left(-\frac{hcE_i''}{kT}\right) \quad (2-6)$$

式中, g_i 为低能级态的简并度, E_i'' 为分子跃迁的底层能量, Q 为分子的内部配分函数。结合式(2-5)、(2-6), 得到在温度 T 时的谱线强度为:

$$S_i(T) = \frac{hv_{ik}}{c} \cdot B_{ik} \cdot \frac{g_i}{Q(T)} \cdot \exp\left(-\frac{hcE_i''}{kT}\right) \cdot \left[1 - \exp\left(-\frac{hcv_{ik}}{kT}\right)\right] \quad (2-7)$$

上述公式说明, 吸收谱线强度 $S_i(T)$ 不仅依赖于低能态的分子布局数 N_i , 还受到温度 T 的显著影响。为了更加便捷地计算温度 T 下的谱线强度 $S_i(T)$, 可利用参考温度 T_{ref} 时的吸收谱线强度 $S_{ref}(T_{ref})$ 来推算^[63]:

$$S_i(T) = S_{ref}(T_{ref}) \cdot \frac{Q(T_{ref})}{Q(T)} \cdot \frac{\left[1 - \exp\left(-hc \frac{v_{ik}}{kT}\right)\right]}{\left[1 - \exp\left(-hc \frac{v_{ik}}{kT_{ref}}\right)\right]} \cdot \exp\left[-\frac{hcE_i''}{k} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_{ref}}\right)\right] \quad (2-8)$$

通常 HITRAN 2022 数据库^[64]中的谱线强度皆以室温(296 K)计算的结果作为参考标准。因此, 当配分函数 Q 已知时, 依据上式可确定各个温度下的谱线强度。图 2-3 展示了 6046.96 cm^{-1} 附近 CH_4 分子的吸收谱线和 6521.20 cm^{-1} 附近 C_2H_2 分子的吸收谱线在 100-500 K 温度范围内谱线强度的变化曲线。

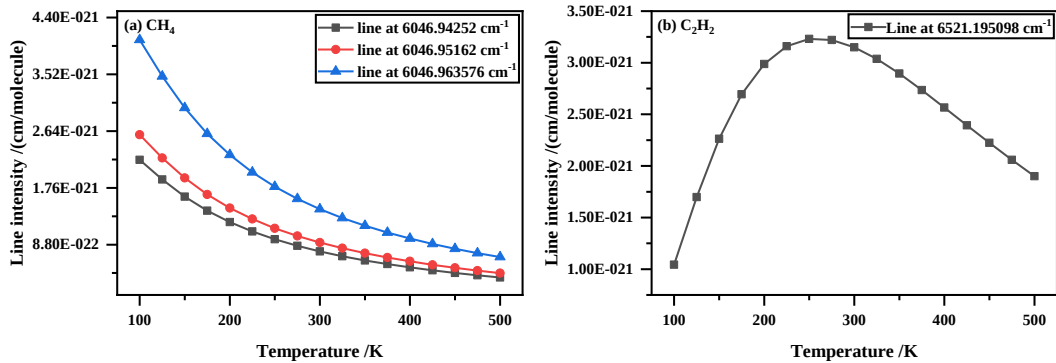


图 2-3 (a) CH_4 分子(6046.96 cm^{-1} 附近)和(b) C_2H_2 分子(6521.20 cm^{-1} 附近)的谱线强度对温度的依赖特性

2.1.3 吸收谱线展宽机制与线型函数

吸收谱线在理论上通常被描述为具有特定频率的单色光。然而, 在实际观测中, 由于受到多种物理机制的影响, 如自然展宽(Natural Broadening)、碰撞展

宽(Collisional Broadening)及多普勒展宽(Doppler Broadening), 吸收谱线呈现出一定的宽度和形状^[65]。因此, 吸收谱线的频率并非严格意义上的单一值, 而是分布在一定的频带范围内。在这一频带中, 吸收谱线的强度分布遵循特定的函数形式, 即线型函数。线型函数精确地描述了谱线吸收系数随着频率的相对变化, 不仅反映了吸收谱线在中心频率处的最大强度, 同时也体现了谱线强度随频率偏离中心频率逐渐减弱的趋势。

常见的线型函数有洛伦兹(Lorentz)线型函数、高斯(Gauss)线型函数和沃伊特(Voigt)线型函数。其中, Lorentz 线型函数主要被用于描述自然展宽和碰撞展宽所导致的谱线特性, 其特点是谱线中心锐利, 尾部衰减较慢, 表现为长尾分布。Gauss 线型函数则通常用于描述由粒子热运动所导致的多普勒展宽, 其谱线形状更为平滑, 对称性更强, 尾部衰减较快。Voigt 线型函数则是 Gauss 线型和 Lorentz 线型的卷积, 结合了两者的特点, 能够更为全面地描述在实际物理环境中, 由碰撞展宽和多普勒展宽共同作用下的谱线形状^[66]。

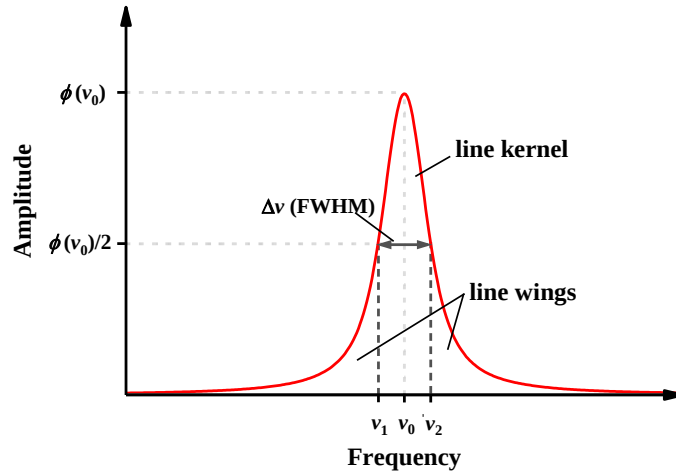


图 2-4 吸收谱线的线型和宽度

图 2-4 展示了一个典型的单线吸收谱线线型, 其中心频率为 ν_0 , 横坐标为频率, 纵坐标为幅值。线型在中心频率 ν_0 处达到其最大值 $\phi(\nu_0)$ 。线型的宽度 $\Delta\nu$ 定义为幅值从最大值 $\phi(\nu_0)$ 下降至其一半 $\phi(\nu_0)/2$ 时, 所对应的谱线宽度, 称为半高全宽(Full width at half maximum intensity, FWHM)。FWHM 区域内的部分被称为“线核(line kernel)”, 这一部分主要反映了谱线的核心信息, 是谱线的主要组成部分; FWHM 区域外的两侧部分则称为“线翼(line wings)”。线翼的幅值

较低，但它包含了一些更宽范围频率上的吸收信息，往往受到各种展宽机制的影响。

(1) 自然展宽(Natural Broadening)——Lorentz 线型

自然展宽也被称为寿命展宽(Lifetime Broadening)，是由原子、分子或粒子的有限寿命所导致的自然宽度，普遍存在于所有具有有限激发态寿命的粒子体系中。根据量子力学和不确定性原理，当原子或分子从激发态跃迁到较低能级时，会释放出特定频率的光子。然而，由于激发态寿命的有限性，能级的不确定性会导致光子频率分布呈现一定的展宽特性。具体而言，激发态的寿命 τ 可通过以下关系式定量描述：

$$\tau = 1/A_{ik} \quad (2-9)$$

式中， A_{ik} 为自发辐射 Einstein 系数，反映了单位时间内发生自发跃迁的几率密度。根据 Einstein 辐射理论， A_{ik} 表示为：

$$A_{ik} = 8\pi h c v_{ik}^3 B_{ik} = \frac{64\pi^4 v_{ik}^3}{3h} |R_{ik}|^2 \quad (2-10)$$

式中， $|R_{ik}|^2$ 为跃迁偶极矩的平方，反映了跃迁的强度。根据海森堡(Heisenberg)不确定性原理，能级态的展宽 ΔE 与激发态寿命 τ 之间满足关系：

$$\tau \cdot \Delta E \geq h \quad (2-11)$$

由此进一步得到自然展宽的频率展宽 ΔV_n ：

$$\Delta V_n = \frac{\Delta E}{hc} \geq \frac{32\pi^3 v_{ik}^3}{3hc} |R_{ik}|^2 \quad (2-12)$$

上述公式表明，频率展宽 ΔV_n 与跃迁频率的三次方 v_{ik}^3 成正比，反映了频率越高，自然展宽越显著的特性。对于激发的电子态，典型的自然展宽数值约为 $1 \times 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$ (30 MHz)；而激发的振动态和转动态的自然展宽数值则分别为 1×10^{-7} - $6.7 \times 10^{-7} \text{ cm}^{-1}$ (3-20 kHz)， 3×10^{-15} - $3 \times 10^{-14} \text{ cm}^{-1}$ (10^{-5} - 10^{-4} kHz)。由于每个原子或分子行为一致性，自然展宽为均匀展宽，满足 Lorentz 线型特征分布。对于振转跃迁，自然展宽很小，由于其他过程(如多普勒展宽和碰撞展宽)占据主导地位，故通常实验条件下无法观察到。

(2) 碰撞展宽(Collisional Broadening)——Lorentz 线型

碰撞展宽也被称为压力展宽(Pressure Broadening)，与自然展宽类似，属于均匀展宽的一种，是由原子或分子间发生碰撞引起的能量转移，进而导致能级形成的谱线展宽。设碰撞的平均时间间隔为 τ_{coll} ，碰撞过程中能级间的跃迁受到扰动，由能级寿命与频率不确定性之间的关系可得碰撞展宽 $\Delta\nu_L$ ：

$$\Delta\nu_L \geq \frac{1}{2\pi\tau_{coll}} \quad (2-13)$$

碰撞展宽的谱线形状满足 Lorentz 线型分布，表达式为：

$$\phi_L(\nu) = \frac{\Delta\nu_L}{\pi} \cdot \left[\frac{1}{(\nu - \nu_0)^2 + \Delta\nu_L^2} \right] \quad (2-14)$$

压力的增加会导致分子间的碰撞频率升高，从而降低平均自由程，缩短能级寿命。因此，碰撞展宽 $\Delta\nu_L$ 通常与压力 P_0 呈线性正相关。此外，碰撞展宽还表现出一定的温度依赖性，其数学表达式为：

$$\Delta\nu_L = g \cdot P_0 \cdot \left(\frac{T_{ref}}{T} \right)^n \quad (2-15)$$

式中， T_{ref} 为参考温度，通常取 296 K； n 为温度系数，通常在 0.5-0.8 之间； g 为碰撞宽展系数，描述了由分子间碰撞引起的谱线展宽效应的程度，与分子间相互作用的强度和特性密切相关。当温度升高时，由于粒子热运动增强，碰撞频率下降，展宽效应随之减弱。进一步考虑碰撞展宽的来源，谱线的展宽不仅包括分子间的自展宽(self-broadening)，还包括与背景气体碰撞引起的空气展宽(air-broadening)。可用以下公式进行描述：

$$\Delta\nu_L = \left[g_{self} \cdot P_{self} + g_{air} \cdot (P_0 - P_{self}) \right] \cdot \left(\frac{T_{ref}}{T} \right)^n \quad (2-16)$$

式中， P_{self} 为气体本身的分压，单位为 atm； g_{self} 和 g_{air} 分别为自展宽系数和空气展宽系数，单位为 $\text{cm}^{-1}/\text{atm}$ 。图 2-5 展示了 3 ppm CH_4 在 6046.96 cm^{-1} 附近和 2 ppm C_2H_2 在 6521.20 cm^{-1} 附近的碰撞展宽特性。

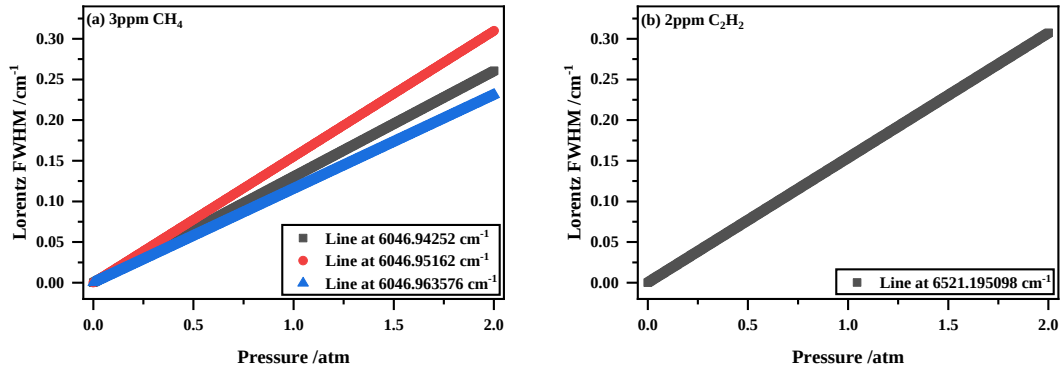


图 2-5 (a) 3 ppm CH₄(6046.96 cm⁻¹ 附近)和(b) 2 ppm C₂H₂ (6521.20 cm⁻¹ 附近)的碰撞展宽特性

(3) 多普勒展宽(Doppler Broadening)——Gauss 线型

多普勒展宽又被称为温度展宽(Temperature Broadening)，是由分子或原子的热运动引起的频率偏移现象。当分子或原子以相对静止的物理速度 v 运动时，辐射或吸收的频率 ω 会因多普勒效应而产生偏移，具体表示式为：

$$\omega = \omega_0 + Kv \quad (2-17)$$

式中， $|K| = \omega / c = 2\pi / \lambda$ ，表示频率与波长和光速的关系。探测的频率与分子和观察者之间的距离成反比，即距离越近，频率越高；距离越远，频率越低。

同理，分子或原子的热运动，其吸收频率也会出现多普勒频移，不同的速度会导致不同的多普勒频移，从而形成一种非均匀的谱线展宽，即多普勒展宽。多普勒展宽的谱线形状满足 Gauss 线型分布，表达式为：

$$\phi_D(v) = \sqrt{\frac{\ln 2}{\pi}} \cdot \frac{2}{\Delta v_D} \cdot \exp \left[-4 \ln 2 \cdot \left(\frac{v - v_0}{\Delta v_D} \right)^2 \right] \quad (2-18)$$

式中， Δv_D 为多普勒 FWHM，表述为：

$$\Delta v_D = \frac{v_0}{c} \cdot \left(\frac{8kT \ln 2}{m} \right)^{1/2} = 7.1623 \times 10^{-7} \times v_0 \times \sqrt{\frac{T}{M}} \quad (2-19)$$

上述公式揭示了多普勒展宽与温度 T 和分子摩尔质量 M 之间的依赖关系，当温度升高或分子摩尔质量减小时，分子的热运动速度 v 增加，多普勒效应随之增加。图 2-6 展示了 CH₄ 分子(6046.96 cm⁻¹ 附近)和 C₂H₂ 分子(6521.20 cm⁻¹ 附近)的多普勒展宽随温度变化曲线。具体而言，对于 CH₄ 分子，三条吸收线的多普勒展宽特性几乎一致，表明温度对展宽的影响独立于具体吸收频率。在中心波数相差 <1 cm⁻¹ 的情况下，这种差异可忽略不计。而对于 C₂H₂ 分子，由于分子

摩尔质量较大，在相同温度条件下， C_2H_2 的多普勒展宽相比于 CH_4 吸收线的展宽更窄。

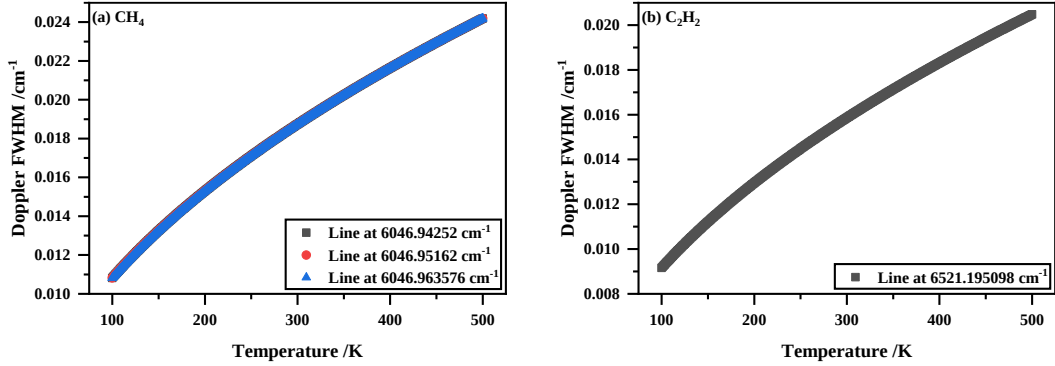


图 2-6 (a) CH_4 分子(6046.96 cm^{-1} 处)和(b) C_2H_2 分子(6521.20 cm^{-1} 处)的多普勒展宽对温度依赖特性

(4) 沃伊特(Voigt)线型

实际在分子展宽中，同时存在碰撞展宽和多普勒展宽。当温度高、压力低时，多普勒展宽为主，适合采用 Gauss 线型函数描述；而在高压时，膨胀展宽为主，适合采用 Lorentz 线型函数描述。通常情况下，当两种展宽的宽度接近时，吸收线型为上述两种线型的卷积，即 Voigt 线型，描述为：

$$\phi_V(\nu) = \int_{-\infty}^{+\infty} \phi_D(u) \cdot \phi_L(\nu - u) du \quad (2-20)$$

定义 Voigt 线型参数 a ，当碰撞展宽增大时 a 增大；变量 w 表示无量纲的相对线位置，变量 y 为体现两种展宽机制重要性的参数。

$$a = \sqrt{\ln 2} \Delta\nu / \Delta\nu_D, w = 2\sqrt{\ln 2} (\nu - \nu_0) / \Delta\nu_D, y = 2\sqrt{\ln 2} u / \Delta\nu_D \quad (2-21)$$

根据 Gauss 线型函数以及 a ， w 的定义，公式(2-21)可改写为：

$$\phi_V(\nu) = \phi_D(\nu_0) \cdot \frac{a}{\pi} \cdot \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\exp(-y^2)}{a^2 + (w - y)^2} dy = \phi_D(\nu_0) \cdot V(a, w) \quad (2-22)$$

式中， $V(a, w)$ 是 Voigt 线型函数，可使用标准的数学方法近似计算。典型的如怀特名(Whiting)近似^[67]，文献报道近似误差约在 1% 以内，具体公式为：

$$\phi_V(\nu) = \sigma_V(\nu_0) \left\{ \begin{aligned} & \left((1-x) \exp(-0.693y^3) + \frac{x}{1+y^2} \right. \\ & \left. + 0.016(1-x)x \left[\exp(-0.0841y^{2.25}) - \frac{1}{1+0.021y^{2.25}} \right] \right) \end{aligned} \right\} \quad (2-23)$$

式中, $x = \Delta\nu_L / \Delta\nu_V$, $y = |v - v_0| / \Delta\nu_V$, $\Delta\nu_V = 0.5346\Delta\nu_L + \sqrt{0.2166\Delta\nu_L^2 + \Delta\nu_D^2}$, $\Delta\nu_L$ 为 Lorentz 线型 FWHM, $\Delta\nu_D$ 为 Gauss 线型 FWHM, $\Delta\nu_V$ 为 Voigt 线型 FWHM。图 2-7 展示了 FWHM 相同的 Lorentz 线型函数和 Gauss 线型函数以及卷积得到的 Voigt 线型函数。

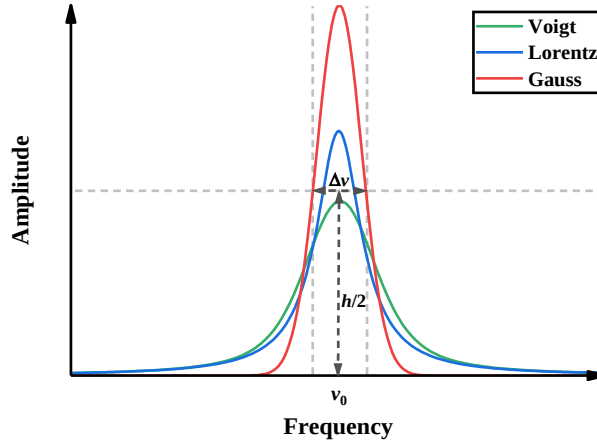


图 2-7 FWHM 相同的 Lorentz 线型函数和 Gauss 线型函数以及卷积得到的 Voigt 线型函数

2.2 数字滤波算法

在基于 DAS 的气体检测系统中, 噪声主要来源于激光器本征噪声、光路干涉噪声以及光电探测器噪声。具体而言, 激光器本征噪声主要由激光输出功率的波动引起, 受半导体器件性能和外部环境因素影响, 表现为激光器驱动电流的稳定性(电流噪声)和温控精度(温度漂移)等问题。光路干涉噪声由光路中多次反射形成的驻波效应(etalon 效应)导致, 表现为探测器输出信号随激光波长调谐出现周期性振荡。光电探测器噪声则包括与器件温度相关的热噪声、受光电流量子起伏引起的散粒噪声, 以及具有低频特征的闪烁噪声^[68]。这些噪声的叠加效应会显著降低检测系统的信噪比(Signal-to-Noise Ratio, SNR), 进而影响气体浓度的定量分析精度。因此, 采用适当的数字滤波算法对光谱信号进行处理, 有效抑制噪声的干扰, 对于提高系统检测精度至关重要。

