

## 基于透镜-反射镜组合的石英音叉增强型光声光谱系统

刘金鹏, 孙柳雅, 牛明生\*, 马丽丽, 张景虎

曲阜师范大学物理工程学院激光研究所, 山东省激光偏振与信息技术重点实验室, 山东 曲阜 273165

**摘要** 为了提高石英音叉增强型光声光谱(QEPAS)系统的探测灵敏度,本文提出了一种基于透镜-反射镜组合的离轴石英音叉增强光声光谱(LR-QEPAS)系统。该系统采用使激光束在共振管内往返四次的透镜-反射镜组合结构和谐波探测技术,在室温和一个大气压下对 1392.58 nm 处的水汽吸收线进行测量,优化了系统的调制深度,验证了离轴 LR-QEPAS 系统的性能随着激光在共振管内往返次数的增加而提高,并且在同样的实验条件下引入离轴 QEPAS 和双通 QEPAS 系统进行比较。最后利用 Allan 方差对系统的稳定性和探测灵敏度进行分析,得到了离轴 LR-QEPAS 系统在 64 s 积分时间内的最小检测极限为  $7.54 \times 10^{-8}$ , 归一化噪声等效吸收(NNEA)系数为  $3.46 \times 10^{-9} \text{ cm}^{-1} \cdot \text{W} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$ 。实验结果表明,透镜-反射镜组合结构可以显著提高 QEPAS 系统的性能。

**关键词** 光谱学; 石英增强型光声光谱; 透镜-反射镜组合; 水汽

中图分类号 O433.1

文献标志码 A

doi: 10.3788/CJL202148.2011001

### 1 引言

2002 年,美国 Rice 大学的 Tittel 研究小组报道了石英音叉增强型光声光谱(QEPAS)技术<sup>[1]</sup>,该技术利用商用石英音叉替代传统光声光谱技术中的麦克风作为声学探测器。QEPAS 系统具有体积小、成本低、响应带宽窄、选择性好、检测灵敏度高和可抑制环境噪声等优点,已被广泛应用于环境大气检测、医学诊断和工业过程控制<sup>[2-10]</sup>等领域。

微型共振管(mR)可以有效提高 QEPAS 系统的灵敏度。国内外很多研究小组利用基于同轴<sup>[11]</sup>、离轴<sup>[12]</sup>、T 型<sup>[13]</sup>共振管的 QEPAS 系统对痕量气体进行了检测。离轴 QEPAS 不仅组装简单还可以避免光热效应,其使用最优共振管得到的信噪比(SNR)比裸音叉 QEPAS 的 SNR 提高了约 30 倍。T 型管 QEPAS<sup>[14]</sup>相较于同轴 QEPAS 更易于实现光学对准<sup>[15]</sup>。另外,多石英音叉和定制石英音叉对 QEPAS 系统探测灵敏度的影响也得到了深入研究<sup>[16-17]</sup>。二次谐波和拍频方法可以有效提高 QEPAS 系统的探测灵敏度,此外,前者还可以有效降低背景噪声的影响,提高检测灵敏度,而后者则可

以避免校准并可以连续监测痕量气体<sup>[18-19]</sup>。

将二极管激光器作为光源时,其较低的输出功率极大地限制了 QEPAS 系统的检测灵敏度。激光光束多次通过声学探测模块可有效提高气体对光功率的吸收,进而提高 QEPAS 系统的性能。郑华丹等<sup>[20]</sup>开发了一种双通 QEPAS 传感器,使用  $1.5 \mu\text{m}$  的分布反馈式(DBF)激光器对实际大气中的  $\text{CO}_2$  进行探测,获得了  $1.74 \times 10^{-6}$  的检测极限。何应等<sup>[21]</sup>利用高 Q 值石英音叉对多通池中的 CO 进行测量,达到了  $4.7 \times 10^{-7}$  的探测极限。胡立恩等<sup>[22]</sup>采用嵌入式离轴 QEPAS (E-OB-QEPAS)传感器对水汽探测时获得了  $1.59 \times 10^{-7}$  的探测极限。刘永宁等<sup>[23]</sup>提出了一种带有直角棱镜的同轴 QEPAS 系统,其归一化噪声等效吸收(NNEA)系数可以达到  $5.8 \times 10^{-8} \text{ cm}^{-1} \cdot \text{W} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$ 。目前所查资料显示,利用激光四次通过共振管的方法来增强光声信号的 QEPAS 系统还未见报道。

本文基于透镜-反射镜组合搭建了一种新的离轴石英音叉增强光声光谱(LR-QEPAS)系统,实现了激光在共振管内来回反射四次。以中心波长为 1392.5 nm 的可调谐分布反馈式半导体激光器作为

收稿日期: 2020-12-17; 修回日期: 2021-02-02; 录用日期: 2021-03-16

通信作者: \*qsdmsniu@qfnu.edu.cn

光源,利用水蒸气对 LR-QEPAS 系统的性能进行研究,并将其与离轴 QEPAS、双通 QEPAS 系统的性能进行了比较。通过 Allan 方差分析可知,积分时间为 64 s 时 LR-QEPAS 系统的最小探测极限为  $7.54 \times 10^{-8}$ ,该系统能够实现痕量气体的高灵敏度测量。