2.2.1 平均滤波算法

平均滤波(Moving Average Filter, MAF)算法是一种经典的数字信号处理技术, 其核心原理是通过对信号在 N 个周期内的采样值进行平均计算, 从而实现信号

平滑^[69]。该算法的性能参数中，平均次数 N 的选择呈现显著的动态权衡特性：当 N 取值较大时，信号相对平滑，但响应较慢；反之，当 N 取值较小时，则系统实时性提高，但滤波效果相对减弱。在气体检测系统中，采集到的时域信号可表示为：

$$x(t) = s(t) + n(t) \quad (2-24)$$

式中， $s(t)$ 为气体吸收信号， $n(t)$ 为系统噪声。设单个信号扫描周期内包含 M 个采样点 ($j=1,2,\dots,M$)，采样间隔为 Δt ，重复采样次数为 $i=1,2,\dots,N$ 。第 i 个周期中第 j 个点的取样值可表示为：

$$x(t_i + j\Delta t) = s(t_i + j\Delta t) + n(t_i + j\Delta t) \quad (2-25)$$

式中， t_i 为第 i 个取样周期开始取样的时刻。因为 $s(t)$ 为确定性信号，对于不同采样周期 i ，第 j 个点的取样值基本相同，可用 S_j 来表示；而噪声 $n(t)$ 是随机的，其数值取决于 i ，又取决于 j ，故上述公式可简记为：

$$x_{ij} = S_j + n_{ij} \quad (2-26)$$

累加平均得到的平均值可表示为：

$$\overline{x_{ij}} = \frac{1}{N} \sum_{i=0}^{N-1} x_{ij} \quad (2-27)$$

2.2.2 卡尔曼滤波算法

卡尔曼滤波(Kalman Filter, KF)算法是一种基于贝叶斯估计理论的最优递归估计方法，通过预测和更新两个阶段的迭代实现系统状态的最优估计^[70]。其核心思想是通过融合系统模型预测值和实际测量值，动态调整预测值与观测值的权重，从而最小化估计误差，实现系统状态的最优估计。具体而言，KF 的状态方程和测量方程表示为：

$$x_k = Ax_{k-1} + Bu_{k-1} + w_{k-1} \quad (2-28)$$

$$z_k = Hx_k + v_k \quad (2-29)$$

式中， x_k 为系统在时刻 k 的状态量， u_{k-1} 为控制输入量， z_k 为时刻 k 的测量值。

A ， B ， H 分别是状态转移矩阵、控制输入矩阵和测量矩阵。 w_{k-1} ， v_k 为过程噪声和测量噪声，协方差为 Q 和 R 。

在预测阶段，KF 基于系统模型对当前状态及其协方差矩阵进行先验估计：

$$\hat{x}_{k|k-1} = A\hat{x}_{k-1|k-1} + Bu_{k-1} \quad (2-30)$$

$$P_{k|k-1} = AP_{k-1|k-1}A^T + Q_{k-1} \quad (2-31)$$

式中， $\hat{x}_{k|k-1}$ 为时刻 $k-1$ 对时刻 k 的状态预测值， $P_{k|k-1}$ 为预测状态的协方差矩阵， Q_{k-1} 为过程噪声协方差矩阵。

在更新阶段，KF 结合新的测量值对预测值进行修正，通过计算 Kalman 增益动态调整预测值和测量值的权重，从而得的最优状态估计：

$$K_k = P_{k|k-1}H^T \left(HP_{k|k-1}H^T + R_k \right)^{-1} \quad (2-32)$$

$$\hat{x}_{k|k} = \hat{x}_{k|k-1} + K_k \left(z_k - H_k \hat{x}_{k|k-1} \right) \quad (2-33)$$

$$P_{k|k} = (I - K_k H_k) P_{k|k-1} \quad (2-34)$$

式中， K_k 为卡尔曼增益； $\hat{x}_{k|k}$ 为状态更新值； $P_{k|k}$ 为更新后的协方差矩阵； R_k 为测量噪声协方差矩阵。

2.2.3 小波变换滤波算法

小波变换(Wavelet Transform, WT)滤波算法是一种广泛应用于处理局部或瞬态信号的时频分析方法，其基本原理是通过选定的小波基函数对信号进行多尺度分解，将原始信号分解为不同频带的子信号分量^[71]。WT 滤波算法包括小波分解、阈值去噪处理和信号重构三个核心步骤。

在小波分解阶段，采用 Mallat 算法对原始信号进行多层分解，得到各个尺度下的近似系数(Approximation Coefficients, AC)和细节系数(Detail Coefficients, DC)。其中，AC 表征信号的低频成分，反映信号主体趋势，DC 对应高频部分，包含细节特征及噪声成分；

在阈值去噪处理阶段，对 j 层 DC 进行非线性阈值处理：

$$\tilde{DC}_j = \eta(DC_j, \lambda_j) \quad (2-35)$$

式中， η 为阈值函数，根据信号特性选择； λ 为自适应阈值参数，通常与分解层数 j 相关。

在信号重构阶段，利用处理后的系数进行小波逆变换，重构滤波后的信号：

$$\hat{S}(t) = W^{-1} \left(AC_J, \tilde{DC}_j \right)_{j=1}^J \quad (2-36)$$

式中， J 为分解层数，直接影响着时频分辨率平衡。

在 WT 滤波的实际应用中，参数优化工作是影响滤波性能的关键环节，主要包括小波基函数的选择、阈值的设定和阈值函数的选取。小波基函数的选择通常依据其正交性、对称性、反对称性等特性，以确保信号分解和重构的精度；阈值的设定对噪声抑制效果有显著影响，合适的阈值能够有效降低噪声，而不合适的阈值可能导致信号的失真或噪声残留；阈值函数则决定了如何对小波系数进行处理，不同的阈值函数反映了不同的处理策略，直接影响滤波的性能。

2.2.4 Savitzky-Golay 滤波算法

Savitzky-Golay(S-G)滤波算法是一种基于局域多项式加权最小二乘法拟合的信号平滑算法，其基本原理是通过在信号数据上逐点滑动一个固定宽度的窗口，并对此窗口内的数据点上进行多项式拟合，从而实现信号的平滑处理^[72]。多项式的系数由窗口的大小(即参与拟合的数据点数量)和多项式的阶数共同决定。

设原始信号序列为 $X = \{x_i | i = 1, 2, \dots, N\}$ ，其中 i 为数据的采样点， x_i 为采样点对应的信号值。设定 S-G 滤波的平滑窗口宽度为 $n(n = 2m + 1)$ ，表示在每个采样点 i 前后各自选择 m 个邻近点构成数据窗口。对于窗口内的数据点，采用一个 k 阶多项式进行拟合，即：

$$\hat{x}_i = \sum_{n=0}^k a_n (j-i)^n \quad (j = i-m, \dots, i+m) \quad (2-37)$$

式中， a_n 为多项式的系数， j 为窗口内局部坐标， i 为当前中心点的坐标。系数 a_n 可通过最小化误差平方和求得：

$$\min_{\{a_n\}} \sum_{j=i-m}^{i+m} \left[x_i - \sum_{n=0}^k a_n (j-i)^n \right]^2 \quad (2-38)$$

一旦确定了多项式的系数 a_n ，即可计算出经过滤波处理后的数据点 y_i ，这通常是多项式在 $j = i$ 处的拟合值，即：

$$y_i = \hat{x}_i = a_0 \quad (2-39)$$

2.3 吸收光谱在线拟合方法

在气体吸收光谱分析中，谱线线型函数的确定对于待测气体浓度的精确反演至关重要。线型函数的选择与谱线展宽机制密切相关，不同展宽机制对应不同的线型函数。常用的线型函数包括 Lorentz 线型、Gauss 线型和 Voigt 线型，分别适用于碰撞展宽、多普勒展宽以及二者的组合。由于这些线型均为非线性模型，因此在进行线型拟合时需要选择合适的非线性拟合算法以确保拟合的拟合精度和实时性。

梯度下降(Gradient descent, GD)法通过负梯度方向迭代逼近极值，求解过程具有较好的稳定性，但收敛速度相对较慢，难以满足实时在线检测需求。高斯-牛顿(Gauss-Newton, G-N)法通过泰勒级数展开对非线性拟合函数进行近似，利用多次迭代逐步修正拟合参数，使其逼近最优解。但对初始参数敏感，且迭代过程中易出现奇异矩阵或非正定矩阵的情况，从而中断求解。列文伯格-马夸尔特(Levenberg-Marquardt, L-M)法是结合了 GD 法和 G-N 法的优点^[73]，通过阻尼因子动态平衡 GD 法和 G-N 法的搜索方向，兼具快速收敛和全局稳定性。因此，L-M 算法是实时性要求较高的光谱测量系统中的理想选择。

L-M 算法的损失函数采用残差平方和的形式，其具体拟合过程如下：假设需要进行光谱拟合的线型函数为 $y = f(x; a)$ ，其中 a 为需要拟合的线型函数中的参数向量。测量得到 n 组数据点 $\{(x_i, y_i) | i = 1, 2, \dots, N\}$ ，其中 y_i 为测量值。线型函数最优拟合问题转化为最小化残差平方和 $\chi^2(a)$ 的求解问题：

$$\chi^2(a) = \sum_{i=1}^n [y_i - f(x_i; a)]^2 \quad (2-40)$$

对于每次迭代，参数向量 a_k 的更新表示为：

$$a_{k+1} = a_k + (J^T J + \lambda I)^{-1} J^T r(a_k) \quad (2-41)$$

式中： k 代表迭代次数， J 是 $\chi^2(a_k)$ 对参数向量 a_k 的雅可比(Jacobian)矩阵； I 是单位矩阵， λ 是阻尼因子。

具体算法步骤如下：

- (1) 初始化参数：设定初始值 a_0 、阻尼因子 $\lambda > 0$ 、收敛阈值 $\varepsilon > 0$ ，以及初始迭代计数 $k = 0$ ；
- (2) 计算残差平方和：计算 $\chi^2(a_k)$ ；
- (3) 求解线性方程：更新参数 a_{k+1} ；
- (4) 调整阻尼因子：若 $\chi^2(a_{k+1}) \geq \chi^2(a_k)$ ，增大 λ (例如增大 10 倍)，返回步骤(3)；反之继续执行；
- (5) 更新阻尼因子：若 $\chi^2(a_{k+1}) < \chi^2(a_k)$ ，减小 λ (例如减小 10 倍)，同时令 $k = k + 1$ ；
- (6) 判断收敛：若参数更新满足 $\|a_{k+1} - a_k\| < \varepsilon$ ，则算法收敛，结束迭代，否则返回步骤(3)。

由上述计算过程可知：当 $\chi^2(a_k)$ 逐渐减小时，阻尼因子 λ 也会相应减小。极限情况下，当 $\lambda \rightarrow 0$ 时，L-M 算法就可以看作使用黑塞(Hessian)矩阵逼近值的 G-N 法；当 $\chi^2(a_k)$ 逐渐增大时， λ 也随之相应增大。极限情况下，当 $\lambda \rightarrow \infty$ 时，该算法就近似看作采用较小学习速率的 GD 法。因此，L-M 算法通过调整阻尼因子 λ ，在 GD 法和 G-N 法之间平滑切换，兼具两者的优点，加快收敛速度的同时保持了求解过程的稳定性。L-M 拟合算法基本流程图如图 2-8 所示。

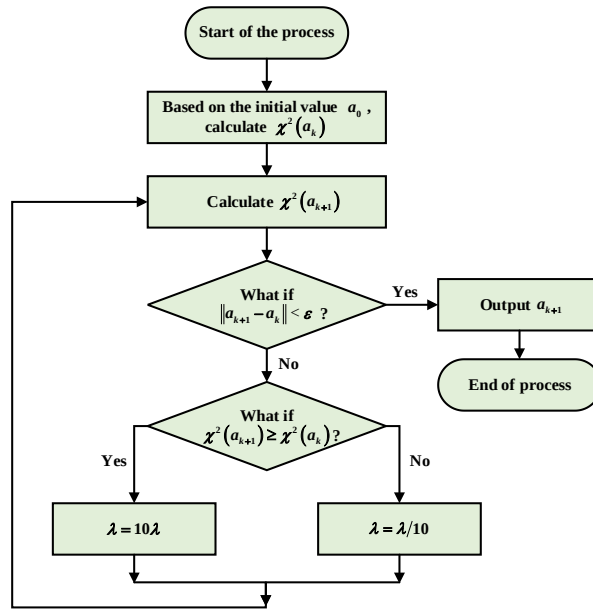


图 2-8 Levenberg-Marquardt 拟合算法基本流程图

L-M 算法作为一种高效的非线性迭代优化方法，能够快速找到局部最优解，从而实现吸收光谱线型函数的在线拟合。然而，该算法的收敛性、迭代次数以及最终解的可靠性均显著依赖于模型参数的初始估计值。因此，在拟合之前，需要为线型函数的每个独立变量提供合适的初始估算，以确保拟合过程的精确性和稳定性。尤其是在光谱数据存在较强噪声的情况下，初始参数的合理设置对实现快速且可靠的拟合结果具有至关重要的作用。

2.4 本章小结

本章系统阐述了基于 TDLAS 技术的气体检测理论。首先，详细介绍了吸收光谱的基本知识，包括 Lambert-Beer 定律，分子吸收谱线强度以及谱线展宽机制(自然展宽，多普勒展宽和碰撞展宽)，并深入分析了 Gauss 线型、Lorentz 线型和 Voigt 线型函数的特点。其次，探讨了检测系统中存在的噪声类型(如激光器本征噪声、光路干涉噪声以及光电探测器噪声)，并分析了包括 MAF、KF、WT 和 S-G 滤波算法在内的典型数字滤波算法基本原理。最后，介绍了基于 Levenberg-Marquardt 非线性拟合算法的吸收光谱在线拟合方法。

第 3 章 基于波长稳定和 H_∞ 滤波的 $\text{CH}_4/\text{C}_2\text{H}_2$ 同时测量

为实现多组分痕量气体的同时检测，TDLAS 系统通常采用单个宽带激光光源或多激光阵列，结合频分复用(Frequency Division Multiplexing, FDM)或时分复用(Time Division Multiplexing, TDM)技术实现气体特征光谱相关区域的覆盖^[74-76]。其中，DAS 气体检测系统通过解析分子吸收谱线参数进行浓度反演，具备免校准检测优势。然而，在复杂环境中，系统检测精度易受到环境低频噪声、光学干扰噪声以及电磁干扰噪声等多种因素的影响。传统数字滤波算法在应对复杂噪声时存在各自的局限性：S-G 滤波的窗口参数和多项式阶数依赖经验设定，在复杂噪声背景下表现欠佳；WT 滤波受限于小波基函数与阈值选择的适配性；KF 对噪声统计特性高度依赖，噪声特性未知或动态变化时，滤波性能显著降低。相比之下，基于最坏情况误差最小化设计的 H 无穷滤波(H-infinity, H_∞)算法，凭借其无需先验噪声统计信息的特性，在动态变化的噪声环境中展现出边界可控的稳定估计性能，为复杂干扰环境下的光谱信号处理提供了新思路^[77-79]。

本章介绍了一种基于 TDM 和 DAS 的紧凑型 $\text{CH}_4/\text{C}_2\text{H}_2$ 双气体检测系统。该系统采用基于比例-积分-微分(Proportional-Integral-Differential, PID)反馈控制的波长稳定技术，有效抑制环境扰动或温度漂移引起的激光波长漂移；同时，通过引入 H_∞ 滤波算法，以抑制系统噪声，提高气体检测精度。最后，通过一系列气体测量实验，对系统的性能进行了全面评估。

3.1 基于 DFB 激光器的双气体检测系统

分布式反馈(Distributed Feedback, DFB)激光器因其显著的窄线宽特性和精确的波长调谐能力，已成为 TDLAS 中备受关注的光源。本节将详细阐述基于 DFB 激光器的双气体检测系统的整体设计方案，着重分析吸收谱线选择、DFB 激光器特性、实验装置系统以及系统气密性与有效光程分析等内容。

3.1.1 吸收谱线选择

众所周知，在基于 TDLAS 的气体检测中，吸收谱线的选取是实现高精度和高灵敏度检测的关键因素。通常，目标谱线的选择需综合两个方面进行考量^[80]：

首先, 所选吸收谱线强度应与检测条件(如目标气体浓度范围和光程长度)相匹配。若谱线强度过强, 则可能会出现饱和现象, 导致无法有效检测到信号; 反之, 若谱线强度太弱, 则信号可能被噪声淹没, 导致无法准确反演气体浓度。其次, 所选吸收谱线应尽量避免被其他气体的吸收所干扰, 如常见的 H_2O 和 CO_2 , 以减少交叉干扰对测量的影响。此外, 在多组分气体检测中, 还需要考虑背景气体或共存气体的吸收情况, 避免吸收峰的重叠。

为研究 CH_4 和 C_2H_2 的光谱吸收特性, 本节基于 HITRAN 2022 数据库对二者在近红外波段的吸收谱线强度进行了模拟。结果如图 3-1(a)所示, CH_4 和 C_2H_2 在 $6000\text{--}6500\text{ cm}^{-1}$ 附近分别存在着较强的吸收谱带。综合考虑检测灵敏度和成本效益, 实验选择 6046.964 cm^{-1} 和 6521.195 cm^{-1} 附近的吸收谱线作为二者的检测波段。图 3-1(b)和(c)展示了在选定的光谱范围内气体吸光度的模拟结果, 其中设定压力为 1 atm, 温度为 296 K, 有效光程为 30.50 m, CH_4 和 C_2H_2 浓度为 10 ppm, H_2O 浓度为 1%, CO_2 浓度为 400 ppm。表 3-1 则汇总了所选 CH_4 和 C_2H_2 分子吸收谱线的相关参数。

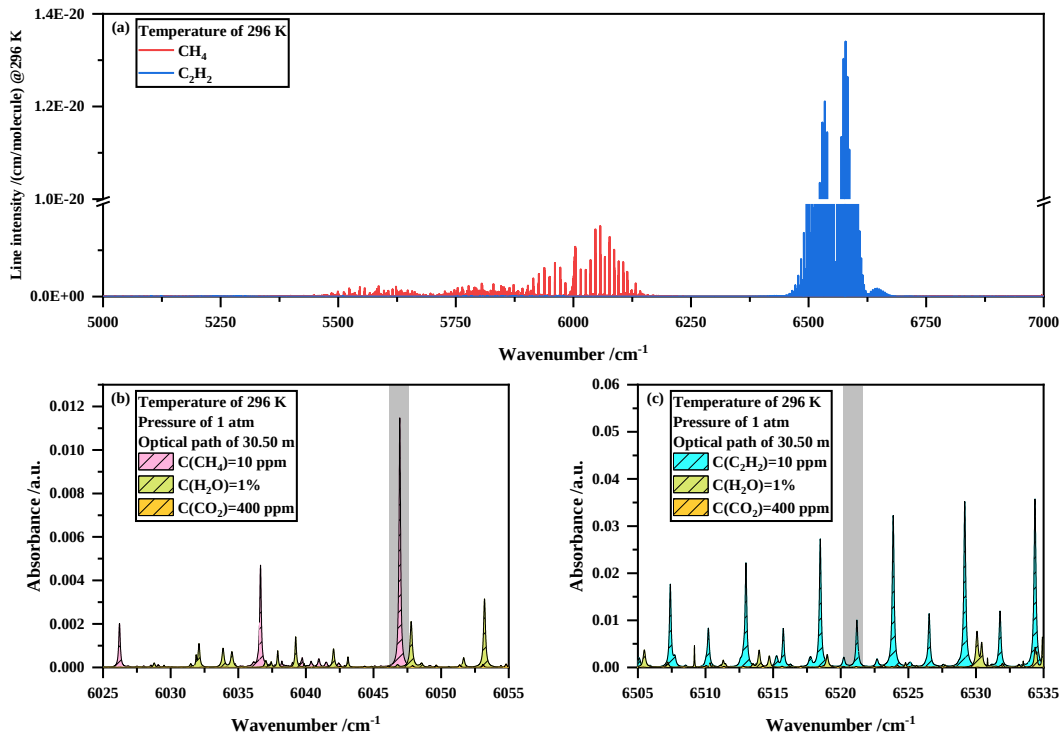


图 3-1 基于 HITRAN 数据库模拟的 CH_4 与 C_2H_2 光谱特性

表 3-1 所选 CH₄ 和 C₂H₂ 分子吸收谱线的相关参数

Species	Wavenumber / cm ⁻¹	Line Intensity / (cm/molecule) @296 K	γ_{air} / cm ⁻¹ ·atm ⁻¹	γ_{self} / cm ⁻¹ ·atm ⁻¹	E'' / cm ⁻¹
CH ₄	6046.94252	7.877×10^{-22}	0.0651		62.8758
	6046.95162	9.277×10^{-22}	0.0774	0.79	62.8768
	6046.963576	1.455×10^{-21}	0.0578		62.8782
C ₂ H ₂	6521.195098	3.165×10^{-21}	0.0768	0.141	247.0240

3.1.2 DFB 激光器特性

系统所使用的 DFB 激光器为 14 引脚蝶形封装结构，具备高效热传导、稳定温控和紧凑集成等特点。激光器的驱动与控制由紧凑型激光二极管控制器实现，其电流控制精度为 0.1 mA，温度控制精度为 0.01℃。图 3-2 展示了 DFB 激光器及其控制器的结构示意图。

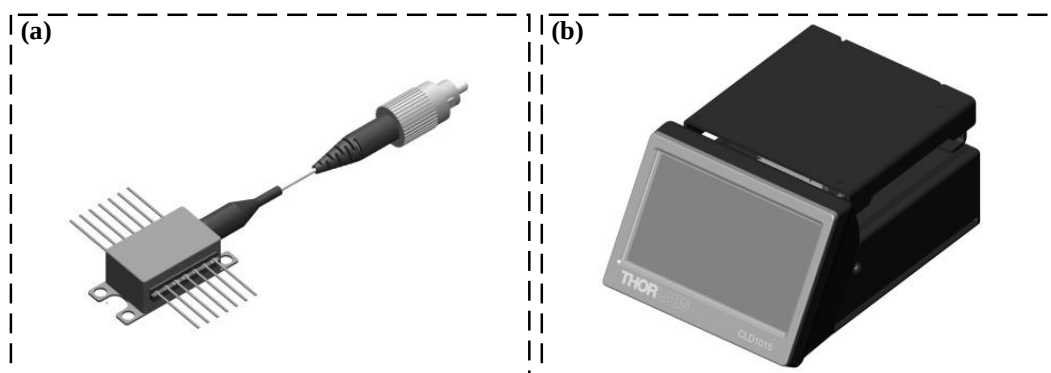


图 3-2 (a) DFB 激光器；(b) 紧凑型激光二极管控制器

为确保激光器发射波长能够有效覆盖目标气体的吸收谱线，实验通过精确调节激光器的驱动电流(20-100 mA 电流范围内)和工作温度，对其波长调谐特性进行了系统分析。波长测量由光谱分析仪(AQ6370D, YOKOGAWA)完成，结果如图 3-3 所示。根据测量的激光器波长调谐特性，确定激光器的工作温度分别为 34℃(CH₄ 检测)和 25℃(C₂H₂ 检测)，并使用三阶多项式对激光器驱动电流与发射波长的关系进行拟合，其数学表达式为：

$$\lambda = a_0 + a_1 \cdot I + a_2 \cdot I^2 + a_3 \cdot I^3 \quad (3-1)$$

式中， λ 为激光器发射波长， I 为激光器驱动电流， a_i 为拟合系数。如图 3-4 所示，多项式拟合曲线与实验数据的相关系数 R^2 均达到了 0.999，表明所建立的模型能够准确表征激光器的波长调谐特性。

在 DAS 气体检测系统中，为实现对吸收谱线积分面积的定量分析，需要将横坐标转换成波数单位。不同于传统方法采用法布里-珀罗(Fabry-Perot, F-P)标准具进行实时光谱校准，本系统基于气体吸收谱线的特征，结合公式(3-1)所建立的激光器驱动电流与发射波长映射关系式以及驱动电流与采样点的线性关系，直接计算出采样点与波长的对应关系，从而实现波数转换。该方法不仅简化了系统结构，降低了硬件成本，还避免了处理标准具信号的复杂性。

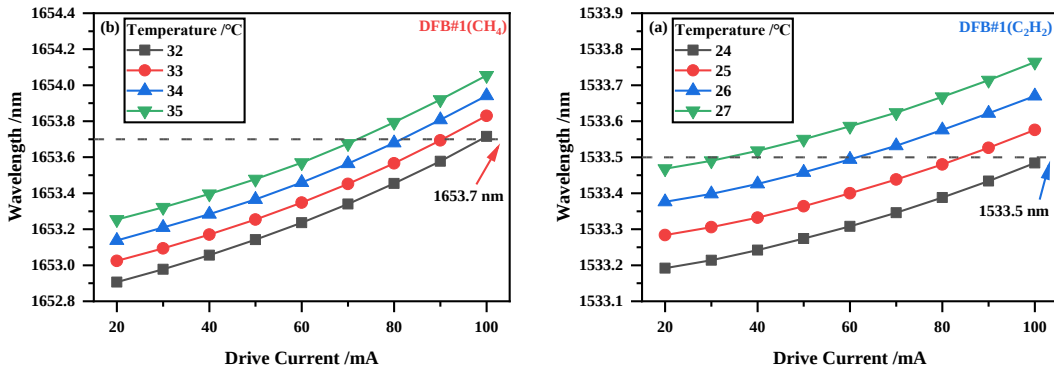


图 3-3 DFB 激光器的波长调谐特性与工作温度和驱动电流的关系

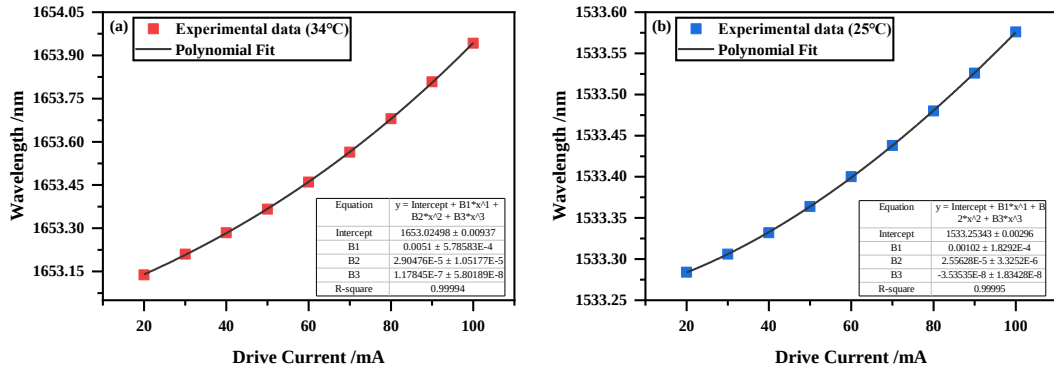


图 3-4 DFB 激光器发射波长与驱动电流的多项式拟合

3.1.3 实验装置系统

所搭建的 CH₄/C₂H₂ 双气体检测系统装置如图 3-5 所示，由光学模块、气体处理模块以及系统控制与数据采集单元三部分构成。光学模块采用控制器对 DFB 激光器的工作温度和驱动电流进行精确控制，以确保激光输出波长和功率的稳定性。激光器输出光束首先经由 2×1 光纤耦合器完成光束耦合，继而通过光纤准直器进行准直操作，形成空间平行光束。在光束传输过程中，通过对准直器入射角和位置的调整，使得光束以最优角度入射至 Herriott 型多通池，进而实现最长的有效吸收光程，有效提高气体的检测灵敏度。光束穿过吸收池后，

经凸透镜聚焦于铟镓砷光电探测器(Photodetector, PD)上, 实现光信号到电压信号的转换。所有光学元件均固定于铝制基板上, 以减少环境振动对光学系统稳定性和探测精度的影响。

气体处理模块包括真空泵、压力控制器、质量流量控制器(Mass Flow Controller, MFC)、针型阀、灰尘过滤器和气体干燥管。MFC 安装于吸收池进气口前端, 其控制精度为 0.1 标准立方厘米每分钟(SCCM), 控制范围为 0.3-1000 SCCM。气体在进入吸收池前需依次经过灰尘过滤器和干燥管, 以防止杂质对吸收池镜面的污染和水汽对测量光谱的干扰。压力控制器连接于吸收池出气口末端, 与真空泵协同工作, 提供压力差以驱动气体流动, 其压力控制精度为 0.1 mbar, 控制范围为 0-1 atm。

系统控制与数据采集单元由计算机(Personal Computer, PC)和数据采集(Data Acquisition, DAQ)卡构成。DAQ 卡通过 USB 接口与 PC 连接, 运行基于 LabVIEW 开发的控制程序, 实现激光器驱动、信号采集和数据分析等功能。实验所采用的主要仪器及其参数详见表 3-2。

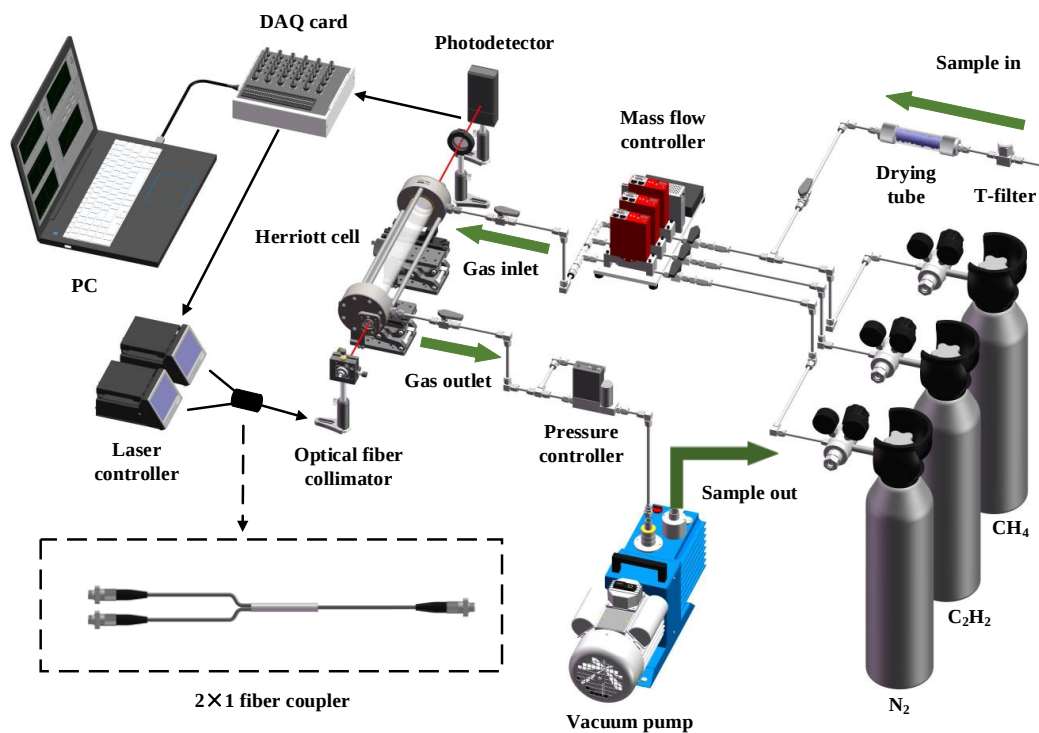


图 3-5 基于近红外 DFB 激光器的双气体检测系统示意图

表 3-2 实验主要仪器性能参数

Instrument Name	Instrument Model	Instrument parameters
DFB Laser	SPEC-PD-094/ SPEC-PD-146	1. Narrow Linewidth: <2 MHz 2. Temperature Tuning: 0.1 nm/°C (typ.) 3. Dynamic Spectral Width: 0.1 nm (typ.)
Laser Controller	CLD1015, Thorlabs	1. TEC current limit setting: 5-3.0 A (1 mA) 2. Working temperature: 0-40°C (0.01°C) 3. Temperature stability (24h typ.): <0.005°C
Herriott Cell	HC30L-M02, Thorlabs	1. Optical Path Length: 31.227±0.02 m 2. Operating Wavelength: 1.5-10 μm 3. Sample Volume: ≈0.85 L
PD	2053-FC-M, Newport	1. Wavelength Range: 900-1700 nm 2. 3-dB Bandwidth: 10 MHz, 5 MHz, 150 MHz
Pressure Controller	PC3-Series, ALICAT	1. Standard Precision: ±0.25% of full scale 2. Stabilized control: 0.01-100% full scale

3.1.4 系统气密性与有效光程分析

为确保低压测量过程中吸收池免受外界气体渗入的干扰，保障气体浓度检测的准确性，本节针对气路的关键区域进行了严格的气密性测试。测试区域涵盖从进气口针型阀至出气口针型阀之间的部分。具体操作步骤如下：首先，关闭进气口针型阀并启动真空泵，持续抽气直至压力控制器显示压力(6.9 mbar)趋于稳定。随后，依次关闭出气口针型阀和真空泵，以防止真空泵停止后外部空气倒灌。测试过程中，以 60 min 为间隔记录压力数据，持续监测系统气密性。测量结果如图 3-6 所示，系统压力在长时间内基本保持稳定，表明该装置具备良好的气密性，能够满足后续精密测量的要求。

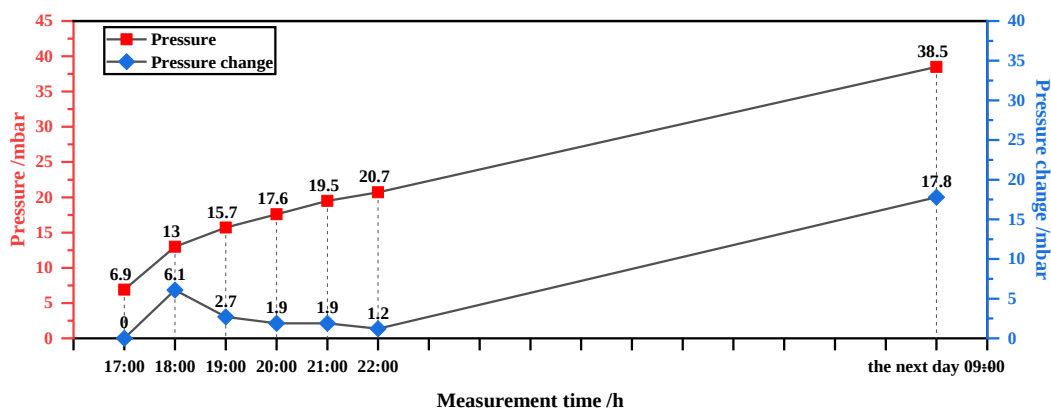


图 3-6 低压条件下(6.9 mbar)系统气密性变化

在有效光程分析方面，依据 Lambert-Beer 定律，吸收池的有效光程是气体浓度检测灵敏度的关键因素。传统的平面型吸收池受限于结构设计，其光程通常仅为厘米量级，即使利用光学反射镜实现光束回折，光程提升也仅约为两倍。为显著提高光程，系统采用了如图 3-7(a)所示的 Herriott 型多通池，通过光束在腔体内的多次反射(最大反射次数为 80 次)实现光程的有效增加。图 3-7(b)展示了 632.8 nm(red)氦氖激光器入射光在吸收池窗口片上形成的光束图案。由于多次反射导致光斑图案暗淡且密集，难以直接通过光斑数量计算光程长度。为准确测定实际有效光程，实验选取 100 ppm 的 CH_4 样品，在不同压力下测量其吸收光谱，计算积分面积，进而根据公式(2-3)确定实际有效光程。结果如图 3-7(c)所示，不同压力下 CH_4 光谱信号的 Voigt 线型函数拟合残差均较小，积分面积线性拟合的相关系数 R^2 为 0.9995，最终确定该吸收池的实际有效光程为 30.50 m。

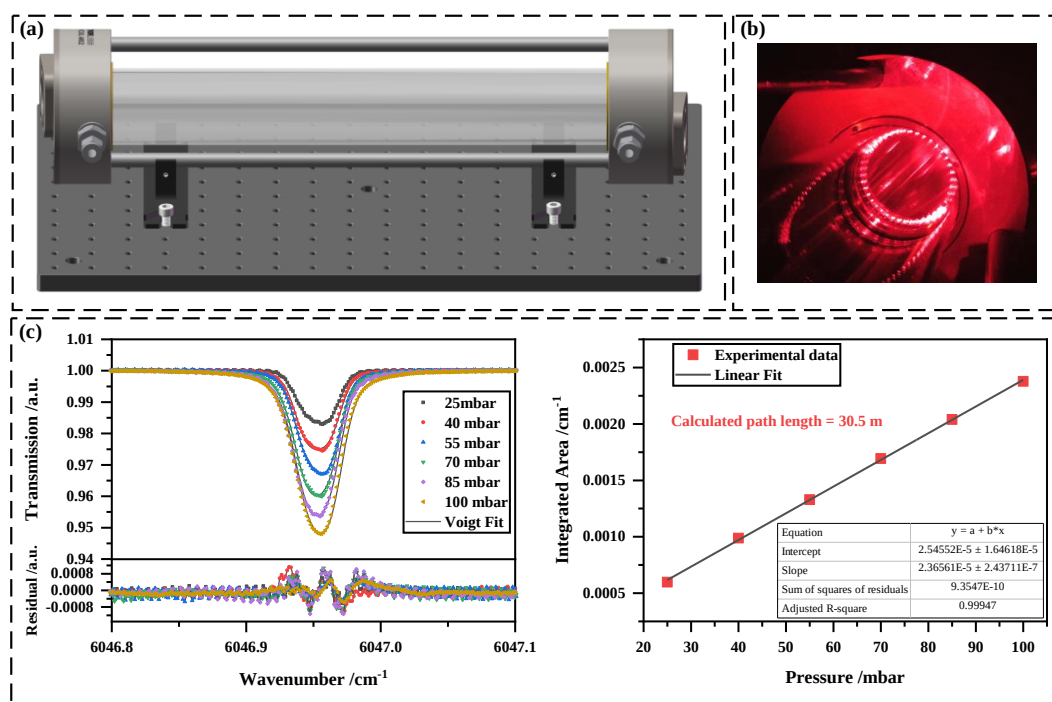


图 3-7 (a) Herriott 型多通池; (b) 反射光斑示意图; (c) 不同压力下 CH_4 测量吸收光谱、Voigt 拟合结果、拟合残差以及压力与吸收光谱拟合积分面积的线性关系

3.2 系统关键技术实现与优化

在基于 DFB 激光器的双气体检测系统中，系统的高精度与高稳定性是实现精确检测的关键。本节将深入探讨系统中关键技术的实现与优化策略。首先，

采用 TDM 对吸收信号进行有效分离以避免信号的交叉干扰；其次，通过基于 PID 反馈控制的波长稳定技术，确保激光器输出波长的长期稳定性；最后，应用 H_{∞} 滤波对光谱数据进行处理以抑制系统噪声，进一步提高气体浓度反演精度。

3.2.1 时分复用技术

为避免多组分气体检测中的时滞效应和测量数据串扰问题，系统采用基于快速扫描信号调制的 TDM 技术，以实现 CH_4 和 C_2H_2 的准同时检测。图 3-8(a) 展示了基于 LabVIEW 生成的模拟信号，用于驱动标记为 DFB#1 和 DFB#2 的两台近红外 DFB 激光器，以及用于同步的触发信号。在两个模拟信号的扫描周期内，通过设定相位差 “ $\Delta T = T/20$ ”，确保激光器扫描范围的独立性。图 3-8(b) 展示了基于 TDM 的双气体检测系统工作时，PD 在完整的扫描周期 T 内采集的吸收信号。进一步地，图 3-8(c) 和 (d) 对比了单激光器独立运行与双激光器协同工作模式下的气体吸光度曲线。结果表明，两种模式下的 CH_4 和 C_2H_2 光谱信号均具有良好的轮廓一致性。因此，基于模拟信号的快速扫描 TDM 可以很好的应用于 DAS 多组分气体检测中，而不会出现光强叠加和气体串扰等问题。