## 2 实验系统的组成

离轴 LR-QEPAS 的实验装置示意图如图 1 所示。利用中心波长为 1392.5 nm、输出功率为 10 mW 的 NLK1E5EAAA 型可调谐分布反馈式激光器作为光源。通过设定 LDC-3724C 型激光控制器的温度和电流参数实现对激光器的控制。函数发生器输出频率为石英音叉共振频率一半 ( $f = f_0 / 2$ ) 的正弦波对分布反馈式激光器进行调制,实验中选取的石英音叉的谐振频率为 32.750 kHz ( $f_0$ )。经过调制的激光经准直器准直后进入声学探测模块,石英音叉产生的压电信号由负反馈电阻为 10 M $\Omega$  的低噪声互阻抗放大器放大后输入 SR850 型锁相放大器,在  $2f$  处进行解调,通过数据采集卡采集后输入装有 LabVIEW 软件的计算机中进行分析处理。锁相放大器的时间常数为 1 s,滤波器的斜率为 18 dB/oct,对应的检测带宽为  $\Delta f = 0.094$  Hz。实验采用离轴形式,如图 2 所示,采用内径和长度分别为 0.51 mm 和 8 mm 的不锈钢管作为共振管,共振管的中部开一个侧向直径为 200  $\mu\text{m}$  的小孔,石英音叉探测器距离侧面小孔 30  $\mu\text{m}$ ,且石英音叉臂顶部距离小孔 0.7 mm。

为了进一步确定离轴 LR-QEPAS 系统的性能,

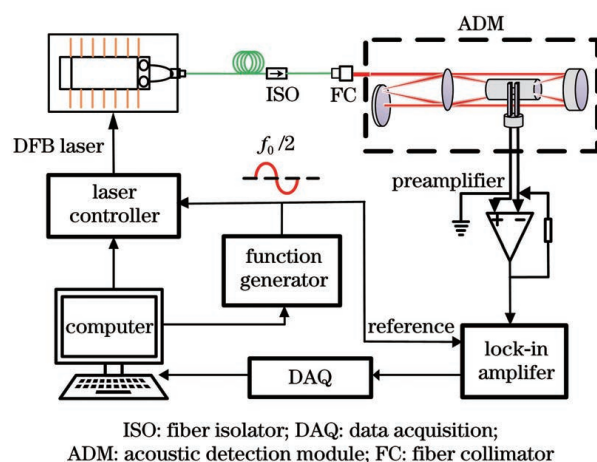


图 1 离轴 LR-QEPAS 系统的实验装置图  
Fig. 1 Experimental setup diagram of off-beam LR-QEPAS system

在同样的实验条件下引入离轴 QEPAS 和两种双通 QEPAS 系统作为对照。实验中采用的凸透镜焦距为 50 mm,凹面反射镜的焦距为 50 mm。离轴 QEPAS 系统的声学检测模块 (ADM) 由凸透镜、共振管和石英音叉组成,如图 2(a)所示。第一种双通 QEPAS 系统称为 P-QEPAS,其声学检测模块由凸透镜、平面反射镜、石英音叉和共振管组成,如图 2(b)所示。在 P-QEPAS 中,共振管小孔与凸透镜的焦点位置对准,平面反射镜将通过共振管的激光束反射回共振管,实现双通;平面反射镜放置于共振管后方 50 mm 处,方便与 LR-QEPAS 系统进行对比。第二种双通 QEPAS 称为 C-QEPAS,该系统使用凹面反射镜代替 P-QEPAS 中的平面反射镜,而且凹面反射镜放置于共振管后方 50 mm 处,用于反射激光光束,如图 2(c)所示。

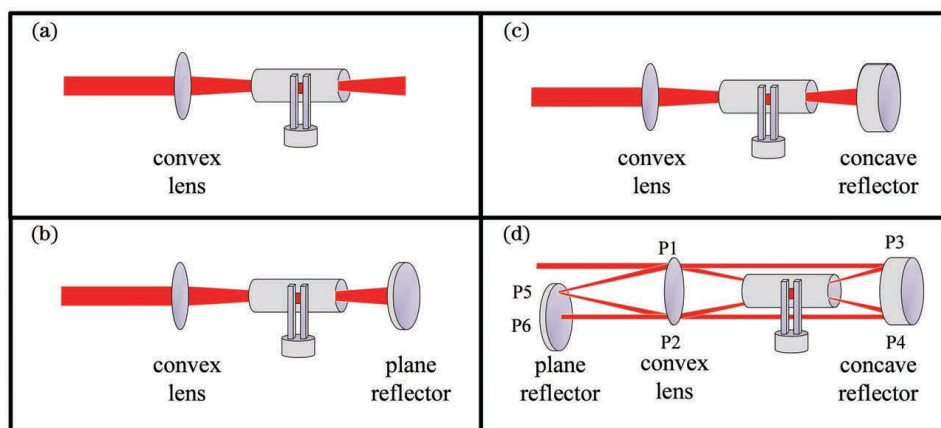


图 2 声学检测模块示意图。(a)离轴 QEPAS;(b)P-QEPAS;(c)C-QEPAS;(d)离轴 LR-QEPAS  
Fig. 2 Schematics of acoustic detection modules. (a) Off-beam QEPAS; (b) P-QEPAS; (c) C-QEPAS;  
(d) off-beam LR-QEPAS