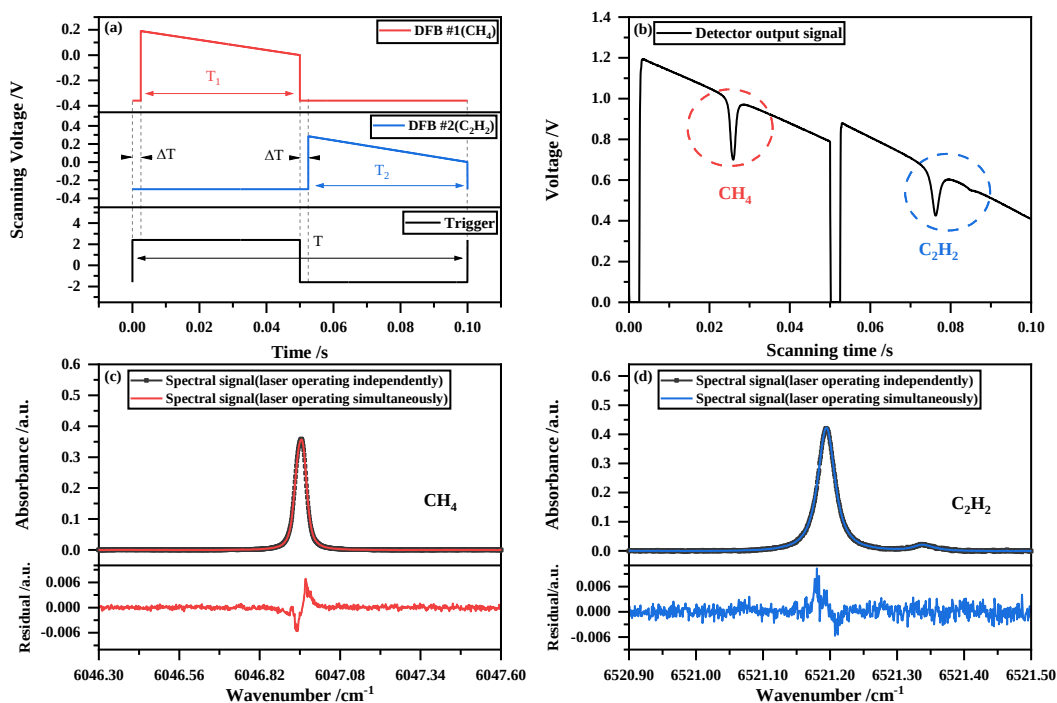


图 3-8 (a) 基于 LabVIEW 生成的模拟信号；(b) 基于 TDM 同时测量 CH_4 和 C_2H_2 的 PD 输出信号；两种 DFB 激光器同时或独立工作时的 (c) CH_4 和 (d) C_2H_2 气体吸光度曲线

3.2.2 基于 PID 反馈控制的波长稳定

气体检测系统的持续有效运行在实际应用中至关重要，而 DFB 激光器温度控制的不稳定性则可能导致光谱信号的横向漂移，并加剧波长非线性效应。图 3-9(a)展示了系统在初始运行阶段采集的吸光度信号(定义为参考信号)与持续运行一段时间后未经额外处理的实时信号(定义为相对信号)。结果显示，二者之间存在明显差异。众所周知，光谱的非线性漂移是影响气体浓度反演精度的重要因素。为此，本章提出了一种基于 PID 反馈控制的波长稳定技术，用以锁定激光波长，其原理如图 3-9(b)所示。该技术以参考信号的中心位置(即吸光度峰值对应的水平坐标)为锁定目标。当实时测量的相对信号中心位置偏离预设值时，系统依据预标定的激光波长-电流关系曲线，通过 PID 算法动态调节激光器调谐电流，从而实现激光波长的闭环控制。同时，为降低随机噪声对峰值定位的干扰，采用 Voigt 非线性拟合方法精确提取相对信号的峰值位置。图 3-9(c)展示了经 PID 控制后的参考信号和相对信号对比结果，结果表明，即使激光器因温度漂移而发生显著波长偏移，不同时间点采集的光谱信号仍能保持高度一致性。

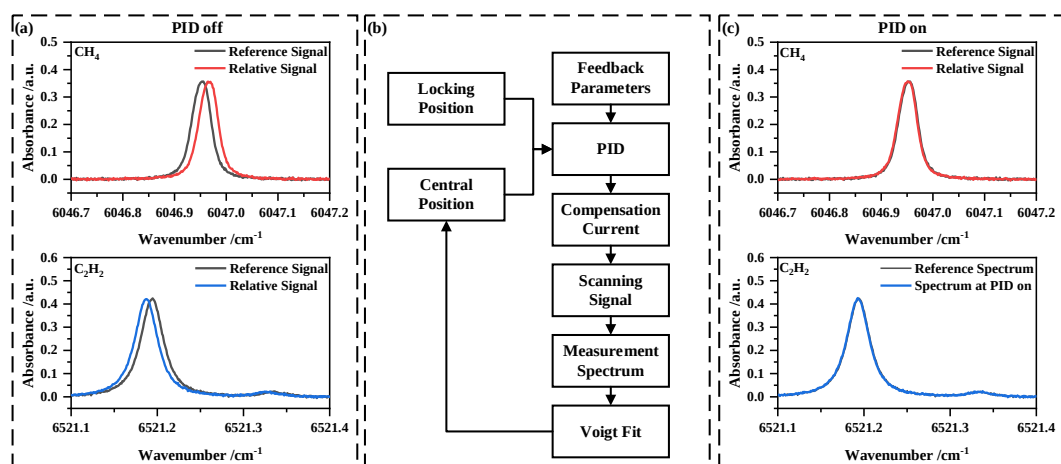


图 3-9 基于 PID 控制的 DFB 激光器波长稳定技术

此外，为进一步验证该技术的稳定性，对两台 DFB 激光器进行了长达 10000 s 的对比测试，结果如图 3-10 所示。在 PID 控制关闭的前 5000 s 内，CH₄ 和 C₂H₂ 的激光波数漂移分别达到 0.011 cm⁻¹ 和 0.0057 cm⁻¹，而在 PID 控制开启后的 5000 s 内，波数波动显著降低，分别仅为 0.0028 cm⁻¹ 和 0.0019 cm⁻¹。由此证明，基于 PID 反馈控制的波长稳定技术能够有效地补偿温度变化对激光器的

影响，通过精确调节工作电流实现波长锁定，从而确保气体检测系统的长期稳定运行。

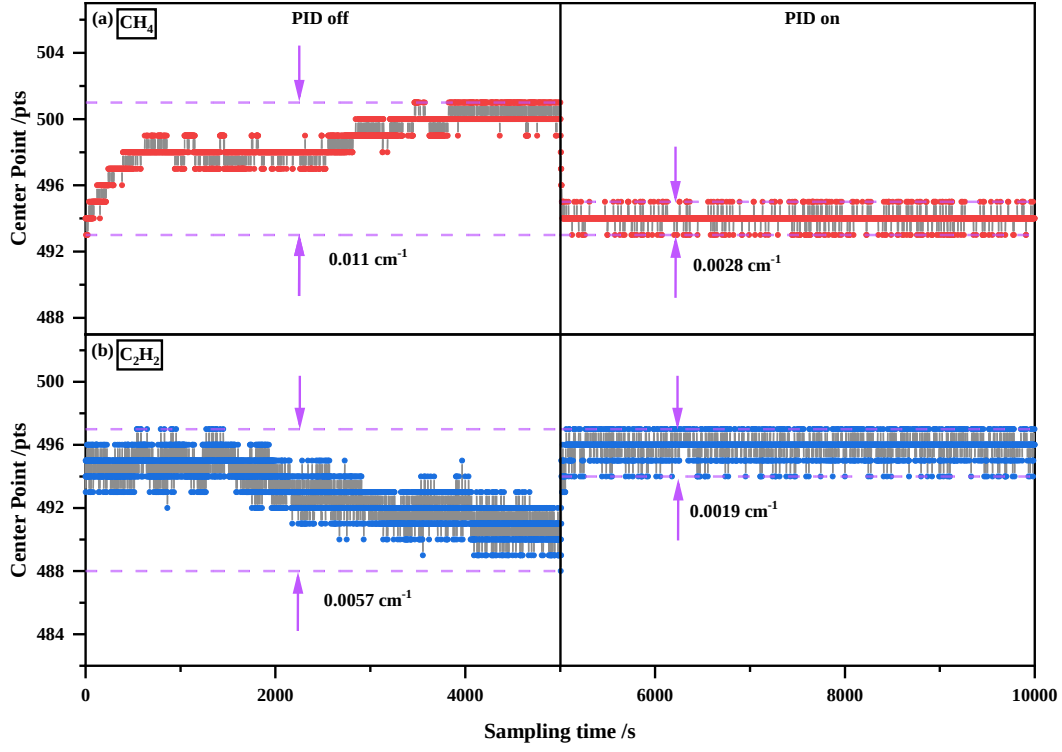


图 3-10 两台 DFB 激光器在不同工作模式下测量的(a) CH₄和(b) C₂H₂吸收中心的位置漂移

3.2.3 H_∞ 滤波

H_∞ 滤波作为一种基于最优化理论的鲁棒状态估计算法，其核心目标在于通过极小化最恶劣干扰场景下的估计误差上界，实现无需依赖噪声先验统计信息的抗干扰性能。相较于传统的 KF，该算法在噪声统计特性未知或动态变化条件下表现出优异的抗模型失配及外部扰动抑制能力。针对激光光谱气体检测系统的滤波问题，其离散非线性动态模型可表述为：

$$x_{k+1} = f(x_k) + w_k \quad (3-2)$$

$$z_k = h(x_k) + v_k \quad (3-3)$$

式中， $x_k \in R^n$ 为光谱状态矢量； $z_k \in R^m$ 为观测矢量。 $f(\cdot)$ 和 $h(\cdot)$ 分别表示系统的动态函数和测量函数。过程噪声 w_k 和测量噪声 v_k 为具有未知的统计特性或非零均值的有限能量信号，即 $\sum_k^N \|w_k\|^2 < \infty$ ， $\sum_{k=0}^N \|v_k\|^2 < \infty$ 。当系统的初始估计协方差矩阵 P_0 、过程噪声协方差矩阵 Q 和测量噪声协方差矩阵 R 达到预设上限

时, H_∞ 滤波算法通过优化策略最小化代价函数。初始估计协方差矩阵 P_0 反映了初始状态估计值 $\hat{x}_0$ 与真实状态 x_0 之间的接近程度。代价函数则通常设计为关于状态估计误差的函数, 其形式可以是误差范数或其他衡量误差大小的函数。作为平衡估计精度的一种手段, 代价函数被控制在特定干扰容限下的预定阈值内, 表示为:

$$J = \frac{\sum_{k=0}^N \|z_k - \hat{z}_k\|_2^2}{\|x_0 - \hat{x}_0\| + \sum_{k=0}^N (\|w_k\|_{Q^{-1}}^2 + \|v_k\|_{R^{-1}}^2)} < \gamma^2 \quad (3-4)$$

式中, γ 为误差衰减参数。 H_∞ 滤波的递推计算流程如下:

$$\hat{z}_{k|k} = l_k \hat{x}_{k|k} \quad (3-5)$$

$$\hat{x}_{k|k-1} = f(\hat{x}_{k-1|k-1}) \quad (3-6)$$

$$P_{k|k-1} = F_{k-1} P_{k-1|k-1} F_{k-1}^T + Q \quad (3-7)$$

$$\hat{x}_{k|k} = \hat{x}_{k|k-1} + K_k (y_k - h(\hat{x}_{k|k-1})) \quad (3-8)$$

$$K_k = P_{k|k-1} H_k^T (R + H_k P_{k|k-1} H_k^T)^{-1} \quad (3-9)$$

$$P_{k|k} = P_{k|k-1} - P_{k|k-1} \begin{bmatrix} H_k^T & L_k^T \end{bmatrix} R_{e,k}^{-1} \begin{bmatrix} H_k \\ L_k \end{bmatrix} P_{k|k-1} \quad (3-10)$$

$$R_{e,k} = \begin{bmatrix} R & 0 \\ 0 & -\gamma^2 I \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} H_k \\ L_k \end{bmatrix} P_{k|k-1} \begin{bmatrix} H_k^T & L_k^T \end{bmatrix} \quad (3-11)$$

式中, F_{k-1} 和 H_k 分别为非线性函数 $f(\cdot)$ 和 $h(\cdot)$ 在 $\hat{x}_{k-1|k-1}$ 和 $\hat{x}_{k|k-1}$ 处的 Jacobian 矩阵。

为系统评估 H_∞ 滤波算法在光谱信号处理中的有效性, 实验首先基于 HITRAN 2022 数据库的标准光谱构建了仿真模型。选取 CH_4 在 $6046.3\text{-}6047.6 \text{ cm}^{-1}$ 波数范围内的透射光谱(温度为 296 K、压力为 150 mbar), 并叠加三类噪声以模拟实际测量环境: (1) 高斯噪声(均值为 0, 标准差为 0.001); (2) 均匀噪声(均值为 0.0025, 标准差 0.0015); (3) 干扰噪声(根据 Airy 函数产生: $\text{Noise} = 1 / [1 + 4R / (1 - R^2) \cdot \sin^2(\delta / 2)]$, 式中 R 为光器件间隙形成的标准镜的反射率, 相位 $\delta = 2\pi nL / \lambda$, n 为光纤中的折射率, L 为光程, λ 为激光器的输出波长)。随后, 通过与传统的 KF 和 WT 滤波进行对比分析, 验证 H_∞ 滤波性能。

图 3-11(a)展示了不同滤波算法对模拟 CH_4 噪声光谱的滤波效果及 SNR 提升情况。SNR 计算公式为:

$$\text{SNR}(\text{dB}) = 10 \log_{10} \left(\frac{\text{std}(\text{signal}_{\text{noise-free}})}{\text{std}(\text{signal}_{\text{noise-free}} - \text{signal}_{\text{denoised}})} \right) \quad (3-12)$$

式中, std 为标准差, $\text{signal}_{\text{noise-free}}$ 和 $\text{signal}_{\text{denoised}}$ 分别为无噪声的模拟标准光谱信号和降噪后的光谱信号。结果表明, 经 H_∞ 滤波处理后, 光谱吸收基线波动得到有效抑制, 吸收峰形态更符合数据库标准光谱。SNR 从初始的 7.6 dB 提升至 13.97 dB, 优于 KF(11.82 dB)和 WT 滤波(12.56 dB)。

此外, 为进一步验证 H_∞ 滤波算法的实用性, 将其集成至气体检测系统。图 3-11(b)展示了 150 mbar 压力下 CH_4 透射光谱的原始测量数据及不同滤波算法的处理结果。实验结果表明, 原始光谱因噪声干扰导致吸收特性模糊, 其 SNR 仅为 11.85 dB, 而经 H_∞ 滤波处理后, SNR 提升至 17.54 dB, 相较于 KF(14.35 dB)和 WT 滤波(16.08 dB)有一定的提升。随后, 通过 Voigt 函数对滤波前后吸收光谱进行非线性拟合, 结果如图 3-11(b)中间面板所示。经 H_∞ 滤波的光谱拟合相关系数 R^2 值达 0.986, 较原始数据($R^2=0.898$)提升了 8.8%, 表明 H_∞ 滤波可有效提高光谱特征的可辨识度。

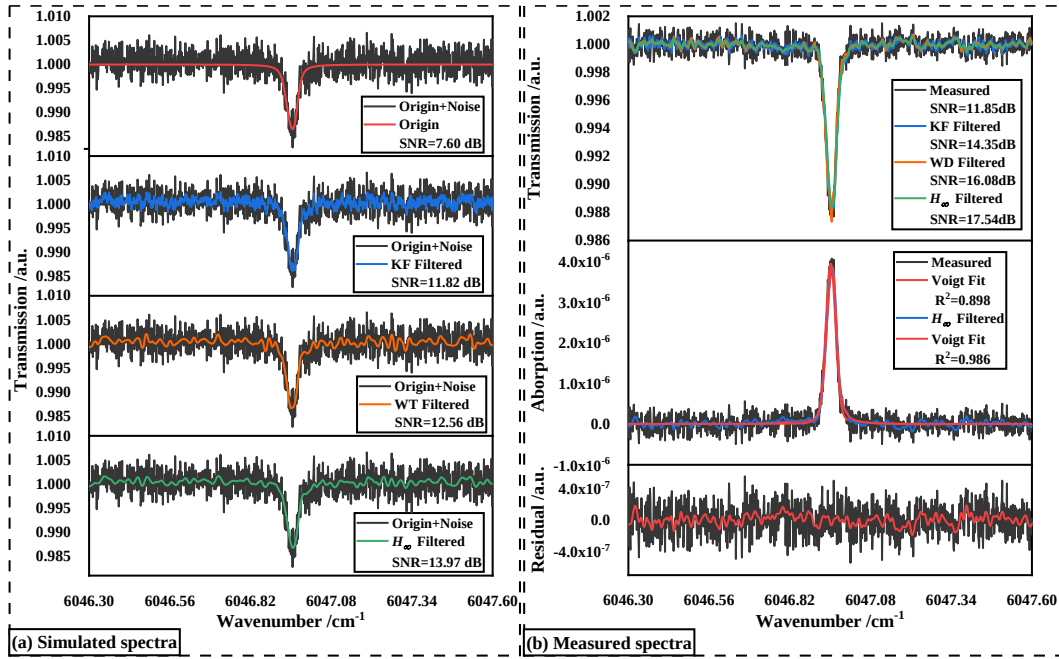


图 3-11 不同滤波算法的滤波效果对比: (a) CH_4 模拟噪声光谱; (b) CH_4 测量光谱

3.3 实验结果与分析

本节内容将重点围绕 $\text{CH}_4/\text{C}_2\text{H}_2$ 双气体检测系统的性能、测量精度以及其在实际应用中的效果等方面进行详细阐述。通过一系列严谨的实验测试与数据分析，全面评估该系统的稳定性、准确性和在实际环境中的有效性。

3.3.1 系统性能测试

在前文所述的系统优化基础上，本节进一步对 $\text{CH}_4/\text{C}_2\text{H}_2$ 双气体检测系统的性能进行了分析。所有实验均在基于 PID 反馈控制的波长稳定模式下进行，并通过 H_∞ 滤波算法对测量数据进行预处理以提高 SNR。需要指出的是， CH_4 分子在 $6046.963576 \text{ cm}^{-1}$ 处的吸收谱线受相邻谱线($6046.95162 \text{ cm}^{-1}$ 和 $6046.94252 \text{ cm}^{-1}$)的叠加效应影响，即使在多普勒展宽效应极小的情况下仍难以实现独立解析。因此，实验采用基于固定多普勒展宽的多峰 Voigt 线型拟合算法对 CH_4 和 C_2H_2 吸光度曲线进行拟合分析，以获得相关的谱线参数。鉴于前期已经证实，基于 TDM 的激光器协同工作中不存在交叉干扰问题，故两种气体分子的性能测试相对独立。

在 CH_4 的定量分析实验中，选用 1% 浓度的 CH_4 标准气体作为待测样品，注入 Herriott 多通池进行检测。图 3-12(a)展示了在 6.8-25.2 mbar 压力范围内 CH_4 吸收光谱的实测数据、Voigt 拟合曲线及拟合残差。依据 Lambert-beer 定律的吸收系数积分表达式，通过计算吸收谱线积分面积与分子数密度和有效光程乘积关系，得到吸收谱线强度。结果如图 3-12(b)所示， CH_4 的三个吸收峰的测量谱线强度分别为 $8.063 \times 10^{-22} \text{ cm/molecule}$ 、 $9.497 \times 10^{-22} \text{ cm/molecule}$ 和 $1.489 \times 10^{-21} \text{ cm/molecule}$ 。与 HITRAN 2022 数据库的参考值对比，相对误差(Relative Error, RE)分别为 2.361%、2.371%和 2.337%。

在浓度响应特性分析方面，通过使用高纯度 N_2 (99.99%)对 CH_4 进行稀释，配置 0-300 ppm 浓度梯度样本。每个浓度记录次数不少于 200 次，结果如图 3-12(c)所示。通过对数据点的平均值进行线性回归分析，建立 CH_4 吸光度与浓度之间的定量关系，如图 3-12(d)所示，其线性相关系数 R^2 达到 0.999。反演浓度与理想响应 $y=x$ 的偏差分布如图 3-12(e)所示。统计分析显示，在测量范围内，

系统的最大检测误差为 4.16%，平均标准偏差为 0.746 ppm，充分验证了气体检测系统对 CH₄ 检测的高准确性。

此外，通过测量 N₂ 与 100 ppm CH₄ 之间的切换响应时间，评估了系统对 CH₄ 的动态响应特性。如图 3-12(f)所示，在气体流量保持在 500 SCCM 的条件下，系统上升时间(T_{10%-90%})约为 11 s，下降时间(T_{90%-10%})约为 12 s。测量结束后，使用 N₂ 对吸收池进行充分吹扫，吸收池内气体浓度迅速降至约 0 ppm，表明测量过程中吸收池中的样品气体可以快速更新且无残留。