离轴 LR-QEPAS 的声学检测模块由透镜-反射镜组合结构及共振管组成,透镜-反射镜组合结构包括平面反射镜、凹面反射镜和凸透镜,如图 2 (d) 所示。实验开始前先用波长为 633 nm 的红光对光路进行调节,调节完毕后更换为测量使用的激光器,然后利用红外感光板 (HCP-IR-1201) 对光路进行细调。为确保激光束不照射到共振管臂上,采用红外感光板配合 S-WCD-QD-1550 型光斑分析仪对激光束进行调节,激光光斑在共振管内部的最大直径为 0.21 mm。凸透镜和凹面反射镜的光轴与共振管的中心轴线重合,平面反射镜位于凸透镜的前焦点处

(二者相距 50 mm),凸透镜的后焦点(50 mm 处)与凹面反射镜的焦点(50 mm 处)重合,且对准于共振管的中心位置。为了更好地演示离轴 LR-QEPAS 系统中激光束的路径,在图 3 中对激光束路径进行了详细的分解,(1)到(20)代表激光束以及传播方向,并且按照(1)到(20)的路径传播。P1、P2、P3、P4 和 P6 为激光束经过的位置,距光轴 3 mm,P5 位于光轴上。图 3 中相同数字标识的激光束代表同一激光束,图 3 (a)、图 3 (b)、图 3 (c)和图 3 (d)分别对应激光束通过共振管一次、二次、三次和四次,激光束最终由光隔离器阻挡。

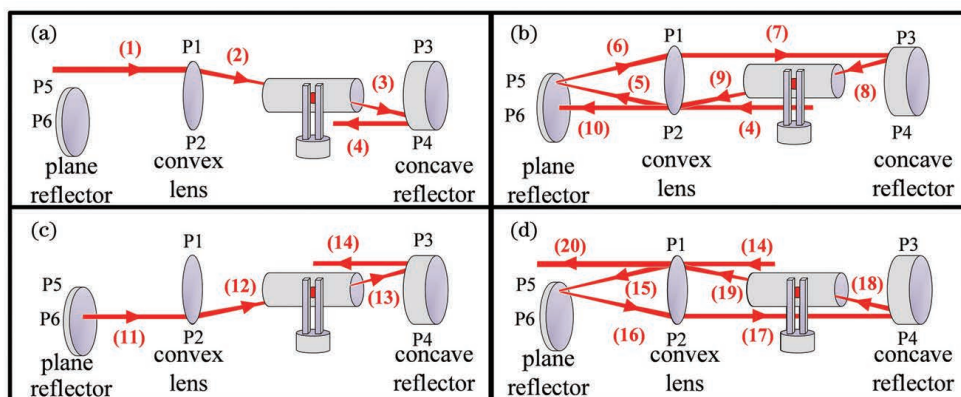


图 3 离轴 LR-QEPAS 中激光束的详细路径。(a)激光束通过共振管一次;(b)激光束通过共振管二次;(c)激光束通过共振管三次;(d)激光束通过共振管四次

Fig. 3 Specific laser beam paths of off-beam LR-QEPAS. (a) Laser beam passes through mR for the first time; (b) laser beam passes through mR for the second time; (c) laser beam passes through mR for the third time; (d) laser beam passes through mR for the fourth time

### 3 结果与分析

为确保水汽的浓度维持在稳定状态,实验在配备加湿器的密闭环境下进行,与外界环境一直处于隔离状态。测量的同时用一个湿度计实时记录实验环境的相对湿度,再通过相对湿度与水汽绝对浓度的关系获得水汽的绝对浓度。定标结果表明,实验过程中水汽的体积分数始终为 1.2%。根据 HITRAN2016 数据库,选择 1392.58 nm 处的水汽吸收线,该处吸收线的线强为  $1.55 \times 10^{-20} \text{ cm}^{-1} \cdot (\text{mol} \cdot \text{cm}^{-2})^{-1}$ ,且没有其他分子的干扰。激光器的波长调谐范围为 1392.20~1392.70 nm,能够覆盖水汽吸收线。

光声信号  $S$  与激光功率  $W$  之间的关系可以表示为

$$S = KW\alpha Q\epsilon, \quad (1)$$

式中: $K$  是系统常数,与探测元器件有关; $W$  是调制下的激光功率; $\alpha$  是待测气体的吸收系数; $Q$  是石英

音叉的品质因数; $\epsilon$  是光声转换效率。在调制深度为  $0.26 \text{ cm}^{-1}$  时,利用 HCP-IR-1201 型感光板以及微型隔板控制激光通过共振管的次数,得到了离轴 LR-QEPAS 的光声信号与激光束通过共振管的次数之间的关系,如图 4 所示。由图 4 可以看出,该光

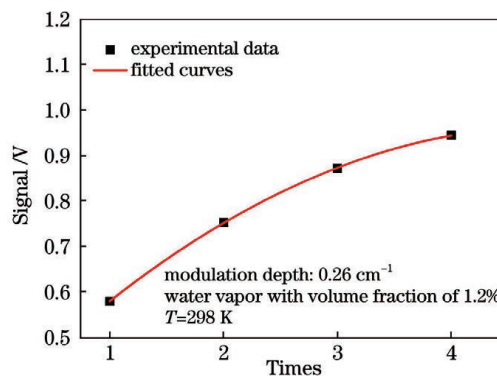


图 4 离轴 LR-QEPAS 系统光声信号与激光通过共振管次数之间的关系

Fig. 4 Off-beam LR-QEPAS signal as a function of the times that laser beam passes through the mR



声信号随激光束通过共振管的次数的增加而非线性地增强。这种非线性变化是由光在空气中的散射引起的。

调制深度会影响光声信号的幅值。为获得最佳的二次谐波( $2f$ )光声信号,需要对调制深度进行优化<sup>[24-25]</sup>。图 5 为不同调制深度下 P-QEPAS、C-QEPAS、离轴 QEPAS 和离轴 LR-QEPAS 的  $2f$  信号。从图 5 可以看出,离轴 LR-QEPAS、P-QEPAS、C-QEPAS 和离轴 QEPAS 的  $2f$  信号均随着波长调制深度的增加而增强,当调制深度超过  $0.34\text{ cm}^{-1}$  时,信号幅值开始减小,因此,最优的调制深度为  $0.34\text{ cm}^{-1}$ 。透镜-反射镜组合结构并没有改变 QEPAS 系统的最佳调制深度。

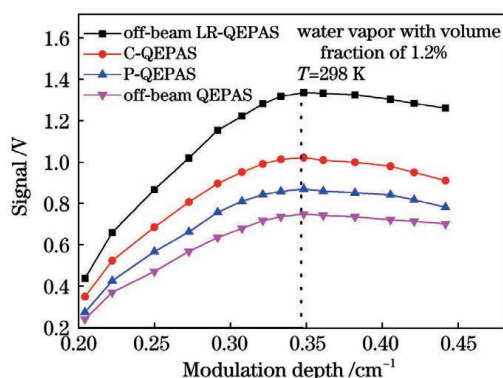


图 5 离轴 LR-QEPAS、P-QEPAS、C-QEPAS、离轴 QEPAS 的二次谐波信号与调制深度之间的关系

Fig. 5 The second harmonic signals of off-beam LR-QEPAS, P-QEPAS, C-QEPAS, and off-beam QEPAS as a function of the modulation depth

当调制深度为  $0.34\text{ cm}^{-1}$  时,离轴 LR-QEPAS、C-QEPAS、P-QEPAS 和离轴 QEPAS 的  $2f$  信号如图 6 所示。由图 6 可以看出,离轴 LR-QEPAS、

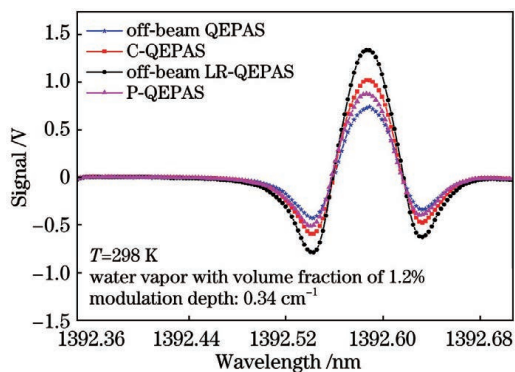


图 6 离轴 QEPAS、C-QEPAS、P-QEPAS 和离轴 LR-QEPAS 在最佳调制深度下的  $2f$  信号

Fig. 6 The second harmonic signals of off-beam QEPAS, C-QEPAS, P-QEPAS, and off-beam LR-QEPAS at the optimal modulation depth

P-QEPAS、C-QEPAS 和离轴 QEPAS 系统的峰值幅度分别为  $1.33, 1.02, 0.87, 0.74\text{ V}$ 。P-QEPAS 与 C-QEPAS 系统类似,但是由于凹面反射镜可以将更多的激光束反射回共振管,因此 C-QEPAS 系统获得的信号强于 P-QEPAS 系统。离轴 LR-QEPAS 中激光四次通过共振管,因此峰值幅度约为离轴 QEPAS 系统的 1.8 倍。