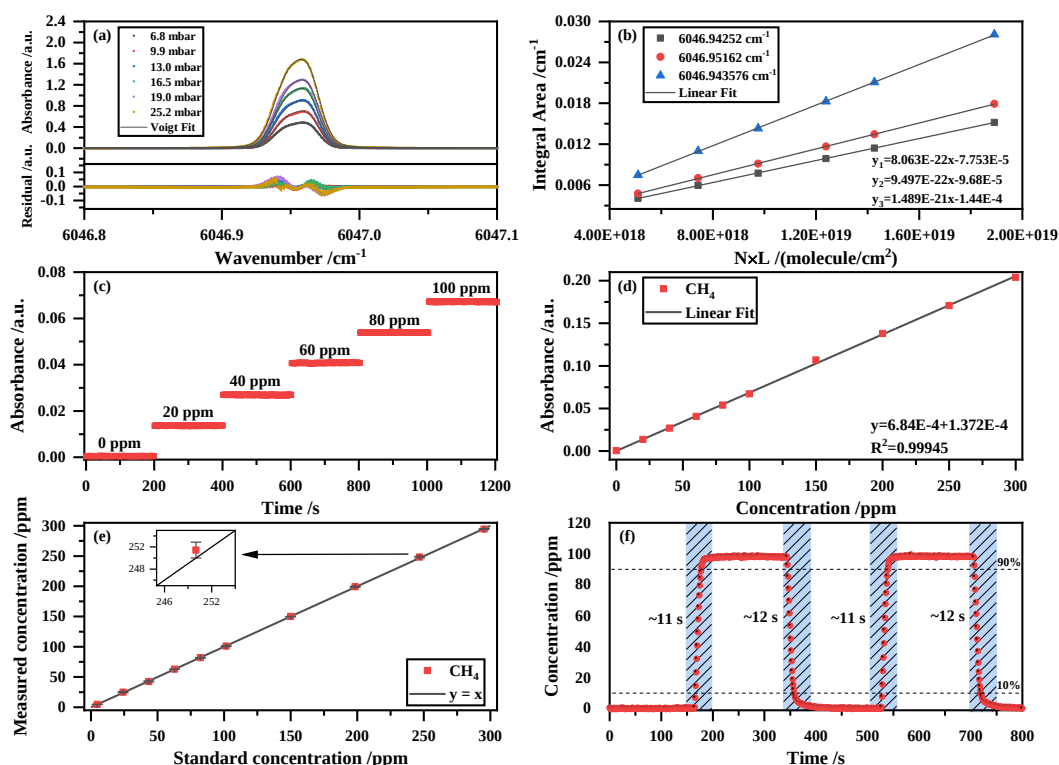


图 3-12 (a) CH₄ 在不同压力下的测量吸收光谱; (b) 积分面积与分子密度和光路长度乘积的线性拟合; 不同浓度梯度下 CH₄ 的(c) 吸光度幅值和(d) 线性回归分析; (e) 标准浓度与测量浓度之间的误差分布; (f) CH₄ 动态响应特性

对于 C₂H₂ 在 6521.195098 cm⁻¹ 处吸收谱线参数的测定，实验在 5.6-17.7 mbar 压力范围内开展。图 3-13(a)和(b)展示了六种不同压力下 C₂H₂ 吸收光谱的实测数据与 Voigt 拟合结果。线性回归分析表明，吸收谱线积分面积与分子密度和有效光程的乘积之间具有高度线性关系(R² 为 0.998)，测得的 C₂H₂ 谱线强度为 3.319×10⁻²¹ cm/molecule，与 HITRAN 2022 数据库参考值相比，RE 为 4.866%，如表 3-3 所示。

在 C_2H_2 浓度响应特性测试中, 同样使用高纯度 N_2 对样品进行稀释。图 3-13(c)展示了在不同浓度水平下的 C_2H_2 浓度梯度曲线。通过线性回归分析, 建立 C_2H_2 吸光度与浓度之间的定量关系, 如图 3-13(d)所示, 其线性相关系数 R^2 为 0.999。图 3-13(e)展示了在 0-450 ppm 范围内, 反演浓度与理想响应 $y=x$ 的偏差分布, 反演结果的最大检测误差为 1.85%。系统对 C_2H_2 的动态响应特性则如图 3-13(f)所示, 对 1500 ppm 浓度跃变的 $T_{10\%-90\%}$ 和 $T_{90\%-10\%}$ 分别约为 13 s 和 30 s。

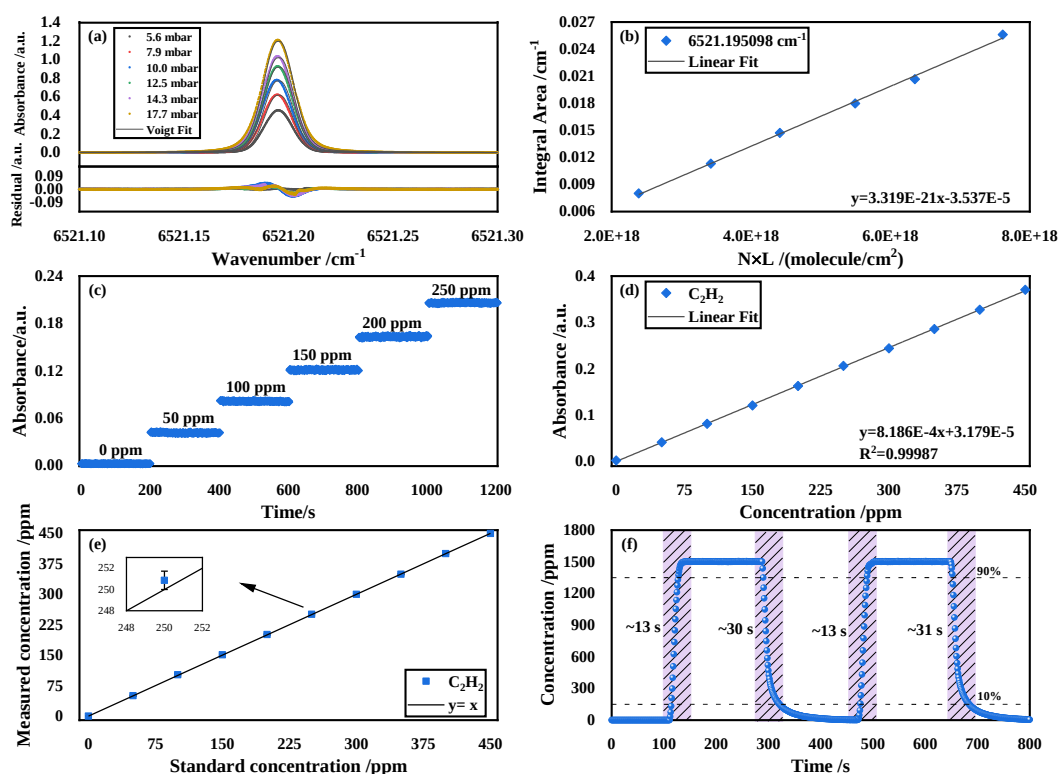


图 3-13 (a) C_2H_2 在不同压力下的测量吸收光谱; (b) 积分面积与分子密度和光路长度乘积的线性拟合; 不同浓度梯度下 C_2H_2 的 (c) 吸光度幅值和 (d) 线性回归分析; (e) 标准浓度与测量浓度之间的误差分布; (f) C_2H_2 动态响应特性

表 3-3 实验测量的 CH_4 和 C_2H_2 吸收谱参数强度与 HITRAN 2022 数据库参考值对比

Species	Position / cm^{-1}	Line intensity /(cm/molecule) @296 K		Error /%
		HITRAN	This work	
CH_4	6046.94252	7.877×10^{-22}	8.063×10^{-22}	2.361
	6046.95162	9.277×10^{-22}	9.497×10^{-22}	2.371
	6046.963576	1.455×10^{-21}	1.489×10^{-21}	2.337
C_2H_2	6521.195098	3.165×10^{-21}	3.319×10^{-21}	4.866

3.3.2 Allan 方差分析

Allan 方差是一种时域噪声分析方法，通过计算相邻时间窗口内测量值的二阶差分，能够有效区分出白噪声、 $1/f$ 噪声和随机游走噪声等不同类型的噪声成分。其数学表达式为：

$$\sigma^2(\tau) = \left[\frac{1}{2(N-1)} \right] \cdot \sum_{k=1}^{N-1} (\bar{y}_{k+1} - \bar{y}_k)^2 \quad (3-13)$$

式中， τ 为积分时间， $\bar{y}_k$ 为第 k 个时间窗口内的浓度测量平均值， N 为时间窗口总数。Allan 方差曲线通常呈现“浴盆”形态：在短积分时间区间主要受白噪声影响，方差随 $\tau^{-1/2}$ 递减；在长积分时间区间则主要受漂移噪声影响，方差随 $\tau^{1/2}$ 递增。曲线最低点对应系统的最佳积分时间与理论检测限。

基于上述原理，本节采用 Allan 方差对 $\text{CH}_4/\text{C}_2\text{H}_2$ 双气体检测系统的检测精度和长期稳定性进行了评估。实验选用 38 ppm CH_4 和 55 ppm C_2H_2 的混合气体作为测试样本，注入 Herriott 多通池中进行持续 40 min 的浓度检测，期间保持吸收池内压力在 150 mbar 左右。实验结果如图 3-14(a)和(b)所示， CH_4 和 C_2H_2 的浓度分别在 35.2-41.24 ppm 和 52.88-57.81 ppm 范围内波动，对应的标准差分别为 0.69 ppm 和 0.64 ppm。进一步地，通过在对数尺度下绘制 Allan 方差与积分时间的关系曲线，结果如图 3-14(c)和(d)所示。在 1 s 的积分时间下，系统的 CH_4 和 C_2H_2 检测精度分别为 0.71 ppm 和 0.64 ppm；而在最佳积分时间 556 s 和 312 s 时， CH_4 和 C_2H_2 的检测极限分别为 39.9 ppb 和 47.3 ppb。

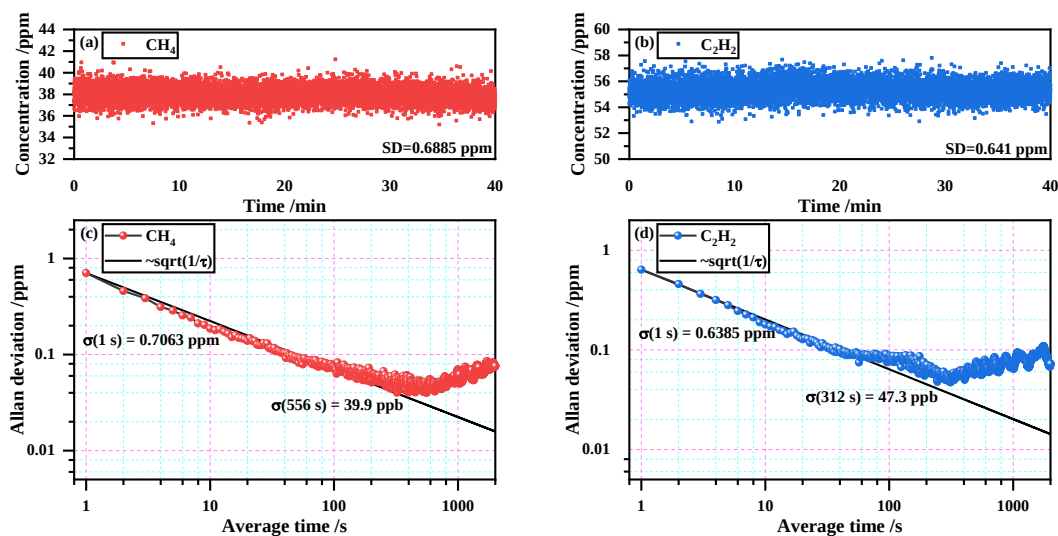


图 3-14 (a) 38 ppm CH_4 和(b) 55 ppm C_2H_2 测量结果；(c) CH_4 和(d) C_2H_2 Allan 方差分析

3.3.3 大气环境 CH₄ 实时测量

最后，将所设计的双气体检测系统部署在校园内，进行为期 31 h 的大气 CH₄ 浓度连续监测，测量时间为 2024 年 5 月 12 日 11:00 至 5 月 13 日 18:00。测量过程中，系统以 500 SCCM 的流量抽取室外空气进入装置。为确保测量的准确性，在进气端设置干燥器和灰尘过滤器，以去除空气中水分和悬浮颗粒物。同时，为了维持实验温度，在超净室内启动空调，以保持温度恒定在约 296 K。系统进气口设置在实验室窗外，距离地面约 10 m 高。图 3-15 展示了测量过程中，获得的 CH₄ 吸收信号、吸收光谱及其浓度变化曲线。结果表明，CH₄ 浓度呈现明显的昼夜波动特征，夜间浓度高于白天。具体而言，CH₄ 浓度在日落后呈现持续上升趋势，并于日出前后达到峰值，随后逐渐下降，至下午时段降至最低值。这种昼夜变化规律主要归因于夜间大气稳定性增加和热对流减弱，从而限制了 CH₄ 的垂直扩散；而日出后温度升高和垂直对流增强，则促进了 CH₄ 的稀释和扩散。在整个测量期间，CH₄ 的浓度波动范围为 1.51-2.91 ppm，平均浓度为 2.01 ppm，与夏季芜湖市大气中 CH₄ 的平均浓度基本一致。

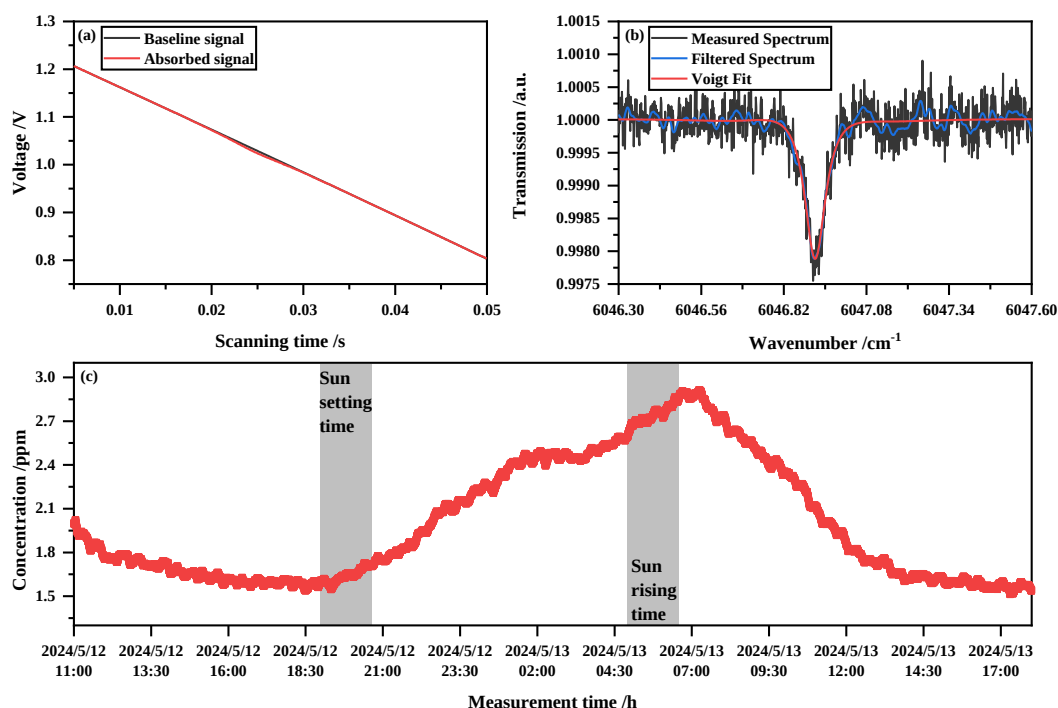


图 3-15 (a) 测量的大气 CH₄ 吸收信号；(b) 测量的大气 CH₄ 吸收光谱与 Voigt 拟合；(c) 2024 年 5 月 12-13 日室外空气中的 CH₄ 测量结果

3.4 本章小结

本章介绍了一种基于 TDM 和 DAS 的紧凑型 $\text{CH}_4/\text{C}_2\text{H}_2$ 双气体检测系统。该系统采用基于 PID 反馈控制的波长稳定技术，有效抑制了 DFB 激光器因温度控制波动而造成的激光波长漂移问题。同时，结合 H_∞ 滤波算法显著降低了系统噪声干扰。实验结果表明，系统测得的气体吸收谱线强度与 HITRAN 数据库中参考值的相对误差均低于 5%。并通过 Allan 方差分析得出，在 1 s 的积分时间下， CH_4 和 C_2H_2 的检测精度分别为 0.71 ppm 和 0.64 ppm；而在最佳积分时间 556 s 和 312 s 时， CH_4 和 C_2H_2 的检测极限分别为 39.9 ppb 和 47.3 ppb。最后，应用该系统对大气中 CH_4 浓度进行 31 h 连续监测，测量结果清晰地展示了 CH_4 浓度的昼夜变化特征。

第 4 章 基于神经网络的 DAS 气体检测系统性能提升研究

在基于 DAS 技术进行气体浓度精确测量时，确保光谱信号的无失真分析处理与谱线参数精确反演至关重要。传统的浓度反演方法，如吸光度积分法 (Absorbance Integration Method, AIM)，通常采用 Voigt 线型函数对吸光度曲线进行拟合，并通过计算频域积分面积来反演气体浓度。然而，目前 Voigt 线型函数的近似表达式仍存在处理高压环境或弱吸收信号时表现不佳的情况，导致 AIM 测量精度和适用性存在明显的局限性。

近年来，人工智能技术的快速发展为气体检测技术提供了新的思路。在光谱信号滤波方面，卷积神经网络(Convolutional Neural Networks, CNN)^[81]凭借其局部特征提取能力，可有效提取光谱数据中的关键吸收特征，并抑制高斯白噪声等静态噪声干扰。然而，由于 CNN 缺乏时序建模能力，其在处理动态噪声(如系统漂移、光源波动等)和复杂噪声环境时的仍存在一定局限性。双向长短期记忆神经网络(Bi-directional Long Short-Term Memory, BiLSTM)作为一种专门建模时序依赖关系的深度学习架构，通过双向时序信息传递机制，可有效捕捉光谱信号中由环境扰动引起的动态变化特征。通过融合 CNN 与 BiLSTM，即可保留 CNN 对局部吸收特征的敏感性，又能利用 BiLSTM 的时序依赖建模能力，从而实现在复杂噪声环境下的高效滤波。在气体浓度预测方面，反向传播神经网络(Back Propagation, BP)^[82]因其强大的非线性映射能力，可处理复杂的光谱特征。然而，BP 易陷入局部最优解，且对噪声扰动鲁棒性不足。自适应增强 (Adaptive Boosting, AdaBoost)算法作为一种集成学习算法，通过训练多个弱学习器并加权组合成强学习器，能够有效提升模型的泛化能力。基于 AdaBoost 算法改进 BP(BP-AdaBoost)，通过集成多个 BP 并优化权重分配策略，可进一步增强模型的泛化能力和鲁棒性。

基于上述分析，本章提出了一种由神经网络滤波器(Neural Network Filter, NNF)和网络浓度预测器(Network Concentration Predictor, NCP)组成的气体分析模型，应用于 CH₄ 气体检测系统，以实现噪声光谱数据中 CH₄ 吸收信息的高效提取及浓度预测。其中，NNF 结合了 CNN 和 BiLSTM 用于光谱信号的滤波处理；

NCP 则集成了主成分分析(Principal Component Analysis, PCA)和 BP-AdaBoost 用于 CH_4 浓度的精确预测。为了验证模型性能,实验分别基于理论模拟光谱数据和实际测量光谱信号对其进行了详细分析。

4.1 基于神经网络气体分析模型增强的 CH_4 气体检测系统

图 4-1 展示了基于神经网络气体分析模型增强的近红外 CH_4 气体检测系统整体结构。该系统在传统 DAS 气体检测系统的基础上,集成了 NNF 和 NCP。首先,通过 NNF 对传感器采集的原始光谱数据进行滤波处理,以提高光谱信号质量;随后,利用 NCP 实现吸收光谱到气体浓度的非线性映射,最终输出高精度的气体浓度预测值。本节将依次介绍检测系统配置、NNF 与 NCP 模型结构以及数据集的构建与模型训练策略。

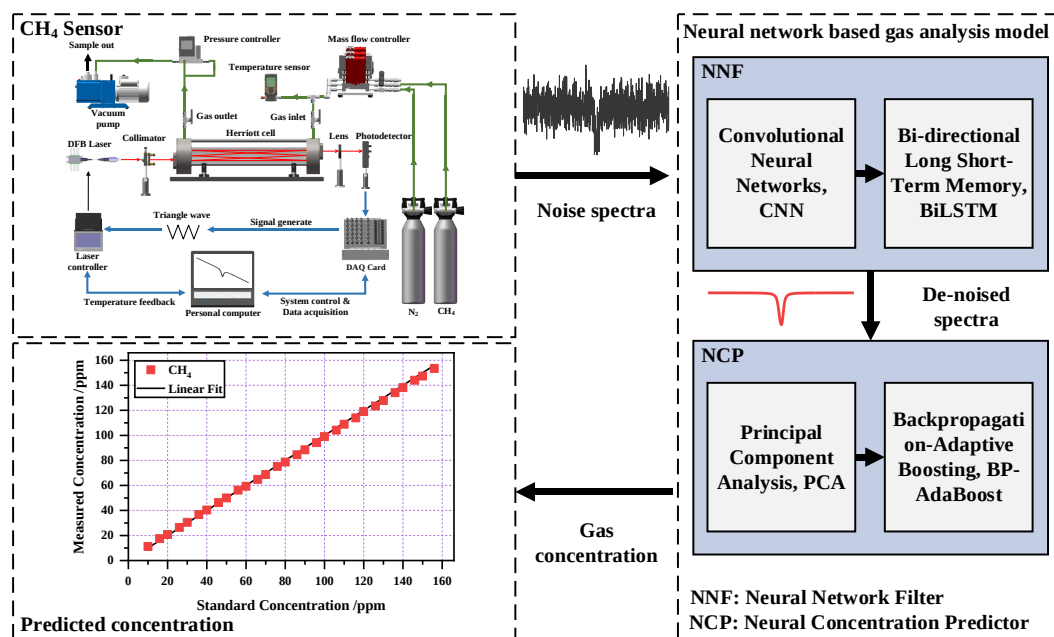


图 4-1 基于神经网络气体分析模型增强的近红外 CH_4 气体检测系统

4.1.1. 检测系统配置

图 4-2 展示了近红外 CH_4 气体检测系统的装置示意图。系统采用 DFB 激光器作为光源,其中心波长为 1653.72 nm ,由高精度紧凑型激光二极管驱动器控制其工作温度(34°C)和驱动电流($67.4\text{--}97.8\text{ mA}$),实现 $6046.3\text{--}6047.6\text{ cm}^{-1}$ 的连续波数调谐范围。在光束传输过程中,通过调整准直器的入射角和位置,使输出

光束以最佳位置和角度入射至 Herriott 多通池，实现 30.50 m 的有效吸收光程。出射光离开吸收池后，经焦距为 30 mm 的凸透镜聚焦至 PD，转换为电压信号，随后由 DAQ 卡收集并传输至 PC 完成后续处理。实验气体样本由两台 MFC 分别控制 1% 标准浓度 CH_4 和高纯度 N_2 的流量进行精确配比，而吸收池内压力则通过压力控制器进行实时调节与稳定。

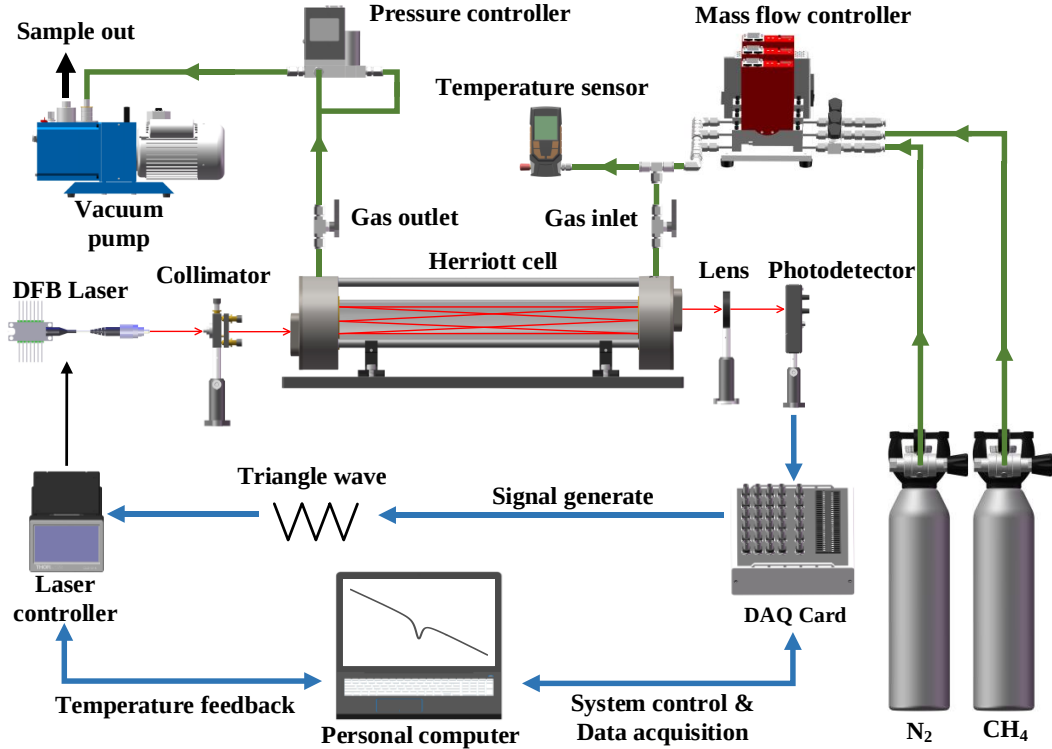


图 4-2 DAS 气体检测系统示意图

4.1.2. 神经网络滤波器

所提出的神经网络滤波器结构如图 4-3 所示，结合了 CNN 和 BiLSTM，旨在建立输入噪声光谱与其对应去噪光谱之间的映射关系。为了更好的提高气体检测系统在检测过程中的准确性和稳定性，对模型结构和超参数经过不断调整以达到最优。NNF 首先利用一维卷积层(one-dimensional convolutional layer)从输入的噪声光谱中提取关键特征。卷积层共有 64 个可学习的卷积核(convolution kernel)，每个卷积核根据特定的步长对该层的输入特征图进行局部卷积操作，产生相应的特征图。接着经过批量归一化层(batch normalization layer)对卷积层的输出进行标准化处理，以减小不同批次训练数据之间的偏差，防止梯度消失

或爆炸，并加快模型的收敛速度。ReLU(Rectified Linear Unit)激活层通过引入非线性特征，提高模型的表达能力和泛化能力。池化层(pooling layer)则通过下采样对特征进行压缩，减少模型参数和计算量的同时保留输入的重要信息。

在特征提取完成后，光谱数据通过 BiLSTM 层进行进一步处理。BiLSTM 层由前向和后向 LSTM 层组成，每个 LSTM 层各自包含 256 个隐藏单元，通过双向结构，BiLSTM 可以有效融合时间序列的正向和反向信息，从而更好地捕捉光谱信号的动态变化。LSTM 作为一种特殊类型的循环神经网络，通过引入细胞状态机制，将多个记忆单元按时间顺序连接成链式结构。在串联结构中，短时记忆的传递是有相邻细胞的隐藏状态依次进行传递的，长时记忆则通过贯穿整个网络的信息链来实现时间信息传递。每个 LSTM 单元包含三个关键的门控机制：遗忘门、输入门和输出门。遗忘门是信息筛选的第一步，用于确定先前的细胞状态中应被遗忘的信息量。通过 sigmoid 激活函数对前一个隐藏状态 h_{t-1} 和当前输入 x_t 进行运算，得到上一层细胞状态被遗忘的概率，即：

$$f_t = \sigma(W_f \cdot [h_{t-1}, x_t] + b_f) \quad (4-1)$$

式中， W 为前次输出和当前输入的权重； b 为偏置向量； σ 为 sigmoid 函数。

输入门负责当前单元的更新。其过程分为两步：首先，通过 sigmoid 函数决定细胞状态更新程度 i_t ，其次，通过 tanh 函数产生新的候选值向量 C_t ，即：

$$i_t = \sigma(W_i \cdot [h_{t-1}, x_t] + b_i) \quad (4-2)$$

$$C_t = \tanh(W_c \cdot [h_{t-1}, x_t] + b_c) \quad (4-3)$$

细胞状态的更新则通过遗忘门的输出 f_t 和输入门的输出 i_t 进行计算，表示为：

$$C_t = f_t \cdot C_{t-1} + i_t \cdot C_t \quad (4-4)$$

输出门用于控制当前单元的输出信息。首先通过 sigmoid 函数对前一个隐藏细胞状态 h_{t-1} 和当前输入 x_t 进行操作得到一个 $[0,1]$ 区间取值的 o_t ，接着，将细胞状态 C_t 通过 tanh 函数处理后与 o_t 相乘，得到最终的隐藏状态 h_t ，即：

$$o_t = \sigma(W_o \cdot [h_{t-1}, x_t] + b_o) \quad (4-5)$$

$$h_t = o_t \cdot \tanh(C_t) \quad (4-6)$$

最后，通过全连接层(fully connected layer)对提取的特征进行整合，生成相应的滤波光谱。

在模型的训练过程中，采用梯度下降法逐步求解，以最小化损失函数并优化模型的参数。均方误差函数(Mean Squared Error, MSE)作为损失函数，其表达式为：

$$MSE = \frac{1}{m} \sum_i^m (y(i) - \hat{y}(i))^2 \quad (4-7)$$

式中， i 为光谱数据点对应的索引， $y(i)$ 为NNF在第 i 位置的预测透射值， $\hat{y}(i)$ 为第 i 位置的透射值。为了加速优化过程并避免陷入局部最小值，模型采用Adam优化器($\beta_1=0.9$, $\beta_2=0.999$)进行参数更新。初始学习率设置为0.001。模型最终在500个epoch中收敛。

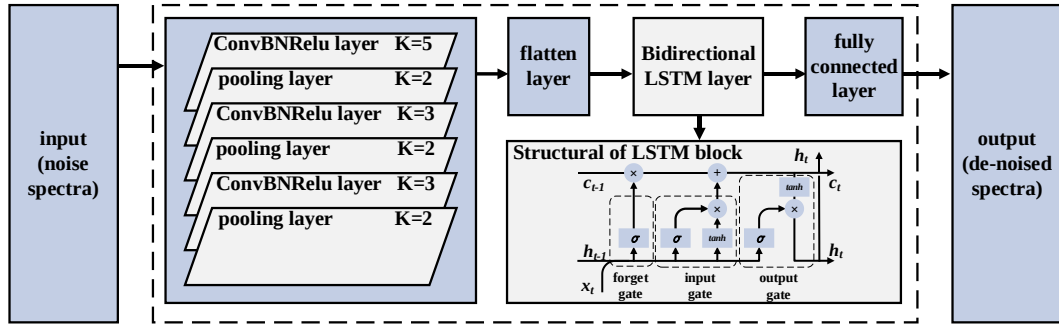


图 4-3 神经网络滤波器的结构示意图(ConvBNRelu 层是由一维卷积层、批量归一化层和 Relu 层组成的复合层)

4.1.3. 网络浓度预测器

所提出的网络浓度预测器结构如图 4-4 所示。对于 NCP，输入数据为经过 NNF 滤波处理后的透射光谱 $X \in R^{1000 \times 1}$ ，输出数据为最终的目标气体浓度信息。每个光谱由 1000 个维度的向量表示，这种高维度特性不仅会增加计算复杂度，还可能影响模型的整体性能。为此，NCP 首先采用 PCA 对光谱数据进行降维处理。PCA 通过线性变换将高维数据投影到低维空间，在保留关键信息的同时，有效压缩原始光谱的维度，从而降低光谱数据映射到对应浓度的函数复杂度。

然而，仅靠降维处理并不足以确保模型在气体浓度预测任务中表现出色。传统的 BP 神经网络虽然在非线性映射方面表现优异，能够逼近任意连续函数，

但其也存在一些明显的局限性。首先，BP 神经网络的训练过程依赖于梯度下降法，这使得网络容易陷入局部最优解。其次，BP 神经网络对噪声和异常值较为敏感，这种敏感性会导致模型的泛化能力受到限制，进而影响实际应用中的效果。为此，NCP 进一步引入 AdaBoost 算法以改进 BP 神经网络。AdaBoost 算法作为一种集成学习算法，其核心思想是在迭代过程中重点关注预测误差较大的样本，并在每次迭代中根据当前弱学习器的表现动态调整样本权重。具体而言，预测误差较大的样本在下一次迭代中被赋予更高的权重，以确保后续的弱学习器更加关注这些难以预测的样本。此外，AdaBoost 算法为每个弱学习器计算权重，该权重反映了该弱学习器的整体预测误差。在最终组合成强预测器时，表现较好的弱学习器将占据更重要的位置。BP-AdaBoost 结合了 BP 神经网络的非线性建模能力与 AdaBoost 算法的集成学习优势，通过集成多个弱学习器(BP 神经网络)，形成一个强学习器，从而提高气体浓度的预测精度和稳定性，具体步骤如下：

(1) 初始化样本权值。对 m 个训练样本的权值分布进行初始化，每个样本的权值均初始化为 $w_i = 1/m$ ，得到训练集的权值分布：

$$D_1(i) = (w_1, w_2, \dots, w_m), (t = 1, 2, 3, \dots, T) \quad (4-8)$$

式中， T 为迭代的次数，即 BP 神经网络的个数。

(2) 训练 BP 神经网络。根据当前样本的权值分布，训练 BP 神经网络 N_t 进行气体浓度预测。计算训练集中每个样本的预测误差 e_t 以及相应的总体误差

$$e_t = \frac{1}{m} \sum_{i=1}^m e_i。$$

(3) 调整权重。更新样本权值分布 $D_t(i) = \frac{D_{t-1}(i)\beta_t^{-e_i}}{Z_t}$ 和弱学习器权重

$$W_t = \frac{1}{2} \ln\left(\frac{1}{\beta_t}\right)，其中 \beta_t = \frac{e_t}{1-e_t}，Z_t 是使 \sum_{i=1}^m D_t = 1 的归一化因子，确保权重的正$$

确更新。

(4) 组合学习器。持续迭代直到达到预设的迭代次数 T ，最后，通过加权组合多个 BP 神经网络，形成强学习器：

$$H = \sum_{t=1}^T W_t \cdot N_t \quad (4-9)$$

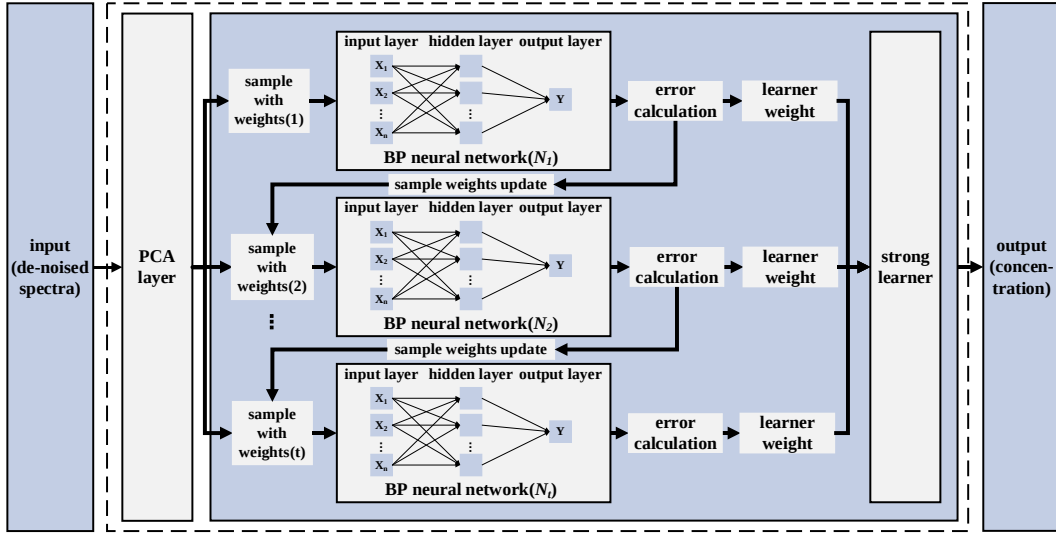


图 4-4 网络浓度预测器的结构示意图

4.1.4. 数据集构建与模型训练

众所周知，神经网络模型的泛化能力和预测精度高度依赖于训练数据集的质量和数量。然而，对于 DAS 系统而言，通过实验获取足够的样本以满足神经网络训练的需求是耗时且繁重的过程。同时，实验过程中由于噪声等因素的干扰，实时测量的气体透射光谱中吸收峰位置通常会出现细微的波动。鉴于神经网络模型的有效训练需要从大量样本数据中提取共同特征，生成与目标数据分布相同的大规模模拟数据作为训练集已成为解决深度学习领域数据稀缺问题的有效途径。基于此，本节利用 HITRAN 2022 数据库，在实验条件下以 0.5 ppm 为步长，模拟了浓度范围为 0.5-500 ppm 的 CH₄ 透射光谱，具体参数详见表 4-1。为了增强模拟数据与实际信号的一致性，在生成的干净模拟透射光谱中叠加了高斯噪声、均匀噪声和干涉噪声。

在模型训练方面，实验采用分阶段训练策略，每个阶段分别使用不同幅度噪声的数据集。第一阶段，使用高幅值噪声透射光谱作为输入数据，对应的干净透射光谱作为目标输出，训练 NNF 以学习噪声抑制特性。第二阶段，使用低幅值噪声透射光谱作为输入数据，对应的气体浓度值作为目标输出，训练 NCP 以实现精确的浓度预测。利用两个训练数据集可以保证目标数据与训练数据的

相似性，提高气体浓度预测的精度和准确性，两个数据集分别包含了 1000 个模拟光谱信号，其中 80%的数据集作为训练集，20%的数据用于验证模型性能。模拟得到的噪声透射光谱和三种类型的噪声如图 4-5 所示。

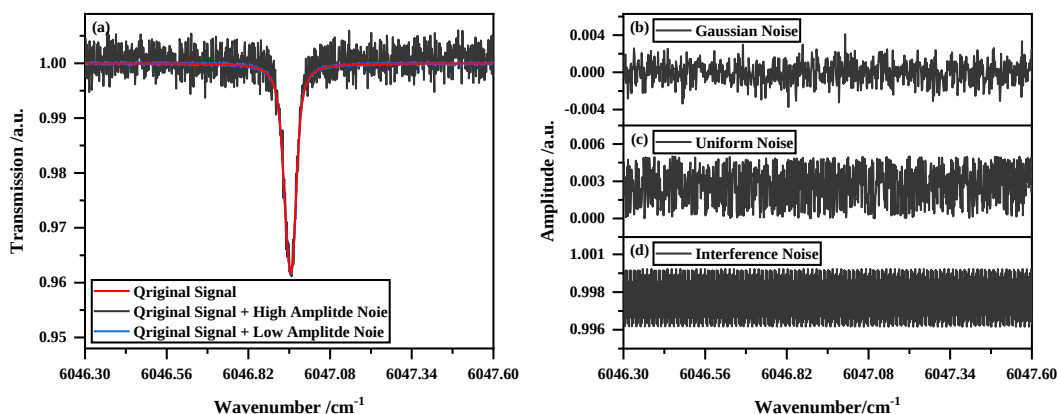


图 4-5 (a) 用于构建数据集的模拟甲烷透射光谱；(b) 高斯噪声；(c) 均匀噪声；(d) 干涉噪声

表 4-1 模型训练集参数

Concentration / ppm	Wavenumber / cm ⁻¹	T / K	P / mbar	L / m	Sample Size	Sample Point
0-500 (0.5)	6046.3-6047.6	296	200	30.50	1000	1000

4.2 实验结果与分析

本节将系统评估所提出的基于神经网络的气体分析模型在模拟数据和实测数据上的性能表现，并分析其在 CH₄ 气体检测系统中的实际应用效果。具体而言，首先基于 HITRAN 数据库生成的模拟光谱数据，对模型在滤波处理及浓度预测方面的精度和稳定性进行了对比分析；其次，利用实测光谱数据，验证了模型在实际复杂环境中的鲁棒性与泛化能力；最后，将优化后的模型集成至气体检测系统，对其在长时间连续运行状态下的稳定性进行了系统性评估。

4.2.1. 模拟数据的模型性能分析

作为气体分析模型的重要组成部分，NNF 的滤波性能与多种广泛使用的数字滤波算法在模拟数据上进行了对比。实验采用 SNR 和均方根误差(Root Mean Square Error, RMSE)作为滤波性能的定量评估指标，其中 RMSE 的计算公式表述为：

$$RMSE = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (signal_{noise-free} - signal_{denoised})^2} \quad (4-10)$$