为进一步评估离轴 LR-QEPAS 系统的性能,本文引入归一化噪声等效吸收( $\text{NNEA}, C_{\text{NNEA}}$ )系数对各系统的性能进行比较。NNEA 系数可表示为

$$C_{\text{NNEA}} = \frac{\alpha W}{R_{\text{SN}} \sqrt{\Delta f}}, \quad (2)$$

式中: $\alpha$  是吸收系数; $\Delta f$  是检测带宽; $R_{\text{SN}}$  是信噪比。由图 6 可以计算得到离轴 LR-QEPAS、C-QEPAS、P-QEPAS 和离轴 QEPAS 系统的 NNEA 系数分别为  $3.46 \times 10^{-9}, 4.21 \times 10^{-9}, 5.02 \times 10^{-9}, 5.64 \times 10^{-9}\text{ cm}^{-1} \cdot \text{W} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$ 。通过对比相同实验条件下的 NNEA 系数可以发现,离轴 LR-QEPAS 系统采用透镜-反射镜组合结构提高了激光功率,因此性能优于 C-QEPAS、P-QEPAS 和离轴 QEPAS 系统。

实验系统会受到各种不稳定因素的影响,只能在有限的时间内是稳定的。Allan 偏差可以直接反映系统的最小可探测浓度与平均时间之间的关系<sup>[26-27]</sup>。为了评估本系统的长期稳定性和检测极限,采用离轴 QEPAS、P-QEPAS、C-QEPAS 和离轴 LR-QEPAS 系统对体积分数为 1.2% 的水汽进行了 1500 s 的连续测量,确定水汽浓度与信号幅值之间的关系后,利用 Allan 方差对测量值进行了分析,分析结果如图 7 所示。在 Allan 方差分析法中,系统的最低检测极限可以通过系统发生漂移的位置得到。由此得到离轴 QEPAS 在 31 s 积分时间内的最低检测极限为  $6.88 \times 10^{-7}$ , C-QEPAS 系统为在 54 s 积分时间内的检测极限为  $5.12 \times 10^{-7}$ , P-QEPAS 系统在 81 s 积分时间内的最低检测极限为  $5.9 \times 10^{-7}$ ,如图 7 (a)~(c) 所示。对于离轴 LR-QEPAS 系统,在积分时间为 64 s 时获得的最低检测极限为  $7.54 \times 10^{-8}$ ,如图 7 (d) 所示。上述的最低检测极限表明,与 C-QEPAS 系统、P-QEPAS 系统、离轴 QEPAS 系统相比,离轴 LR-QEPAS 系统具有最低的检测极限。通过与离轴 QEPAS、双通 QEPAS 系统对比可以发现,透镜-反射镜组合结构对光声信号起到了明显的增强作用。