式中， $signal_{noise-free}$ 和 $signal_{denoised}$ 分别表示无噪声的模拟标准光谱信号和降噪后的光谱信号。以初始 SNR 为 3.856 dB 的模拟 CH₄ 透射光谱为代表样本，图 4-6 直观展示了不同滤波算法的处理效果，表 4-2 则详细汇总了对应的 SNR 和 RMSE 的具体数值。实验结果表明，MAF 和 S-G 滤波性能相对有限，滤波后光谱 SNR 分别为 8.502 dB 和 8.746 dB，RMSE 分别为 8.8136×10^{-4} 和 8.4379×10^{-4} 。KF 虽然将 SNR 提高至 9.213 dB，RMSE 降低至 7.827×10^{-4} ，但噪声残留仍然明显，导致吸收峰出现畸变。相较之下，WT 滤波则表现较优，尽管原始光谱存在一定程度的失真，但经过 WT 滤波处理后 SNR 提高至 10.821 dB，RMSE 降低至 7.827×10^{-4} 。而所提出的 NNF 则展现出最优的滤波性能，其处理后的光谱 SNR 达到了 25.23 dB(相较于原始光谱提升了 21.374 dB)，RMSE 降低至 1.1103×10^{-5} 。NNF 的优越性能归因于其独特的网络结构：首先，CNN 能够有效提取光谱数据的局部特征，这对于分辨紧密交织的噪声和有用信号尤为关键；其次，BiLSTM 通过综合考量时间序列中的前后信息，使模型能够更准确地预测并重构信号的动态变化，从而在抑制噪声的同时，尽可能的保留了光谱数据的重要特征。

表 4-2 比较不同滤波算法获得的滤波信号 SNR 和 RMSE。

Filtering Method	SNR /dB	RMSE
Noise signal	3.856	2.2881×10^{-3}
MAF	8.502	8.8136×10^{-4}
S-G	8.746	8.4379×10^{-4}
KF	9.213	7.827×10^{-4}
WT	10.82	6.2079×10^{-4}
NNF	25.23	1.1103×10^{-5}

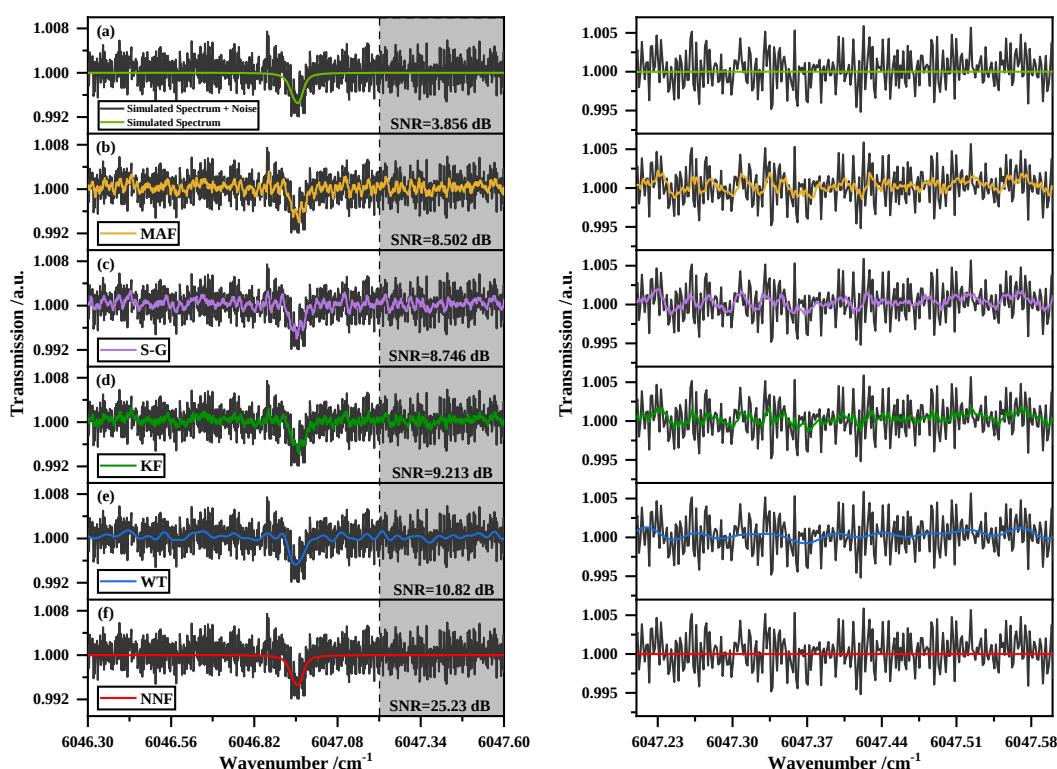


图 4-6 不同滤波算法的滤波效果对比(背景由高斯噪声、均匀噪声和干涉噪声组成)

在浓度反演性能评估方面，将 NCP 与传统的 AIM 和标准 BP 神经网络进行对比分析。结果如图 4-7(a)所示，三种方法测得的浓度值与理论值均具有良好的线性关系和一致性，线性拟合相关系数 R^2 均超过 0.98。然而，通过图 4-7(b)的误差分析可以看出，NCP 在测量精度方面具有明显优势，其平均绝对误差(Mean Absolute Deviation, MAE)和平均相对误差(Mean Relative Error, MRE)分别仅为 1.32 ppm 和 3.19%，较 AIM(MAE=3.00 ppm, MRE=5.50%)和 BP(MAE=3.11 ppm, MRE=8.59%)均有明显降低。传统 AIM 的局限性主要受限于其物理模型依赖性，需要经历透射光谱到吸光度光谱的转换、Voigt 线型函数拟合以及频域积分面积计算等多步骤反演过程，这一过程不可避免地引入了系统误差和计算误差；标准 BP 神经网络虽然避免了物理模型假设，但受制于梯度下降优化算法的局部收敛特性，在高维复杂损失函数空间中容易陷入局部最优解，从而导致泛化能力不足。相较之下，NCP 在 BP 神经网络的基础上引入了 PCA，有效降低了输入数据的维度和冗余特征，简化了浓度预测过程；此外，通过结合 AdaBoost 算法对多个 BP 神经网络进行集成，进一步提升了模型对训练数据的适应性和对测试数据的预测准确性，增强了模型在复杂多变环境中的鲁棒性和稳定性。

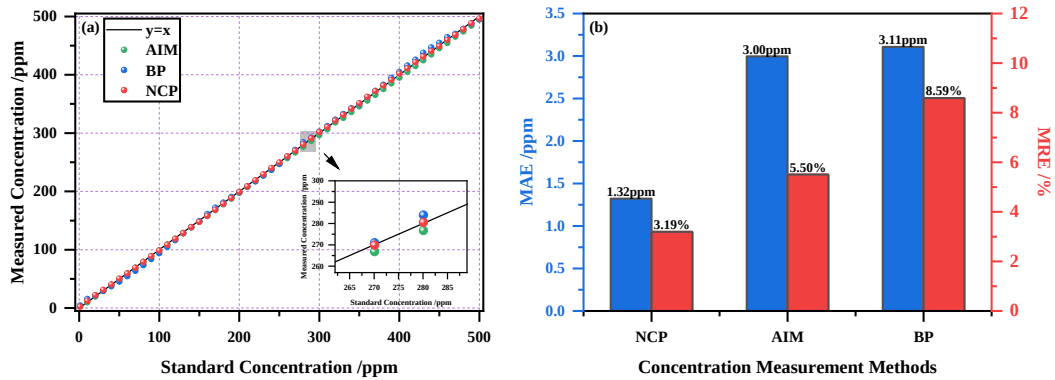


图 4-7 基于不同方法的 CH_4 模拟数据浓度反演结果对比

4.2.2. 实验结果的模型性能分析

为进一步验证 NNF 在实际实验条件下的滤波性能，本节基于实验数据对其进行了详细的对比分析。图 4-8 展示了在温度为 296 K，压力为 200 mbar 条件下，4.5 ppm CH_4 的测量透射光谱以及经过不同滤波算法处理后的光谱数据。分析结果表明，传统数字滤波算法(MAF、S-G 滤波、KF 和 WT 滤波)在噪声抑制方面效果有限，滤波后的光谱非吸收基线区域仍残留大量噪声，且在气体吸收峰位置存在明显偏差。这无疑会大大降低吸收光谱的识别和拟合精度，进而影响浓度反演的精度和稳定性。相比之下，NNF 则展现出优越的滤波性能，显著平滑了原始噪声光谱，尤其在非吸收基线区域，噪声波动几乎消失，信号表现得十分平稳，光谱 SNR 从初始的 12.039 dB 提升至 31.093 dB(提高约 2.58 倍)。同时，滤波后的光谱拟合相关系数 R^2 达到 0.999，表明滤波后的吸收光谱与理论形状高度吻合。这一结果充分证明了 NNF 在实际应用中的优越性能。

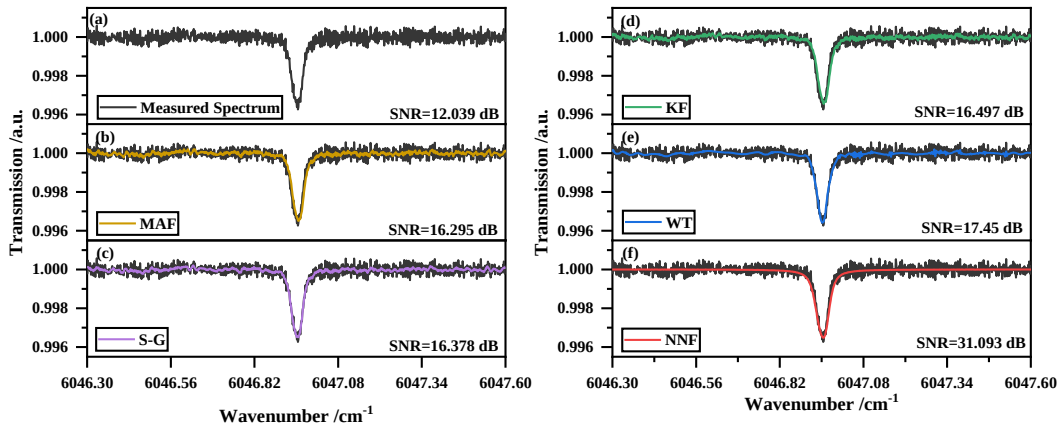


图 4-8 几种滤波算法在实验数据上的滤波效果对比

此外，为评估 NCP 在浓度预测中的适用性和可靠性，实验使用 MFC 配置了 30 组不同浓度的 CH_4 气体样本，并以 MFC 预设的浓度作为标准浓度。图 4-9(a)展示了 NCP、AIM 和 BP 对经 NNF 滤波后 CH_4 透射光谱进行浓度反演的结果对比。结果表明，NCP 预测浓度与标准浓度之间的误差最小。进一步地误差分析结果如图 4-9(b)、(c)和(d)所示，NCP 的 MAE 和 MRE 分别为 1.29 ppm 和 2.05%，明显低于 AIM(MAE=2.54 ppm, MRE=3.39%)和 BP 神经网络(MAE=2.74 ppm, MRE=5.90%)。表 4-3 详细汇总了各方法的浓度测量误差具体数值。

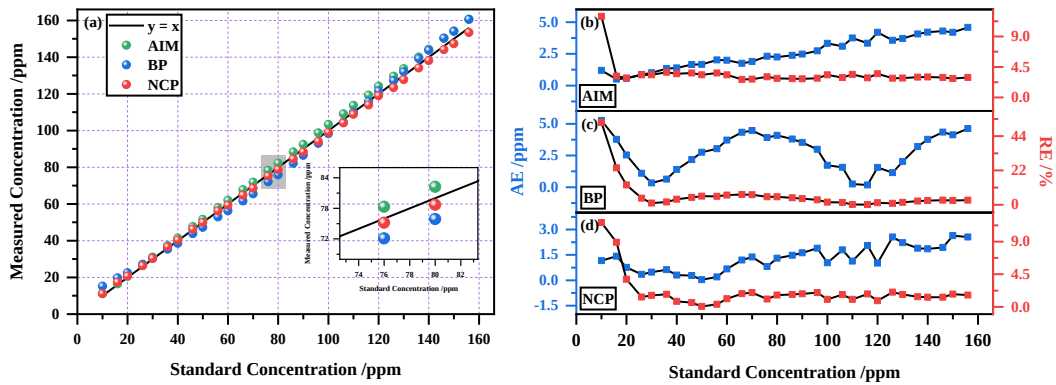


图 4-9 基于不同方法的 CH_4 测量数据浓度测量结果对比

表 4-3 三种方法浓度测量误差对比

Concentration range /ppm		10-156 ppm	
Method		Mean absolute error /ppm	Mean relative error /%
AIM		2.54452	3.38947
BP		2.74627	5.90654
NCP		1.28887	2.04789

4.2.3. 系统性能分析

本节进一步分析了模型增强的 CH_4 气体检测系统的响应特性。图 4-10(a)展示了不同浓度下 CH_4 吸光度振幅的变化情况。实验中，系统以 10Hz 的时间分辨率进行测量，即每个浓度在 1 s 内记录 10 个光谱数据，总记录次数不少于 500 次。此外，通过对各数据点的平均值进行线性拟合，计算出 CH_4 吸光度与浓度之间的线性响应关系，结果如图 4-10(b)所示。拟合结果显示，吸光度与浓度之间的相关系数 R^2 达到了 0.999，表明二者之间具有良好的线性关系。

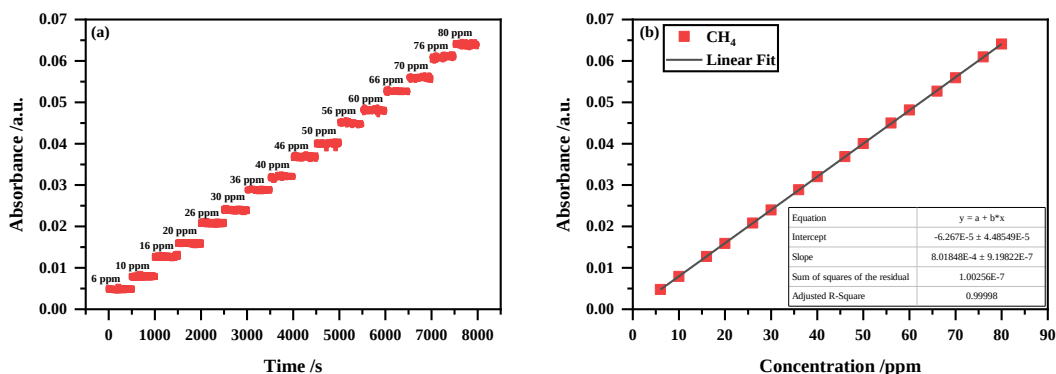


图 4-10 (a) 不同浓度的 CH₄ 吸光度幅值与浓度的关系; (b) 线性响应曲线

最后, 为了评估气体检测系统的检测精度和长期检测稳定性, 在吸收池中注入浓度为 6 ppm 的 CH₄ 气体样本, 进行 30 min 的实时检测。测得的浓度结果如图 4-11(a)所示。在整个测量过程内, CH₄ 的浓度在 5.06-7.49 ppm 范围内波动, 平均值为 6.16 ppm, 标准偏差为 0.244 ppm。进一步地 Allan 方差分析结果如图 4-11(b)所示, 在 1 s 的积分时间下, CH₄ 的检测精度为 0.23 ppm, 而在最佳积分时间 406 s 时, CH₄ 的检测极限为 34.8 ppb。

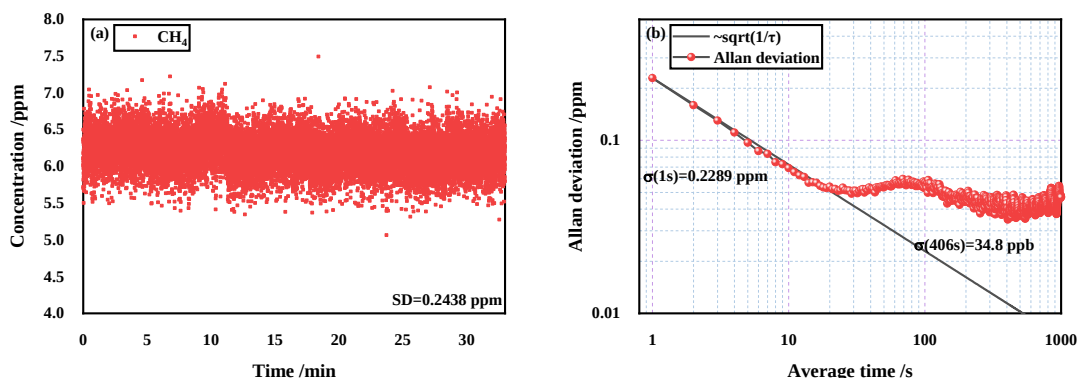


图 4-11 (a) 6 ppm CH₄ 气体浓度测量结果; (b) Allan 方差分析

4.3 本章小结

本章提出了一种基于神经网络的气体分析模型, 包含用于透射光谱滤波的 NNF 和用于气体浓度反演的 NCP。实验结果表明, 在滤波性能方面, NNF 较传统数字滤波算法具有明显优势, SNR 提升了 2.58 倍; 而在浓度测量精度方面, NCP 相比于 AIM 实现了更高的准确性, 其 MAE 和 MRE 分别降低至 1.29 ppm 和 2.05%。此外, Allan 偏差分析结果显示, 在 1 s 积分时间下, CH₄ 的检测精度为 0.23 ppm; 在 406 s 最佳积分时间下, CH₄ 的检测极限为 34.8 ppb。

第5章 总结与展望

本章首先对前面的内容进行了总结，对已开展的研究工作进行了归纳。其次，对未来的研究方向做出了相应的展望。

5.1 全文总结

可调谐二极管激光吸收光谱(TDLAS)技术作为一种高精度气体分析方法，凭借其卓越的灵敏度、选择性以及非接触式测量等特点，广泛应用于痕量气体检测领域。在此背景下，本文基于直接吸收光谱(DAS)技术，以 CH_4 和 C_2H_2 分子作为研究对象，从气体检测系统的实际应用上进行了探索与创新。主要完成工作如下：

(1) 开发了一种基于时分复用(TDM)和 DAS 的紧凑型 $\text{CH}_4/\text{C}_2\text{H}_2$ 双气体检测系统。针对气体检测中的激光波长漂移和噪声干扰问题，系统采用基于比例-积分-微分(PID)反馈控制的波长稳定技术，有效抑制了因温度控制波动而造成的激光波长漂移；同时引入 H 无穷(H_∞)滤波算法，有效降低了系统噪声干扰，使光谱信噪比(SNR)较原始数据提高了 1.48 倍。实验结果表明，系统测得的气体吸收谱线强度与 HITRAN 数据库中参考值的相对误差均低于 5%。此外，Allan 方差分析结果显示，在最佳积分时间 556 s 和 312 s 时， CH_4 和 C_2H_2 的检测极限分别为 39.9 ppb 和 47.3 ppb。

(2) 提出了一种应用于 CH_4 检测系统的神经网络气体分析模型。该模型集成了神经网络滤波器(NNF)和网络浓度预测器(NCP)，实现了从 CH_4 测量透射光谱中快速、准确地确定气体浓度。实验结果表明，NNF 的光谱滤波性能相较于传统数字滤波算法具有明显提升，经其处理后的光谱 SNR 提高了 2.58 倍，光谱拟合相关系数 R^2 达到了 0.999。在气体浓度测量精度方面，NCP 的平均绝对误差(MAE)和平均相对误差(MRE)分别为 1.29 ppm 和 2.05%，较传统吸光度积分法(AIM)分别降低了 1.25 ppm 和 1.34%。此外，Allan 方差分析结果显示，在最佳积分时间 406 s 时， CH_4 的检测极限为 34.8 ppb。

5.2 工作展望

本文在基于 DAS 的 CH_4 和 C_2H_2 气体检测研究方面取得了一定进展，但仍存在诸多亟待解决的问题与局限。据此提出以下工作展望：

(1) 在基于 TDM 与 DAS 的多组分痕量气体检测中，激光器快速切换过程中，由于插入损耗和光学元件的响应不均，容易引起信号衰减或交叉干扰，进而降低整体检测精度。因此，亟需深入研究多组分气体的同步检测方法，以实现更高精度的同时测量。

(2) DAS 检测灵敏度和精度显著依赖于基线校正方法，其中基线拟合作为一种有效手段，但其精度高度依赖于可调谐激光器的光强响应及波长响应的稳定性，尤其在两翼均存在吸收的情况下，基线获取难度将显著增加。因此，探索在全局吸收条件下改进基线拟合方法，将对提升气体检测准确性产生重要影响。

(3) 当前，在数据量较小时，通过 LabVIEW 平台进行光谱采集与分析能够满足实时处理要求；但随着数据量的增加，LabVIEW 的运行速度难以跟上采集速度，可能导致系统处理滞后。为满足工程应用的实时性要求，未来需要将算法移植至处理速度更快的 FPGA 平台上，从而实现高效的数据处理与实时监测。

参考文献

- [1] Liu W, Xing C. Needs and challenges of optical atmospheric monitoring on the background of carbon neutrality in China[J]. [Frontiers of Environmental Science & Engineering](#), 2024,18(6):73.
- [2] Li Y, Ma Y, Zheng C, et al. Near-infrared wide-range dual-gas sensor system for simultaneous detection of methane and carbon monoxide in coal mine environment[J]. [Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy](#), 2024,307:123581.
- [3] Wang S, Liu S, He X, et al. Mid-infrared methane standoff sensor using a frequency channel attention based convolutional neural network filter[J]. [Sensors and Actuators: B. Chemical](#), 2024,419:136371.
- [4] 沈晨颖, 吴华坤, 吴琼, 等. 基于激光吸收光谱频-时分复用技术的多组分气体测量[J]. [光学学报](#), 2024,44(23):280-289.
- [5] Farooq A, Alquaity A, Raza M, et al. Laser sensors for energy systems and process industries: Perspectives and directions[J]. [Progress in Energy and Combustion Science](#), 2022,91:100997.
- [6] 刘海芹, 徐睿, 王振翔, 等. 基于 TDLAS 的近红外甲烷高灵敏检测技术[J]. [光子学报](#), 2024,53(3):250-257.
- [7] Kamieniak J, Randviir E, Banks C. The latest developments in the analytical sensing of methane[J]. [Trends in Analytical Chemistry](#), 2015,73:146-157.
- [8] Xu S, Wang Q, Zhu Z, et al. Photoacoustic spectroscopy based on vertical cruciform multi-stepped photoacoustic cell achieving ppb-level acetylene detection[J]. [Sensors and Actuators: B. Chemical](#), 2024,418:136313.
- [9] Dong M, Zheng C, Yao D, 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.
- [10] Jiang J, Wang Z, Han X, et al. Multi-gas detection in power transformer oil based on tunable diode laser absorption spectrum[J]. [IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation](#), 2019,26(1):153-161.