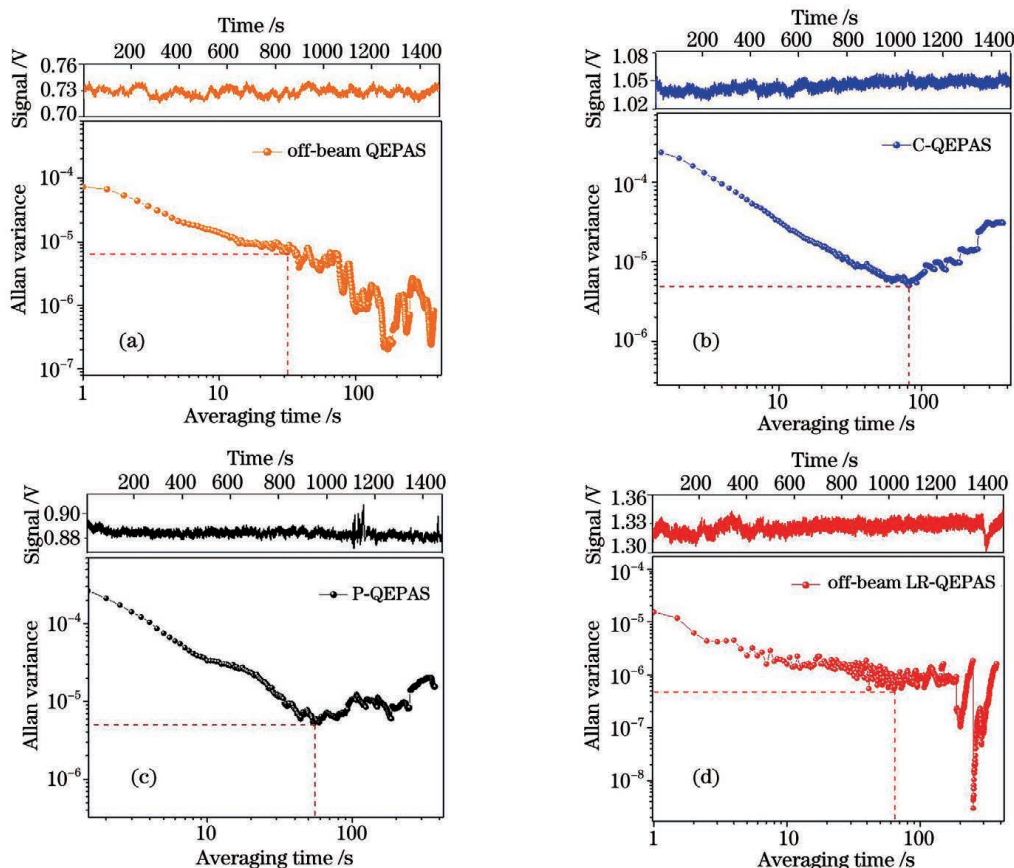


图 7 各系统的 Allan 方差分析。(a)离轴 QEPAS;(b)C-QEPAS;(c)P-QEPAS;(d)离轴 LR-QEPAS

Fig. 7 Allan variance analysis of each system. (a) Off-beam QEPAS; (b) C-QEPAS; (c) P-QEPAS; (d) off-beam LR-QEPAS

## 4 结 论

本文提出了一种基于透镜-反射镜组合的离轴 LR-QEPAS 系统,并采用该系统在 1392.58 nm 处对体积分数为 1.2% 的水汽进行测量。实验中引入离轴 QEPAS 与两种双通 QEPAS 系统作为参考,确定了系统的最佳调制深度,并验证了系统的探测灵敏度随着激光束通过共振管次数的增加而提高。通过 Allan 方差分析可知:离轴 QEPAS 系统在 31 s 积分时间内的最小检测极限为  $6.88 \times 10^{-7}$ , NNEA 系数为  $5.64 \times 10^{-9} \text{ cm}^{-1} \cdot \text{W} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$ ; P-QEPAS 系统在 81 s 积分时间内的最小检测极限为  $5.9 \times 10^{-7}$ , NNEA 系数为  $5.02 \times 10^{-9} \text{ cm}^{-1} \cdot \text{W} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$ ; C-QEPAS 系统在 54 s 积分时间内的最小检测极限为  $5.12 \times 10^{-7}$ , NNEA 系数为  $4.21 \times 10^{-9} \text{ cm}^{-1} \cdot \text{W} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$ ; 离轴 LR-QEPAS 系统具有更高的灵敏度,在 64 s 积分时间内的最小检测极限为  $7.54 \times 10^{-8}$ , NNEA 系数为  $3.46 \times 10^{-9} \text{ cm}^{-1} \cdot \text{W} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$ 。结果表明,离轴 LR-QEPAS 系统的性能优于离轴 QEPAS、P-QEPAS

和 C-QEPAS 系统,可以满足大气痕量气体检测中的精度要求。透镜-反射镜组合结构显著提高了系统的灵敏度,并且与不同类型的共振管结构结合使用可以实现更高的检测灵敏度。下一步工作拟集中于实现激光束在共振管内的多通,提高检测灵敏度至低于  $10^{-9}$  量级,并应用于其他痕量气体的检测。

## 参 考 文 献

- [1] Kosterev A A, Bakhirkin Y A, Curl R F, et al. Quartz-enhanced photoacoustic spectroscopy[J]. Optics Letters, 2002, 27(21): 1902-1904.
- [2] Martin P A. Near-infrared diode laser spectroscopy in chemical process and environmental air monitoring [J]. Chemical Society Reviews, 2002, 31(4): 201-210.
- [3] Chen K, Yuan S, Gong Z F, et al. High sensitive detection for SF<sub>6</sub> decomposition component of H<sub>2</sub>S based on laser photoacoustic spectroscopy[J]. Chinese Journal of Lasers, 2018, 45(9): 0911012. 陈珂, 袁帅, 宫振峰, 等. 基于激光光声光谱超高灵敏度检测 SF<sub>6</sub> 分解组分 H<sub>2</sub>S[J]. 中国激光, 2018, 45(9): 0911012.