- [11] 陈杨, 戴景民, 王振涛, 等. 基于近红外 TDLAS 变压器油中溶解气体在线检测装置[J]. [光谱学与光谱分析](#), 2021,41(1):16-23.
- [12] 廖秋刚, 冯忠彬, 王琳琳, 等. 一氧化氮、二氧化氮电化学检测气体报警器校准[J]. [化学分析计量](#), 2024,33(4):106-109.
- [13] Sridhar A, Chen X, Glossmann T, et al. Single-Frequency Impedance Studies on an Ionic Liquid-Based Miniaturized Electrochemical Sensor toward Continuous Low-Temperature CO₂ Monitoring[J]. [ACS Sensors](#), 2023,8(1):197-206.
- [14] Simion C, Florea O, Florea M, et al. CeO₂:Mn₃O₄ Catalytic Micro-Converters Tuned for CH₄ Detection Based on Catalytic Combustion under Real Operating Conditions[J]. [Materials](#), 2020,13(9):2196.
- [15] 牛小民, 李世伟, 张广来, 等. 温度对催化燃烧式气体传感器影响研究[J]. [现代计算机\(专业版\)](#), 2015,27:3-5.
- [16] 温军, 臧昆鹏, 潘凤梅, 等. 自动化顶空平衡-气相色谱法测定京杭运河中溶解甲烷[J]. [光学学报](#), 2024,44(3):1507-1514.
- [17] Shibamoto S, Lu W, Sato A. A multifunction flow channel switching module for multi-column capillary gas chromatography using silicon pneumatic microvalves[J]. [Journal of Chromatography A](#), 2023,1696:463961.
- [18] 刘宁武. 量子级联激光光谱技术在大气环境和土壤生态中的应用研究[D]. 合肥: [安徽大学](#), 2022.
- [19] Li J, Deng H, Sun J, et al. Simultaneous atmospheric CO, N₂O and H₂O detection using a single quantum cascade laser sensor based on dual-spectroscopy techniques[J]. [Sensors and Actuators: B. Chemical](#), 2016,231:723-732.
- [20] Liu K, Wang L, Tan T, et al. Highly sensitive detection of methane by near-infrared laser absorption spectroscopy using a compact dense-pattern multipass cell[J]. [Sensors and Actuators: B. Chemical](#), 2015,220:1000-1005.
- [21] 李劲松. 现代激光光谱技术及应用[M]. 北京: [科学出版社](#), 2022.
- [22] 董磊. 基于腔增强吸收光谱的污染气体检测研究[D]. 太原: [山西大学](#), 2008.
- [23] Swinehart, D. The Beer-Lambert Law[J]. [Sensors and Actuators: B. Chemical](#), 1960,39(7):333.

- [24] Shi Y, Hu Z, Niu M, et al. High-sensitive double incidence multi-pass cell for trace gas detection based on TDLAS[J]. [Journal of Chemical Education](#), 2024,412:135829.
- [25] Dang J, Zhang J, Dong X, et al. A trace CH₄ detection system based on DAS calibrated WMS technique[J]. [Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy](#), 2021,266:120418.
- [26] Liu N, Xu L, Zhou S, et al. Soil respiration analysis using a mid-infrared quantum cascade laser and calibration-free WMS-based dual-gas sensor[J]. [Analyst](#), 2021,146(12):3841-3851.
- [27] Song Y, Zhao J, Zhang X, et al. A CNN-assisted mid-infrared high-sensitivity exhaled ammonia sensor based on cavity ring-down spectroscopy[J]. [Sensors and Actuators: B. Chemical](#), 2024,401:135071.
- [28] Xu L, Tang R, Kang W, et al. Synchronous detection of CO₂ and CH₄ gas absorption spectroscopy based on TDM and optimized adaptive Whittaker-Henderson filtering algorithm[J]. [Applied Physics B-Lasers and Optics](#), 2024,130(6):102.
- [29] 刘文清, 王兴平, 马国盛, 等. 高灵敏腔衰荡光谱技术及其应用研究[J]. [光学学报](#), 2021, 41(1):434-450.
- [30] 卢俊城, 高璐, 吴琼, 等. 基于离轴积分腔输出光谱技术的二氧化碳测量[J]. [光学学报](#), 2024,53(8):0830002.
- [31] Zheng K, Yu L, Zheng C, et al. Vehicle-Deployed Off-Axis Integrated Cavity Output Spectroscopic CH₄/C₂H₆ Sensor System for Mobile Inspection of Natural Gas Leakage[J]. [ACS Sensors](#), 2022,7:1685-1697.
- [32] 陈稳稳, 郑凯元, 曹延伟, 等. 基于腔增强激光光谱的水中溶解甲烷传感系统[J]. [光子学报](#), 2021,50(9):176-184.
- [33] Pelini J, Dello Russo S, Wang, Z., et al. A cavity-enhanced MEMS-based photoacoustic sensor for ppt-level trace-gas detection[J]. [Sensors and Actuators: B. Chemical](#), 2025,430:137313.
- [34] Meng Z, Xiang J, Li W, et al. Multicomponent Gas Measurement Method Based on Miniaturized and Scalable Multiresonator Photoacoustic Spectroscopy[J]. [Analytical Chemistry](#), 2025,97:4158-4165.

-
- [35] Wijesinghe D, Zobair M, Esmaelpour M. A Review on Photoacoustic Spectroscopy Techniques for Gas Sensing[J]. [Sensors](#), 2024,24(20):6577.
- [36] Hong J, Han J, Lee T, et al. In-situ tailpipe soot emission monitoring for diesel engine exhaust using a quartz-enhanced photoacoustic spectroscopy sensor[J]. [Measurement](#), 2025,246:116555.
- [37] Patimisco P, Ardito N, De Toma E, et al. Quartz-Enhanced Photoacoustic Sensor Based on a Multi-Laser Source for In-Sequence Detection of NO₂, SO₂, and NH₃[J]. [Sensors](#), 2023,23(21):9005.
- [38] 马欲飞. 基于石英增强光声光谱的气体传感技术研究进展[J]. [物理学报](#), 2021,70(16):29-40.
- [39] Hinkley, E. HIGH-RESOLUTION INFRARED SPECTROSCOPY WITH A TUNABLE DIODE LASER[J]. [Applied Physics Letters](#), 1970,16(9):351-354.
- [40] Reid J, Shewchun J, Garside B, et al. High sensitivity pollution detection employing tunable diode lasers[J]. [Applied Optics](#), 1978,17(2):300-307.
- [41] Harris G, Mackay G, Iguchi T, et al. Measurement of NO₂ and HNO₃ in diesel exhaust gas by tunable diode laser absorption spectrometry[J]. [Environmental Science & Technology](#), 1987, 21(3):299-304.
- [42] Daniel R, McNesby K, Miziolek A. Application of tunable diode laser diagnostics for temperature and species concentration profiles of inhibited low-pressure flames[J]. [Applied Optics](#), 1996,35(21):4018-4025.
- [43] Moeskops B, Cristescu S, Harren, F. Sub-part-per-billion monitoring of nitric oxide by use of wavelength modulation spectroscopy in combination with a thermoelectrically cooled, continuous-wave quantum cascade laser[J]. [Optics Letters](#), 2006,31(6):823-825.
- [44] Neethu S, Verma R, Kamble S, et al. Validation of wavelength modulation spectroscopy techniques for oxygen concentration measurement[J]. [Sensors and Actuators: B. Chemical](#), 2014,192:70-76.
- [45] Kireev S, Kondrashov A, Shnyrev, S. Application of the Wiener filtering algorithm for processing the signal obtained by the TDLAS method using the synchronous detection

- technique for the measurement problem of $^{13}\text{CO}_2$ concentration in exhaled air[J]. [Laser Physics Letters](#), 2019,412:085701.
- [46] Aljalal A, Altanany S, Gasmi K, et al. Detection of nitrogen dioxide with tunable multimode blue diode Lasers[J]. [Applied Physics B-Lasers and Optics](#), 2021,127(6):86.
- [47] So S, Park J, Yoo M, et al. Simultaneous measurement of OH radical, H_2O concentration, and temperature in a premixed CH_4/air flame using TDLAS with an improved analysis method[J]. [Optics Express](#), 2022,30(18):32031-32050.
- [48] Davis N, Francis D, Hodgkinson J, et al. Compact methane sensor using an integrating sphere and interband cascade laser at 3313 nm[J]. [Sensors and Actuators: B. Chemical](#), 2023,389:133866.
- [49] Ashik A, Rodrigo P, Larsen H, et al. Integrated-path multi-gas sensor using near-infrared diode lasers: An alternative to vehicle-driven point gas analyzer[J]. [Sensors and Actuators: B. Chemical](#), 2024,412:135855.
- [50] 高晓明, 黄伟, 李子尧, 等. CO_2 分子的近红外二极管激光吸收光谱灵敏探测[J]. [光学学报](#), 2003,5:609-611.
- [51] 李坤颖, 肖兵. 基于 TDLAS 动态参数快速测量系统[J]. [自动化技术与应用](#), 2006,7:57-59,63.
- [52] 祝玉泉, 乔利峰, 张启兴, 等. 基于 TDLAS 的城市天然气管道泄漏检测系统[J]. [中国科学技术大学学报](#), 2009,39(4):429-434.
- [53] 邹得宝, 陈文亮, 杜振辉, 等. 数字滤波方法在 TDLAS 逃逸氨检测中的选用[J]. [光谱学与光谱分析](#), 2012,32(9):2322-2326.
- [54] Ren W, Luo L, Tittel F. Sensitive detection of formaldehyde using an interband cascade laser near $3.6\ \mu\text{m}$ [J]. [Sensors and Actuators: B. Chemical](#), 2015,221:1062-1068.
- [55] Li C, Shao L, Jiang L, et al. Simultaneous Measurements of CO and CO_2 Employing Wavelength Modulation Spectroscopy Using a Signal Averaging Technique at $1.578\ \mu\text{m}$ [J]. [Applied Spectroscopy](#), 2018,72(9):1380-1387.

- [56] Liu N, Xu L, Zhou S, et al. Simultaneous Detection of Multiple Atmospheric Components Using an NIR and MIR Laser Hybrid Gas Sensing System[J]. [ACS Sensors](#), 2020,5(11):3607-3616.
- [57] Wei T, Wu H, Dong L, et al. Palm-sized methane TDLAS sensor based on a mini-multi-pass cell and a quartz tuning fork as a thermal detector[J]. [Optics Express](#), 2021,29(8):12357-12364.
- [58] Tian L, Sun J, Zhang S, et al. Near-infrared methane sensor with neural network filtering[J]. [Sensors and Actuators: B. Chemical](#), 2022,354:131207.
- [59] Li G, Zhang X, Zhang Z, et al. Mid-infrared telemetry sensor based calibration gas cell for CO detection using a laser wavelength locking technique[J]. [Measurement](#), 2023,208:112445.
- [60] Dang J, Zhang J, Chen T, et al. Simultaneous atmospheric CH₄, CO₂ and O₂ detection using fiber-optic switch (FOS)-based time-division multiplexed NIR laser long optical path absorption spectroscopy[J]. [Sensors and Actuators: B. Chemical](#), 2024,404:135256.
- [61] Demtröder W, Demtröder W. Laser spectroscopy 1: Basic principles (5th edition)[M]. [Springer](#), 2014.
- [62] 周戡. 基于 7.6 μm 量子级联激光的 N₂O 传感技术研究[D]. 合肥: [中国科学技术大学](#), 2018.
- [63] Nagali V, Chou S, Baer D, et al. Tunable diode-laser absorption measurements of methane at elevated temperatures[J]. [Applied Optics](#), 1996,35(21):4026-4032.
- [64] Gordon I, Rothman L, Hargreaves R, et al. The HITRAN2020 molecular spectroscopic database[J]. [Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer](#), 2022,277:107949.
- [65] 陈衡. 红外物理学[M]. 北京: [国防工业出版社](#), 1998.
- [66] Tran H, Bermejo D, Domenech J.-L, et al. Collisional parameters of H₂O lines: Velocity effects on the line-shape[J]. [Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer](#), 2007,16(8):126-145.
- [67] Whiting E. An empirical approximation to the Voigt profile[J]. [Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer](#), 1968,8(6):1379-1384.
- [68] 崔海滨. CO/CO₂/NO 的可调谐激光吸收光谱遥测方法研究及其在汽车尾气道边检测的应用[D]. 杭州: [浙江大学](#), 2022.

- [69] 鲁一冰, 刘文清, 张玉钧, 等. 中红外激光吸收光谱 CO 检测系统软件设计[J]. [电子测量技术](#), 2018,41(14):102-107.
- [70] Zhou S, Liu N, Shen C, et al. An adaptive Kalman filtering algorithm based on back-propagation (BP) neural network applied for simultaneously detection of exhaled CO and N₂O[J]. [Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy](#), 2019,223:117332.
- [71] Li J, Parchatka U, Fischer, H. Applications of wavelet transform to quantum cascade laser spectrometer for atmospheric trace gas measurements[J]. [Applied Physics B-Lasers and Optics](#), 2012,108(4):951-963.
- [72] Ji J, Huang Y, Pi M, et al. Performance improvement of on-chip mid-infrared waveguide methane sensor using wavelet denoising and Savitzky-Golay filtering[J]. [Infrared Physics & Technology](#), 2022,127:104469.
- [73] 阎杰, 翟畅, 王晓牛, 等. L-M 非线性拟合的 TDLAS 氧气测量研究[J]. [光谱学与光谱分析](#), 2015,35(6):1497-1500.
- [74] Sun J, Chang J, Wang C, et al. Tunable diode laser absorption spectroscopy for detection of multi-component gas: A review[J]. [Applied Spectroscopy Reviews](#), 2024,59(8):1-22.
- [75] Du Y, Liu N, Wu X, et al. Frequency division multiplexing and wavelength stabilized 2f/1f wavelength modulation spectroscopy for simultaneous trace CH₄ and CO₂ detection[J]. [Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy](#), 2024,305:123453.
- [76] Zou M, Sun L, Wang X. CH₄/C₂H₆ dual-gas sensing system based on wavelength modulation spectroscopy using a single near infrared laser[J]. [Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy](#), 2022,272:120970.
- [77] Haneesh K, Raghunathan T. Robust Control of DFIG Based Wind Energy System Using an H_{∞} Controller[J]. [Journal of Electrical Engineering & Technology](#), 2021,16(3): 1693-1707.
- [78] Dong H, Wang Z, Ho D, et al. Variance-Constrained H_{∞} Filtering for a Class of Nonlinear Time-Varying Systems With Multiple Missing Measurements: The Finite-Horizon Case[J]. [IEEE Transactions on Signal Processing](#), 2010,58(5):2534-2543.

- [79] Xia J, Gao S, Zhong Y, et al. Moving-Window-Based Adaptive Fitting H-Infinity Filter for the Nonlinear System Disturbance[J]. [IEEE ACCESS](#), 2020,8:76143-76157.
- [80] 邵国栋. 基于激光吸收光谱信号直接拟合的峰值迭代法测量 CO₂ 浓度[D]. 广州: [华南理工大学](#), 2022.
- [81] Ren Y, Du J, Zhang M, et al. Robust Laser absorption spectroscopy based on dual-convolutional neural network algorithms for multiple trace gases analysis[J]. [Sensors and Actuators: B. Chemical](#), 2024,420, 136476.
- [82] Li Y, Yang S, Lu Y, et al. Multi-parameter methane measurement using near-infrared tunable diode laser absorption spectroscopy based on back propagation neural network[J]. [Infrared Physics & Technology](#), 2022,125:104275.

攻读硕士的学术成果

- [1] **Xu D**, Cai Q, Zhang G, et al. Dual-Gas Sensor Employing Wavelength-Stabilized Tunable Diode Laser Absorption Spectroscopy and H-Infinity Filtering Algorithm[J]. [Applied Spectroscopy](#), 2025:1-13.
- [2] Ge Q, **Xu D**, Cai Q, et al. Double filter noise reduction algorithm optimized by RBF neural network for laser absorption spectroscopy[J]. [Infrared Physics & Technology](#), 2025,145:105718.
- [3] Xiao J, **Xu D**, Pan S, et al. Realization of high stability PGC-EKF demodulation algorithm based on FPGA[J]. [SPIE](#), 2023, 12968:1296827.
- [4] 许林广, **徐丁力**. 基于 LabVIEW 的气体分子吸收光谱模拟与实验数据采集平台(Version 1.0). [计算机软件著作权](#), 登记号: 2024SR1855709

致谢

窗外的雨丝斜织成帘，实验室的玻璃蒙上一层薄薄的雾气。指尖触碰键盘的微凉，让我想起三年前初到课题组的那个雨天。当时怀着忐忑与期待的心情推开实验室的门，而今窗外依旧是细雨，案头却已堆满了即将定稿的论文。那些被数据和文献填满的日夜、被挫折和突破交织的瞬间，终化作心底最真实的感激。

首先，我要深深感谢的是课题组的三位导师：葛强老师、许林广老师和张刚老师。葛老师风趣幽默，总能在轻松的氛围中为我们传授深刻的道理，让我们在轻松愉快的氛围中学习到了知识。在论文写作过程中，葛老师为我提供了许多宝贵的建议，帮助我不断完善论文的内容。许老师严谨治学，每一次的实验设计、数据分析，都要求我们做到精益求精。在您的指导下，我学会了如何严谨地对待每一个细节，如何从数据中挖掘出有价值的信息。张老师知识渊博，就像一位智慧的长者，用渊博的知识和丰富的人生阅历为我指引方向。在学术的道路上，总是鼓励我们大胆探索，勇于创新。

其次，我要感谢实验室的小伙伴们，你们是我科研路上的得力帮手。我们一起在实验室奋斗，一起为了解决一个问题而争论的面红耳赤。记得那次通宵达旦的实验，我们并肩作战，困了就趴在实验台旁小憩，饿了就以面包充饥。实验室的灯光下，我们的身影交织在一起，为同一个目标而努力。那些并肩作战的日子，虽然劳累，却充满了温暖与力量。

最要感谢的是我的父母，你们是我生命中最坚实的后盾。从我踏入校园的那一刻起，你们就用无尽的爱支持着我。你们从未因为我的失败而责备我，也从未因为我的成功而过分骄傲。你们总是默默地为我付出，从不求回报。

最后，我要感谢评审的各位专家和老师，你们用专业的目光审视我的论文，用严谨的态度为我指出不足。你们的认可是我前进的动力，你们的批评是我成长的阶梯。

尚德敏学 唯实惟新