- [4] Liu X, Zhang T, Zhang G, et al. Carbon monoxide detection based on photoacoustic spectroscopy [J]. Chinese Journal of Lasers, 2020, 47(1): 0111002. 刘新, 张婷, 张刚, 等. 基于光声光谱技术的 CO 气体探测 [J]. 中国激光, 2020, 47(1): 0111002.
- [5] Sun S W, Yi H M, Wang G S, et al. Impact of water on quartz enhanced photo-acoustic absorption spectroscopy methane sensor performance [J]. Chinese Journal of Lasers, 2012, 39(7): 0715001. 孙善文, 易红明, 王贵师, 等. 水汽含量对基于 QEPAS 甲烷气体探测性能的影响 [J]. 中国激光, 2012, 39(7): 0715001.
- [6] Dong L, Ma W G, Zhang L, et al. Mid-IR ultra-sensitive CO detection based on pulsed quartz enhanced photoacoustic spectroscopy [J]. Acta Optica Sinica, 2014, 34(1): 0130002. 董磊, 马维光, 张雷, 等. 基于脉冲石英增强光声光谱的中红外超高灵敏 CO 探测 [J]. 光学学报, 2014, 34(1): 0130002.
- [7] Chen Y, Gao G Z, Cai T D. Detection technique of ethylene based on photoacoustic spectroscopy [J]. Chinese Journal of Lasers, 2017, 44(5): 0511001. 陈颖, 高光珍, 蔡廷栋. 基于光声光谱的乙烯探测技术 [J]. 中国激光, 2017, 44(5): 0511001.
- [8] Yu R, Jiang Y S. Photoacoustic spectroscopy system with amplitude spectrum and phase spectrum measurement functions [J]. Acta Optica Sinica, 2014, 34(2): 0230001. 余荣, 江月松. 一种可同时实现振幅谱与相位谱测量的光声光谱系统 [J]. 光学学报, 2014, 34(2): 0230001.
- [9] Zhang Q D, Chang J, Wang Q, et al. Acousto-optic Q-switched fiber laser-based intra-cavity photoacoustic spectroscopy for trace gas detection [J]. Sensors, 2017, 18(1): E42.
- [10] Wojcik M D, Phillips M C, Cannon B D, et al. Gas-phase photoacoustic sensor at 8.41  $\mu\text{m}$  using quartz tuning forks and amplitude-modulated quantum cascade lasers [J]. Applied Physics B, 2006, 85(2/3): 307-313.
- [11] Lewicki R, Wysocki G, Kosterev A A, et al. QEPAS based detection of broadband absorbing molecules using a widely tunable, cw quantum cascade laser at 8.4  $\mu\text{m}$  [J]. Optics Express, 2007, 15(12): 7357-7366.
- [12] Liu K, Guo X Y, Yi H M, et al. Off-beam quartz-enhanced photoacoustic spectroscopy [J]. Optics Letters, 2009, 34(10): 1594-1596.
- [13] Merkli P. Acoustic resonance frequencies for a T-tube [J]. Zeitschrift Fur Angewandte Mathematik Und Physik ZAMP, 1978, 29(3): 486-498.
- [14] Yi H M, Chen W D, Sun S W, et al. T-shape microresonator-based high sensitivity quartz-enhanced photoacoustic spectroscopy sensor [J]. Optics Express, 2012, 20(8): 9187-9196.
- [15] Yi H, Chen W, Guo X, et al. An acoustic model for microresonator in on-beam quartz-enhanced photoacoustic spectroscopy [J]. Applied Physics B, 2012, 108(2): 361-367.
- [16] Ma Y F, Yu X, Yu G, et al. Multi-quartz-enhanced photoacoustic spectroscopy [J]. Applied Physics Letters, 2015, 107(2): 021106.
- [17] Patimisco P, Sampaolo A, Dong L, et al. Analysis of the electro-elastic properties of custom quartz tuning forks for photoacoustic gas sensing [J]. Sensors and Actuators B, 2016, 227: 539-546.
- [18] Schilt S, Kosterev A A, Tittel F K. Performance evaluation of a near infrared QEPAS based ethylene sensor [J]. Applied Physics B, 2009, 95(4): 813-824.
- [19] Wu H, Dong L, Zheng H, et al. Beat frequency quartz-enhanced photoacoustic spectroscopy for fast and calibration-free continuous trace-gas monitoring [J]. Nature Communications, 2017, 8: 15331.
- [20] Zheng H D, Dong L, Liu X L, et al. Near-IR telecommunication diode laser based double-pass QEPAS sensor for atmospheric CO<sub>2</sub> detection [J]. Laser Physics, 2015, 25(12): 125601.
- [21] He Y, Ma Y, Tong Y, et al. Ultra-high sensitive light-induced thermoelastic spectroscopy sensor with a high Q-factor quartz tuning fork and a multipass cell [J]. Optics Letters, 2019, 44(8): 1904-1907.
- [22] Hu L E, Zheng C T, Zheng J, et al. Quartz tuning fork embedded off-beam quartz-enhanced photoacoustic spectroscopy [J]. Optics Letters, 2019, 44(10): 2562-2565.
- [23] Liu Y N, Chang J, Lian J, et al. Quartz-enhanced photoacoustic spectroscopy with right-angle prism [J]. Sensors, 2016, 16(2): 214.
- [24] Schilt S, Thévenaz L. Wavelength modulation photoacoustic spectroscopy: theoretical description and experimental results [J]. Infrared Physics & Technology, 2006, 48(2): 154-162.
- [25] Ma Y F, He Y, Tong Y, et al. Ppb-level detection of ammonia based on QEPAS using a power amplified laser and a low resonance frequency quartz tuning fork [J]. Optics Express, 2017, 25(23): 29356-29364.
- [26] Werle P, Mücke R, Slemr F. The limits of signal averaging in atmospheric trace-gas monitoring by tunable diode-laser absorption spectroscopy (TDLAS) [J]. Applied Physics B, 1993, 57(2):

131-139.  
[27] Yi H M, Liu K, Chen W D, et al. Application of a broadband blue laser diode to trace NO<sub>2</sub> detection

using off-beam quartz-enhanced photoacoustic spectroscopy[J]. Optics Letters, 2011, 36(4): 481-483.

## Quartz-Enhanced Photoacoustic Spectroscopy System Based on Lens-Reflector Combination

Liu Jinpeng, Sun Liuya, Niu Mingsheng<sup>\*</sup>, Ma Lili, Zhang Jinghu

*Shandong Provincial Key Laboratory of Laser Polarization and Information Technology, Laser Research Institute, School of Physical Engineering, Qufu Normal University, Qufu, Shandong 273165, China*

### Abstract

**Objective** Quartz-enhanced photoacoustic spectroscopy (QEPAS), as a relatively mature trace gas detection technology, has promising application prospects. QEPAS has several advantages such as high-quality factor, narrow response bandwidth, strong anti-interference, the small size of detection module, and low cost. However, because the output power of the laser excitation source limits the QEPAS system's performance, passing the laser beam through the acoustic detection module multiple times can effectively improve the optical power of the gas absorption. Conventional double-pass QEPAS systems, in which the laser beam passes through the acoustic detection module twice, are not visible for photoacoustic signals enhancement. This paper proposes an off-beam QEPAS system based on a lens-reflector combination (LR-QEPAS) in which the laser beam passes through the acoustic detection module four times to achieve a stronger photoacoustic signal. The lens-reflector combination structure comprising a convex lens, concave reflector, and plane reflector is applied to improve the detection limit of the QEPAS system. We hope that the results of this study can be applied to different types of QEPAS systems, allowing us to further improve the detection limit of trace gases.

**Methods** A fiber-coupled near-infrared distributed feedback laser (NLK1E5EAAA, NEL) was used as a laser source; the current and temperature of the laser were controlled by a commercial diode laser controller (ILX Lightwave LDC-3724C). The current of the laser controller was tuned to achieve coarse and fine-tuning of the laser wavelength, respectively. The second harmonic detection was used to enhance the sensitivity of the off-beam LR-QEPAS. A sine wave at half of the quartz tuning fork (QTF) resonant frequency provided by the function generator was used to modulate the laser source and input the laser controller. The reference sine wave at half of the QTF resonant frequency was an input into lock-in amplifier. The piezoelectric signal generated by the QTF was amplified by a low noise trans-impedance amplifier and converted into a voltage signal. A lock-in amplifier (Stanford Research SR850) at the QTF resonant frequency demodulated the amplified signal. The acoustic detection module of the off-beam LR-QEPAS comprises a plane reflector, concave reflector, convex lens, and microresonator. An infrared sensor plate (HCP-IR-1201) and laser beam analyzer S-WCD-QD-1550 (Dataray Inc.) were used to fine-tune the optical path.

**Results and Discussions** The photoacoustic signal of the off-beam LR-QEPAS system increases nonlinearly with the increases of times that the laser beam passes through the microresonator (Fig. 4) for the laser beam is scattered in the air. The modulation depth of the off-beam LR-QEPAS is compared with the optimized off-beam QEPAS, P-QEPAS, and C-QEPAS systems, and the results show that the systems have the optimal modulation depth of  $0.34 \text{ cm}^{-1}$  (Fig. 5). The measurement of the second harmonic signal shows that the off-beam LR-QEPAS system has the highest signal amplitude because the lens-reflector combination effectively increases the power that the laser passes through the microresonator. The normalized noise equivalent absorption coefficient is  $3.46 \times 10^{-9} \text{ cm}^{-1} \cdot \text{W} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$  (Fig. 6). The Allan variance analysis results show that the lowest detection limit of the off-beam LR-QEPAS system is  $7.54 \times 10^{-8}$  with an integration time of 64 s (Fig. 7). The application of the lens-reflector combined structure greatly improves the detection limit.

**Conclusions** The off-beam LR-QEPAS system based on a lens-reflector combination was proposed. The lens-



reflector combination structures combined with the second harmonic detection technique were used to measure the water vapor with volume fraction of 1.2% at 1392.58 nm for evaluating the system performance. In the experiment, the off-beam QEPAS and two dual-pass QEPAS systems were used as a reference to determine the optimal modulation depth of the system and verify that the detection sensitivity of the system increases as the number of times the laser beam passes through the microresonator. The Allan variance analysis shows that the minimum detection limit of the off-beam LR-QEPAS system is  $7.54 \times 10^{-8}$  with an integration time of 64 s, and the NNEA coefficient is  $3.46 \times 10^{-9} \text{ cm}^{-1} \cdot \text{W} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$ . The results show that the performance of the off-beam LR-QEPAS system is better than that of the off-beam QEPAS, P-QEPAS, and C-QEPAS, and it meets the accuracy requirements in atmospheric trace gases detection. The lens-reflector combined structure significantly improves the sensitivity of the system and can be used in combination with different types of microresonator structures to achieve higher detection sensitivity. The next step will focus on realizing the multipass of the laser beam in the microresonator, which can be expected to achieve sub-ppbv and applied to the other trace gas detection.

**Key words** spectroscopy; quartz-enhanced photoacoustic spectroscopy; lens-reflector combination; water vapor

**OCIS codes** 280.3420; 140.3600; 300.6340; 300.6380